

UNIVERSITÉ DE STRASBOURG

ISIS

Laboratoire des Nanostructures

ÉLÉMENTS DE PLASMONIQUE

Thèse présentée pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Strasbourg

Discipline : Physique

par

Jean-Yves LALUET

Soutenue le 10 Septembre 2009 devant la commission d'examen composée de :

M.	DORKENOO	K.-D.	Professeur, Université de Strasbourg	Rapporteur interne
M.	GARCIA-VIDAL	F.J.	Professeur, Université Autonome de Madrid	Rapporteur externe
M.	LALANNE	P.	Directeur de Recherche CNRS, Université Paris XI	Rapporteur externe
M.	BOZHEVOLNYI	S.I.	Professeur, Université du Danemark du Sud	Membre invité
Mme	DEVAUX	E.	Ingénieure de recherche CNRS, Université de Strasbourg	Membre invité
M.	GENET	C.	Chargé de recherche CNRS, Université de Strasbourg	Membre invité
M.	EBBESEN	T.W.	Professeur, Université de Strasbourg	Directeur de Thèse

Remerciements

Je voudrais tout d'abord exprimer ma gratitude et ma reconnaissance à mon directeur de thèse Thomas Ebbesen. Je le remercie de sa confiance et de m'avoir donné l'opportunité de réaliser ce travail dans un environnement compétitif et stimulant. Son enthousiasme sans faille pour la science a constitué une réelle émulation pour moi tout au long de la thèse et continuera de m'inspirer dans la suite de mon travail. Je suis par ailleurs très sensible au soin qu'il a pris à m'initier au fonctionnement du monde de la recherche et au subtil jeu de la communication scientifique : ses conseils en la matière me seront aussi des plus précieux.

J'adresse mes remerciements les plus respectueux aux membres du jury de thèse pour l'honneur qu'ils m'ont fait en portant de l'intérêt à mes travaux. Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Kokou Dorkenoo pour avoir accepté de présider le jury. Je remercie Francisco García-Vidal et Philippe Lalanne d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse. Je suis également très honoré que Sergey Bozhveolnyi ait pris part au jury de thèse. Je leur suis très reconnaissant pour leurs remarques et leurs suggestions sur le manuscrit et lors de la soutenance.

Je tiens également à exprimer toute ma gratitude à Eloïse Devaux et Cyriaque Genet, non seulement pour avoir accepté de participer au jury de thèse, mais aussi pour la qualité et la constance de l'encadrement dont j'ai eu la chance de bénéficier avec eux durant ma thèse. Votre patience et votre disponibilité face aux avalanches de mes questions, ainsi que votre sens de la pédagogie pour y répondre ont constitué pour moi le soutien essentiel et crucial de ma thèse. Vous avez toujours considéré mes attentes avec bienveillance et attention, et notamment vous avez toujours été présents lorsqu'il s'agissait de balayer mes moments de doutes ou d'inquiétudes : au lendemain d'une pleine journée d'expériences totalement infructueuses, à la veille d'une conférence ou d'une soutenance...

Je ne saurais oublier de remercier Jean-Claude Weeber avec qui j'ai eu la chance de travailler : la grande qualité de ses mesures de champ proche optique fut décisive pour notre compréhension des mécanismes étudiés. Je remercie également sincèrement Aloyse Degiron et José Dintinger qui m'ont pris sous leur aile à mon arrivée en thèse : le premier m'a enseigné jusqu'au moindre secret du FIB tandis que le second m'a véritablement réconcilié avec les salles de chimie.

Un clin d'oeil également aux collègues de "galère" (*so to speak* bien entendu) Frédéric Przybilla et Éric Laux qui, au-delà de contribuer à établir une atmosphère de travail sympathique et complice, sont également devenus de très bons amis dans la "vraie" vie. Je relaterais volontiers l'une ou l'autre anecdotes de labo vécues avec eux, de celles qui arrivent tard dans la nuit lorsqu'il ne reste plus grand monde, mais comme les plus jeunes thésards risquent de lire ces lignes (*oui bon, à voir, je sais... mais on peut toujours rêver non ?*), je préfère garder le silence. À ce propos, je souhaite un *bon vent!* à Oussama Mahboub, Emmanuel Lombard, Benedikt Stein et Juemin Yi. Je n'oublie pas non plus les post-docs que j'ai eu grand plaisir à connaître : Yantao Pang, Adi Salomon, Tal Schwartz et tout particulièrement Aurélien Drezet. Chacune de ces rencontres fut également enrichissante pour moi, et je ne limite pas ce propos au seul plan scientifique.

Enfin, je ne saurais clore cette page sans me retourner sur cette période de ma vie pour encore plus apprécier le soutien constant dont j'ai bénéficié de la part de ma famille et de mes proches. Merci à mes parents, pour leur aide et leurs encouragements au quotidien, à ma soeur et à mes deux adorables nièces, que j'ai vu grandir au cours de la thèse mais de manière bien sous-échantillonnée à mon goût. Merci aussi à mes amis, ceux d'enfance, ceux de *promo* et ceux du 6-7, pour leur fidélité même lorsque la thèse devenait littéralement absorbante. Enfin, merci à celle qui a eu l'inconscience de sortir avec moi pile au moment du début de la rédaction !

Table des matières

Introduction	1
I Principes fondamentaux	4
1 Fondements théoriques	6
1.1 Ondes longitudinales et transverses dans la matière	6
1.2 Le cas des métaux	8
1.2.1 Modèle élémentaire des plasmons	8
1.2.2 Modèle de Drude de la constante diélectrique	11
1.2.3 Relation de dispersion dans les métaux	14
1.2.4 Propriétés optiques des métaux	16
2 Plasmons de surface	20
2.1 Condition d'existence	21
2.1.1 Résolution électromagnétique	21
2.1.2 Résonance de l'interface	24
2.2 Propriétés des plasmons de surface	28
2.2.1 Relation de dispersion	29
2.2.2 Polarisation	30
2.2.3 Confinement	32
2.2.4 Longueur caractéristique de propagation	33
3 Plasmonique	36
3.1 Un candidat pour une optique sub- λ ?	37
3.1.1 Résolution et miniaturisation	38

3.1.2	Guidage et pertes	40
3.1.3	Le bilan : une affaire de compromis	41
3.2	Structures et techniques élémentaires	42
3.2.1	Excitation et détection	43
3.2.2	Propagation	60
II	Résultats expérimentaux	67
4	Protocole expérimental	71
4.1	Fabrication des échantillons	71
4.1.1	Substrats	71
4.1.2	Dépôts métalliques	72
4.1.3	Structures métalliques	74
4.1.4	Couches minces polymères	77
4.1.5	Structures diélectriques	79
4.2	Caractérisation des échantillons	80
4.2.1	Mesures en champ proche optique	81
4.2.2	Microscopie à champ de fuite	83
5	Réseaux sources	86
	Introduction	86
5.1	Modélisation	88
5.2	Expériences et simulations	90
5.3	Angle d'incidence et faisceau unique	92
5.4	Optimisation du faisceau plasmon	97
5.5	Effets de tailles	103
	Conclusion	107
6	Fentes sources	110
	Introduction	110
6.1	Expérience	111
6.2	Observations dans l'espace réciproque	112
6.3	Modélisation	116

6.4	Efficacité du couplage	120
6.5	Observations dans l'espace direct	123
	Conclusion	127
7	Optiques réfractives	128
	Introduction	128
7.1	Optiques métalliques	129
7.2	Optiques diélectriques basiques	138
7.3	Gradients d'indice	147
	Conclusion	154
	Conclusion et perspectives	155
III	Annexe	158
A	Dépôts métalliques	159
A.1	Rugosité de la surface	159
A.2	Optimisation des paramètres de déposition	162
A.3	Homogénéité et contamination des films	164
B	Structures diélectriques	168
B.1	Déposition SiO_x assistée par FIB/SEM	168
B.2	Spin coat et lithographie du PMMA	171
B.2.1	Calibration de l'épaisseur	171
B.2.2	Calibration de la dose d'irradiation	174
C	Microscopie à radiation de fuite	177
C.1	Quelques grandeurs typiques	177
C.2	Quelques expériences supplémentaires	180
D	Fabrication avancée de nanostructures	185
D.1	Pilotage des faisceaux	185
D.2	V-grooves	191
	Liste des communications	213

Introduction

Un des enjeux technologiques et économiques du début du XXI^e siècle réside dans la transition de la microélectronique et de ses nombreuses applications vers les nanotechnologies. Ce besoin se comprend en mettant en regard la loi de Moore avec les capacités technologiques et industrielles actuelles. La loi de Moore est au sens strict une extrapolation empirique prévoyant une augmentation exponentielle de la capacité de calcul des microprocesseurs. Cette prédiction repose implicitement sur la capacité d'intégration et de miniaturisation des transistors qui composent les processeurs. Depuis son premier énoncé en 1965, elle s'est révélée étonnamment exacte jusqu'à présent, et peut théoriquement le rester jusque'en 2015 avant de se voir confrontée à des effets quantiques empêchant des composants encore plus miniaturisés de fonctionner de manière classique, ce qui appellera alors un nouveau paradigme en terme de traitement numérique de l'information. Néanmoins, l'évolution de la puissance de calcul des microprocesseurs actuels souffre déjà d'un léger ralentissement par rapport à la conjecture initiale, des contraintes de différentes natures ayant fait leur apparition. Des effets thermiques limitent par exemple la montée en fréquence des composants, tandis que leur miniaturisation connaît quant à elle une limitation physique liée à la technologie de fabrication employée. Parallèlement, le coût des chaînes de fabrication augmentant lui aussi de manière exponentielle, un argument de nature non plus physique mais financière est donc également susceptible de mettre fin à la loi de Moore avant qu'elle ne se trouve réellement confrontée aux effets quantiques. Un des buts des nanotechnologies est de tenter d'apporter des solutions alternatives à ces problèmes, en proposant notamment de nouvelles techniques de stockage, de manipulation et de transmission de l'information.

Dans le cadre de ces recherches, qui mêlent espoirs et spéculations quant aux techniques futures du traitement numérique des informations, une suggestion récurrente concerne le développement d'un ordinateur tout optique, capable de manipuler les photons comme on sait déjà le faire avec les électrons dans les solides. Celui-ci présenterait, entre autres, une capacité à traiter un grand nombre d'informations en parallèle, à mettre en œuvre une logique de calcul basée sur des principes quantiques, ou encore à proposer une connexion optimale avec les réseaux de télécommunications ultra-rapides par fibres optiques. Si ce rêve venait à se réaliser, de tels ordinateurs optiques devraient toutefois offrir un potentiel de miniaturisation assez proche voire comparable à celui des ordinateurs électroniques pour pouvoir les concurrencer. Leur développement impose donc le contrôle des processus optiques à l'échelle submicronique par une nouvelle génération de composants optiques de tailles nettement inférieures à celles des composants actuels. L'optique traditionnelle se révèle en effet inadaptée pour créer des fonctionnalités dans des volumes sublongueur d'onde en raison de la nature ondulatoire de la lumière, dont les effets deviennent difficilement contrôlables à pareille échelle. Ceci constitue un des verrous majeurs de la miniaturisation.

Dans ce contexte, les plasmons de surface suscitent un intérêt croissant depuis une dizaine d'années, car ils permettent justement la concentration et le contrôle de la lumière dans des volumes très faibles. A titre d'exemple, un guide d'onde à base de plasmons de surface possède la même bande passante que des composants optiques classiques, sans toutefois que ses dimensions submicrons ne soient limitées par la diffraction. Les plasmons de surface sont des modes électromagnétiques piégés à l'interface entre un métal et un diélectrique, et aux propriétés intimement liées à celle-ci. Découverts dès les années 1950, le regain d'attention qu'on leur porte aujourd'hui dépasse très largement le cadre académique initial du sujet, et tient notamment de l'apparition des procédés modernes de nanofabrication. Ces nouvelles techniques permettent de structurer à volonté la surface métallique sur laquelle sont excités les plasmons, ce qui constitue un moyen unique d'agir sur leur flux avec une résolution inédite. C'est donc à la croisée des besoins de miniaturisation de l'optique et de l'avènement des nouvelles technologies que l'optique à base

de plasmons de surface ou *plasmonique* est en train de se développer.

Le travail présenté dans cette thèse a eu pour but de développer différentes structures et approches pour générer, contrôler et détecter des plasmons de surface avec, en parallèle, l'idée de composer des circuits photoniques hybrides au sein desquels un signal optique est converti en signal plasmonique, manipulé puis reconverti.

Première partie

Principes fondamentaux

La **partie I** de ce manuscrit, qui se veut didactique, est consacrée à l'introduction des différentes notions nécessaires pour apprécier notre sujet d'étude. Ainsi, le but de ces premiers chapitres est de permettre de comprendre progressivement les processus physiques sous-tendus lorsque nous parlerons de plasmons de surface puis de cerner les enjeux qui ont motivé ce sujet de thèse.

Dans le **chapitre 1**, nous allons en premier lieu rappeler un résultat sur l'interaction entre un champ électrique et la matière dans un cadre très général, après quoi nous passerons à l'étude plus particulière des milieux métalliques. Les métaux se distinguent des matériaux diélectriques classiques par la présence d'électrons de conduction capables de se déplacer librement au sein du solide : nous verrons que cette particularité peut donner lieu à une oscillation collective des électrons du nuage de conduction dont l'énergie est quantifiée, qui s'associe à un champ électromagnétique et que l'on définit sous le terme de *plasmons*. Nous tâcherons également de donner une expression de la constante diélectrique des métaux afin de voir comment la particularité de ces milieux s'exprime au travers de leurs propriétés optiques.

Après être remontés aux principales caractéristiques microscopiques et analytiques des plasmons dans le volume du métal, nous aborderons leur interaction avec une interface plane : ainsi, dans le **chapitre 2**, nous verrons que l'on peut également mettre en évidence une classe d'excitation collective localisée cette fois à la surface d'un métal, les *plasmons de surface*, et nous en étudierons les différentes propriétés.

Forts de ces observations, nous serons alors à même, dans le **chapitre 3**, de nous interroger dans quelle mesure les plasmons de surface se révèlent être des candidats de choix pour la réalisation de fonctionnalités dans des volumes sublongueurs d'onde. Enfin nous donnerons un bref aperçu de l'état des connaissances sur l'optique à base de plasmons de surface ou *plasmonique*, ce qui permettra de fixer le cadre dans lequel s'inscrivent les ÉLÉMENTS DE PLASMONIQUE développés au cours de cette thèse.

Chapitre 1

Fondements théoriques

De nombreuses précisions au sujet de la physique des solides, des propriétés optiques de métaux ou des plasmons de surface abondent. On pourra entre autres consulter les références [1, 2, 3, 4, 5] sur lesquelles s'appuient les différents développements de cette première partie de la thèse.

1.1 Ondes longitudinales et transverses dans la matière

Considérons un milieu linéaire, homogène, isotrope et non magnétique, dont la permittivité diélectrique relative, ou constante diélectrique, est notée ε . Celle-ci caractérise classiquement la réponse du milieu à un champ électrique, et dépend donc *a priori* de la pulsation du champ. En résolvant les équations de Maxwell dans un tel milieu et pour un champ électrique \mathbf{E} , monochromatique à la pulsation ω et de vecteur d'onde \mathbf{k} , nous obtenons la relation suivante entre \mathbf{E} et \mathbf{k} :

$$\mathbf{k}(\mathbf{k} \cdot \mathbf{E}) - \mathbf{k}^2 \mathbf{E} = -\frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon(\omega) \mathbf{E}. \quad (1.1)$$

Le champ \mathbf{E} n'a pour l'instant pas de direction particulière par rapport à \mathbf{k} . Distinguons à présent les cas d'une onde longitudinale et d'une onde transverse.

Onde longitudinale Une onde longitudinale est caractérisée par un champ électrique \mathbf{E}_{\parallel} colinéaire à \mathbf{k} . La relation 1.1 devient alors :

$$\mathbf{0} = \varepsilon(\omega)\mathbf{E}_{\parallel}. \quad (1.2)$$

Cette dernière relation implique qu'il ne peut y avoir $E_{\parallel} \neq 0$ que s'il existe une pulsation ω_{\parallel} telle que $\varepsilon(\omega_{\parallel}) = 0$. Pour cette pulsation ω_{\parallel} , le milieu peut supporter une onde longitudinale.

Onde transverse Une onde transverse est quant à elle caractérisée par un champ électrique \mathbf{E}_{\perp} orthogonal à \mathbf{k} . La relation 1.1 devient dans ce cas :

$$k^2 = \varepsilon(\omega)\frac{\omega^2}{c^2} \quad \text{pour } \mathbf{E}_{\perp}. \quad (1.3)$$

Nous obtenons la relation de dispersion sur le vecteur d'onde pour une onde transverse. Cette relation renseigne sur la manière dont se comporte une onde transverse dans le milieu ¹ :

- l'onde transverse est propagative si son k admet une partie réelle. C'est le cas si ε est réel positif (k réel, propagation sans atténuation) ou complexe (k imaginaire, propagation dans le milieu avec atténuation);
- l'onde transverse est évanescente si son k est imaginaire pur. C'est le cas si ε est réel négatif;
- enfin, on voit que pour la pulsation ω_{\parallel} qui autorise une onde longitudinale, une onde transverse ne peut en revanche exister puisque son k est alors nul.

Ces quelques observations nous ont permis de voir que les conditions d'existence ainsi que le comportement des ondes transverses et longitudinales dans le milieu dépendent des valeurs prises par la constante diélectrique ε . Nous allons donc maintenant chercher à caractériser ε dans le cas des milieux qui nous intéressent, les métaux.

1. On suppose la pulsation ω réelle

1.2 Le cas des métaux

Les métaux se distinguent par la présence d'électrons de conduction capables de se déplacer librement au sein du solide, formant ce que l'on peut considérer comme un plasma, c'est-à-dire un gaz d'électrons libres. Avant de chercher une expression de la constante diélectrique de ces milieux, nous allons dans un premier temps voir, à l'aide d'une image physique simple, que le plasma d'électrons libres peut présenter une oscillation collective dont l'énergie est quantifiée. Nous retrouverons la trace de cette oscillation collective lorsque nous chercherons, dans un second temps, à exprimer la constante diélectrique des métaux. Forts de ces constatations et des observations faites précédemment, nous serons à même de faire le point sur quelques propriétés remarquables de ces milieux.

1.2.1 Modèle élémentaire des plasmons

Considérons une coupe au sein d'une couche de métal de taille finie. On y trouve la même densité d'électrons libres et d'ions, ces derniers étant immobiles. À l'équilibre, les régions de charges négatives et positives se superposent et le milieu est électriquement neutre (figure 1.1(a)). Si le nuage électronique se retrouve déplacé par rapport aux ions, par exemple sous l'action d'un champ électrostatique externe, des densités locales de charges apparaissent sur les bords du système (figure 1.1(b)). C'est là une illustration de la propriété la plus fondamentale des milieux conducteurs : à l'équilibre électrostatique, la densité surfacique de charges libres s'ajuste de manière à annuler le champ créé par les charges externes. Dans notre exemple, les densités locales de charges apparues sur les bords du système génèrent un champ électrique qui s'oppose au champ électrostatique externe appliqué au système. En coupant le champ électrostatique externe, le champ électrique dû aux densités locales de charges du système hors d'équilibre exerce une force de rappel sur le nuage électronique qui tend à le ramener vers sa position d'équilibre. Ce faisant, il va lui initier un mouvement d'oscillation. Nous sommes en présence d'un système de type oscillateur harmonique, dont nous allons maintenant chercher à caractériser les oscillations.

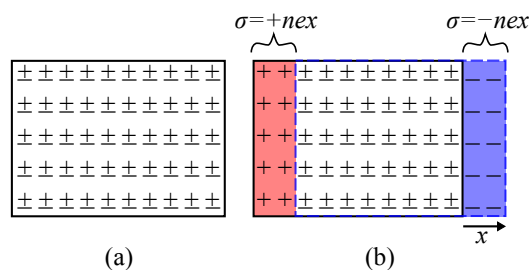


FIGURE 1.1 – Métal à l'équilibre (a) et hors d'équilibre (b). Lorsque la position du centre de masse des électrons ne correspond plus au centre de masse des ions, il existe un excès de charges positives d'un côté du système et un excès de charges négatives du côté opposé.

ELEMENT	n ($10^{22}/\text{cm}^3$)	ω_p ($10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$)	λ_p (nm)
Ag	5.86	13.66	138
Au	5.90	13.70	138
Cu	8.47	16.42	115
Pb	13.20	20.50	92
Ga	15.40	22.14	85
Fe	17.00	23.26	81

Valeurs de n d'après [6]

TABLE 1.1 – Valeurs théoriques de la pulsation plasma et de la longueur d'onde associée pour quelques métaux

Soient n la densité d'électrons de conduction, $-e$ leur charge élémentaire, ϵ_0 la permittivité du vide et x le déplacement du nuage électronique par rapport à sa position d'équilibre. L'amplitude du champ électrique qui apparaît dans le métal hors d'équilibre s'obtient à l'aide du théorème de Gauss :

$$E = \frac{nex}{2\epsilon_0} + \frac{nex}{2\epsilon_0} = \frac{nex}{\epsilon_0}. \quad (1.4)$$

Les électrons libres sont ainsi soumis à une force telle que

$$F = -eE = -\frac{ne^2x}{\epsilon_0} \quad (1.5)$$

et leur équation de mouvement s'écrit, en l'absence de dissipation :

$$\ddot{x} + \frac{ne^2}{m\epsilon_0}x = 0. \quad (1.6)$$

Cette équation fait apparaître la pulsation ω_p des oscillations du plasma d'électrons libres, qui s'écrit :

$$\omega_p^2 = \frac{ne^2}{m\epsilon_0}. \quad (1.7)$$

La pulsation ω_p est caractéristique du matériau. Elle correspond à une longueur d'onde $\lambda_p = 2\pi c/\omega_p$ qui se situe dans l'ultraviolet pour la majorité des métaux nobles. La table 1.1 donne un exemple de la valeur de ces grandeurs pour quelques métaux.

Cette modélisation simple permet de proposer une définition des plasmons. Dans un métal, les électrons libres peuvent osciller de manière collective, entraînant une oscillation résonante de la densité de charge que l'on peut associer à une onde électromagnétique. Ce type d'oscillation a une énergie quantifiée $\hbar\omega_p$, et de la même manière que pour le quantum d'énergie du champ électromagnétique nous parlons de photons, nous parlerons dans ce cas de *plasmons*. Pour exciter ces plasmons, une méthode consiste à bombarder un film mince de métal avec des électrons fortement accélérés. Les électrons transmis ou réfléchis sont ralentis en perdant une énergie égale à

un multiple entier de l'énergie du plasmon. C'est cette méthode qui a été employées par Powell et Swan et qui les a conduits à la première démonstration expérimentale de l'existence des plasmons en 1959 [7].

1.2.2 Modèle de Drude de la constante diélectrique

Le modèle de Drude est une adaptation effectuée en 1900 de la théorie cinétique des gaz aux électrons des métaux. Il permet de rendre compte de plusieurs propriétés des métaux comme leur conductivité électrique, l'effet Hall ou encore leur conductivité thermique. Nous allons ici nous en servir pour obtenir une expression de la constante diélectrique qui caractérise la réponse d'un métal soumis à un champ excitatoire uniforme mais dépendant du temps.

Comme dans le cadre du modèle de l'oscillateur harmonique utilisé précédemment, le métal s'assimile toujours à un gaz formé par les électrons de conduction et dont la charge est compensée par des ions massifs considérés immobiles. En revanche, là où le modèle de l'oscillateur harmonique fait intervenir une force de rappel coulombienne due à l'apparition de densités de charges, le modèle de Drude ne considère lui aucune interaction entre les électrons libres et les ions en dehors de collisions. En d'autres termes, les électrons de conduction sont entraînés dans un mouvement d'ensemble par des champs électromagnétiques et freinés dans ce mouvement par des collisions sur les ions.

Considérons un électron de masse m et de charge $-e$ dans le métal, soumis à un champ électrique uniforme, monochromatique à la pulsation ω , d'amplitude complexe $E = E_0 e^{i\omega t}$. On note x la position de l'électron. L'amortissement dû aux collisions sur les ions est modélisé par une force de friction en $-m\dot{x}/\tau$ où τ est le temps de relaxation du système, soit la valeur moyenne du temps écoulé depuis la dernière collision. L'équation du mouvement pour l'électron s'écrit :

$$\ddot{x} + \frac{\dot{x}}{\tau} + \frac{e}{m}E = 0. \quad (1.8)$$

On peut par ailleurs définir la polarisation de deux façons différentes :

$$P = -nex \quad (1.9)$$

$$P = (\varepsilon - 1)\varepsilon_0 E. \quad (1.10)$$

En introduisant dans l'équation (1.8) une solution du système à l'état d'équilibre de la forme $x = x_0 e^{-i\omega t}$ puis en combinant les relations (1.9) et (1.10), on obtient une expression de ε qui fait apparaître la pulsation ω_p définie dans (1.7). Celle-ci s'écrit :

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + \frac{i}{\tau})}. \quad (1.11)$$

La partie imaginaire présente au dénominateur du second terme est en $1/\tau$, grandeur qui caractérise la fréquence moyenne des collisions subies par l'électron libre d'après les hypothèses du modèle de Drude. On peut séparer partie réelle et imaginaire, ce qui donne

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon' + i\varepsilon'' \quad \text{avec} \quad \varepsilon' = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \frac{1}{\tau^2}} \quad \text{et} \quad \varepsilon'' = \frac{\frac{\omega_p^2}{\tau}}{\omega(\omega^2 + \frac{1}{\tau^2})}, \quad (1.12)$$

et permet de constater que la partie imaginaire ε'' est toujours positive. À partir de l'expression de la constante diélectrique donnée par la relation (1.11), on effectue usuellement l'approximation suivante :

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}. \quad (1.13)$$

Cette expression correspond à la constante diélectrique d'un métal sans perte, pour lequel $\tau \rightarrow \infty$. On considère généralement que c'est le cas, en première approximation, pour les fréquences optiques. Dans ces conditions, on remarque que les résonances du métal liées au comportement collectif des électrons libres, que nous avons mis en évidence grâce au modèle de l'oscillateur harmonique, apparaissent dans le modèle de Drude comme la condition de nullité de la constante diélectrique du milieu.

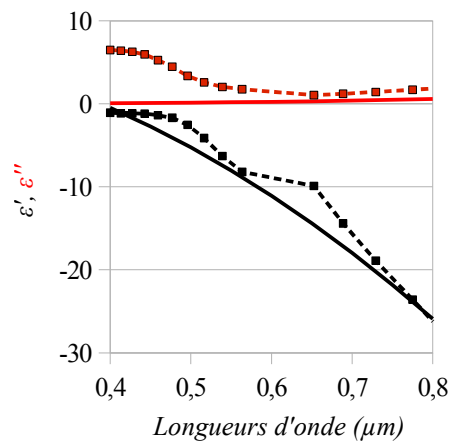


FIGURE 1.2 – Partie réelle (traits noirs) et imaginaire (traits rouges) de la constante diélectrique de l'or : comparaison entre les données expérimentales [3] (traits interrompus) et le modèle de Drude (traits pleins)

Validité du modèle La figure 1.2 montre une comparaison entre le modèle de Drude et des mesures expérimentales de la constante diélectrique de l'or. Les différences observées tiennent évidemment de l'approximation d'un métal sans perte, mais également du fait que la valeur de ω_p prévue par le modèle devient trop faible aux fréquences optiques. Sans vouloir entrer dans les détails des modélisations plus poussées de la constante diélectrique des métaux, on peut simplement indiquer que :

- les pertes du métal peuvent être prises en compte en conservant la partie imaginaire présente au dénominateur du second terme de la relation (1.11). On peut introduire $\gamma = 1/\tau$, terme phénoménologique qui tient compte des pertes dans le milieu et dont la valeur, qui dépend généralement de la fréquence, peut être ajustée d'après des données expérimentales [8] ;
- il serait nécessaire de modifier le modèle de Drude en introduisant les contributions des électrons de valences (transitions interbandes) pour obtenir des valeurs satisfaisantes de ω_p et donc une description correcte de $\varepsilon(\omega)$. Dans la pratique, on peut ajuster la valeur de ω_p à la valeur expérimentale de ω pour laquelle la partie réelle de $\varepsilon(\omega)$ s'annule. L'allure

générale de la partie réelle de la constante diélectrique persiste alors aux fréquences optiques. On peut encore utiliser le modèle suivant :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + \frac{i}{\tau})} \quad (1.14)$$

où ε_∞ est un terme d'ajustement qui représentera notamment la contribution des transitions interbandes aux hautes fréquences.

Malgré les quelques corrections que demande le modèle du gaz d'électrons libres aux fréquences optiques pour apporter des informations quantitatives, nous allons à présent voir qu'il fournit en revanche une bonne explication qualitative des propriétés optiques des métaux, en y mettant tout particulièrement en évidence le rôle joué par les résonances plasmons.

1.2.3 Relation de dispersion dans les métaux

À l'aide des observations générales faites en début de chapitre et du modèle de Drude de la constante diélectrique d'un métal, nous pouvons caractériser les différents modes qui peuvent exister dans les métaux. Nous supposerons le milieu sans perte.

Modes transverses dans un métal parfait Nous pouvons remplacer la constante diélectrique qui figure dans la relation de dispersion (1.3), obtenue pour une onde transverse dans la matière, par l'expression (1.13), obtenue pour un métal parfait. Nous obtenons ainsi la relation de dispersion des ondes transverses dans un métal parfait :

$$k^2 = \frac{\omega^2 - \omega_p^2}{c^2}. \quad (1.15)$$

On voit que le milieu est dispersif. La pulsation ω_p marque la limite de propagation des ondes transverses dans un métal parfait :

- aux fréquences inférieures à ω_p , k est imaginaire. L'onde est évanescente, elle ne peut se propager dans le métal ;

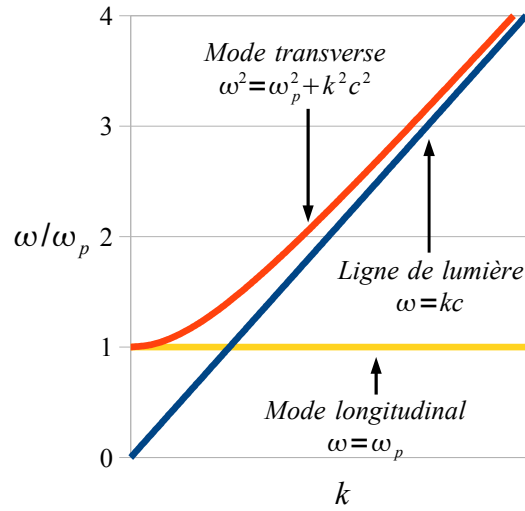


FIGURE 1.3 – Relation de dispersion pour un métal sans perte

- aux fréquences supérieures à ω_p , k est cette fois réel. Des ondes transverses, couplées à une onde de densité de charges, peuvent se propager dans le métal.

Modes longitudinaux dans un métal parfait Nous avons vu en début de chapitre que l'existence d'une onde longitudinale était soumise à l'existence d'une fréquence ω_{\parallel} capable d'annuler la constante diélectrique du milieu. Étant donnée l'expression (1.13) de la constante diélectrique pour un métal parfait, on voit de suite que $\varepsilon(\omega_p) = 0$. La pulsation ω_p remplit la condition et on ne peut trouver d'autre solution, ω_p est la seule fréquence qui autorise des ondes longitudinales dans le métal et leur relation de dispersion est donc :

$$\omega = \omega_p \quad (1.16)$$

L'allure des relations de dispersion pour les ondes transverses et longitudinales dans un métal parfait est donnée sur la figure 1.3. La ligne de lumière représente la relation de dispersion d'une onde transverse dans le vide, où $\varepsilon = 1$ soit $k = \omega/c$.

1.2.4 Propriétés optiques des métaux

Indice de réfraction et réflectivité La constante diélectrique est la grandeur qui décrit la réponse du milieu à un champ excitatoire (rapport entre la norme du champ de déplacement électrique et celle du champ électrique appliqué au milieu). Pour décrire les ondes électromagnétiques dans le milieu, on peut introduire l'indice de réfraction \mathcal{N} du milieu. Celui-ci peut être complexe, on notera n sa partie réelle et κ sa partie imaginaire, et se définit par :

$$\varepsilon = \mathcal{N}^2 = (n + i\kappa)^2 \quad (1.17)$$

Cet indice permet de décrire une onde plane dans le milieu par :

$$E = e^{-i(\omega t - \mathcal{N}kx)} = e^{-i(\omega t - nkx)} e^{-\kappa kx} \quad (1.18)$$

où k est la norme du vecteur de l'onde plane dans le vide, soit $k = \omega/c = 2\pi/\lambda$ avec λ longueur d'onde dans le vide. Cette expression montre que n renseigne sur la vitesse de phase $v_\varphi = c/n$ de l'onde dans le milieu tandis que κ constitue le coefficient d'extinction de l'onde dans le milieu. La figure 1.4 montre l'évolution en fonction de la pulsation de ces grandeurs en utilisant le modèle de Drude pour un métal avec pertes défini par la relation (1.11). La figure 1.5 montre quant à elle l'allure de la réflectivité, calculée dans les mêmes conditions, telle que définie par la formule explicite suivante :

$$R = \left| \frac{\mathcal{N} - 1}{\mathcal{N} + 1} \right|^2. \quad (1.19)$$

Les observations que l'on peut faire sur ces figures sont consistantes avec les observations faites auparavant sur le modèle de Drude ainsi que sur la relation de dispersion des ondes transverses dans un métal. La pulsation plasma ω_p marque la limite entre deux régimes distincts :

- lorsque $\omega \gg \omega_p$, on a $n \gg \kappa \sim 0$ d'où $\mathcal{N} \simeq n$. Le vecteur d'onde dans le milieu possède une partie réelle non nulle et le coefficient extinction est faible. Parallèlement, on a bien $R \simeq 0$. Dans l'ultraviolet lointain, le métal est transparent ;

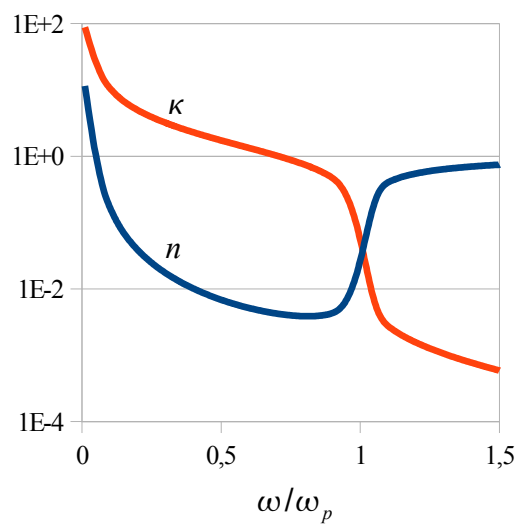


FIGURE 1.4 – Parties réelle n et imaginaire κ de l'indice complexe de réfraction d'un métal avec pertes

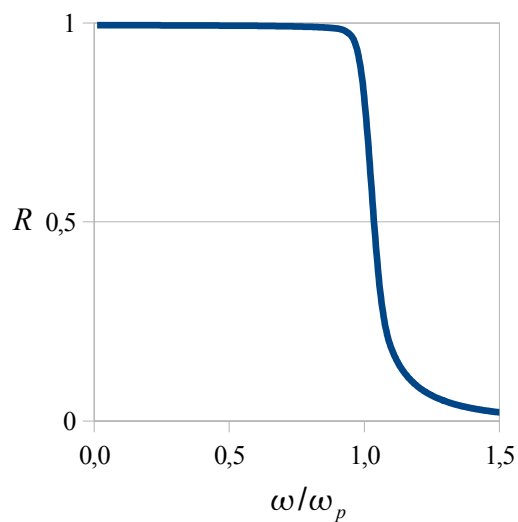


FIGURE 1.5 – Réflectivité R d'un métal avec pertes

- lorsque $\omega \ll \omega_p$, on a le cas inverse, $\kappa \gg n \sim 0$, d'où $\mathcal{N} \simeq \kappa$. Le vecteur d'onde dans le milieu est quasiment imaginaire pur, l'onde électromagnétique ne peut pas se propager. Parallèlement, on a bien $R \simeq 1$. Dans le proche infrarouge et le visible, le métal est fortement réfléchissant ;
- enfin, on peut observer que dans les micro-ondes et l'infrarouge lointain, lorsque $\omega \ll \frac{1}{\tau}$, n n'est plus négligeable, mais il reste en revanche largement dominé par le coefficient d'extinction, $\kappa \gg n \gg 0$, et la réflectivité reste très élevée.

Profondeur de peau optique La profondeur de peau du milieu est la distance δ au bout de laquelle l'intensité $|E|^2 = e^{-2\kappa kx}$ de l'onde est diminuée d'un facteur $1/e$. On peut donc exprimer celle-ci de la façon suivante :

$$\delta = \frac{1}{2\kappa k} = \frac{\lambda}{4\pi\Im(\sqrt{\varepsilon})} \quad (1.20)$$

Dans le visible et le proche infrarouge, un ordre de grandeur de l'épaisseur de peau est typiquement $\delta \sim 20$ nm pour les métaux nobles, ce qui est bien sûr consistant avec la forte réflectivité des métaux dans ce domaine fréquentiel. Cette faible valeur confère par exemple un fort potentiel aux pointes métallisées dans le cadre de la microscopie sublongueur d'onde. En effet, une pointe de mesure en champ proche optique constituée d'un matériau diélectrique voit son pouvoir de résolution limité par la diffraction à une valeur de $\lambda/\sqrt{\varepsilon}$ typiquement. Si cette pointe est recouverte d'une couche de métal présentant une ouverture, son pouvoir de résolution va être limité par les dimensions de l'ouverture pratiquée, augmentées par la pénétration du champ dans le métal. En supposant que les dimensions de l'ouverture puissent être aussi petites que souhaité, le pouvoir de résolution de la pointe métallisée est donc limitée à une valeur de $2\delta = \frac{\lambda}{2\pi|\sqrt{\varepsilon}|}$. Ces deux limites ont basiquement la même échelle, en revanche elles se distinguent fortement par les valeurs prises par la constante diélectrique du milieu. Dans les diélectriques on a $\varepsilon \sim 2-3$ alors que dans les métaux on a typiquement $\varepsilon \sim -20$ aux fréquences du visible et du proche infrarouge.

Nous avons étudié les propriétés optiques des métaux, et nous avons notamment mis en évidence des oscillations résonantes de densité de charges qui sont couplées à une onde électromagnétique appelée plasmon. Rappelons-nous par ailleurs que dans le cadre que nous nous sommes fixés, notre intérêt réside dans les fréquences du visible et du proche infrarouge, or nous avons vu que les domaines de pulsations $\omega < \omega_p$ correspondent à une bande de fréquences interdites, ce qui, par conséquence, ne permet pas de coupler de la lumière aux plasmons. Nous allons maintenant voir qu'une *interface* séparant le vide ou l'air d'un tel matériau possède elle aussi des résonances de ce type, pour lesquelles l'onde électromagnétique associée reste confinée à l'interface et se propage le long de celle-ci. Du fait de la résonance, le champ magnétique est exalté le long de la surface. Cette onde est un *plasmon de surface*, et nous allons à présent nous pencher sur son étude pour notamment constater que, sous les bonnes conditions, il est cette fois possible de coupler de la lumière aux plasmons de surface.

Chapitre 2

Plasmons de surface

L'avènement des télécommunications au cours du siècle dernier a stimulé un intérêt au sein de la communauté scientifique pour les ondes de surface. Au début du XX^e, diverses théories furent avancées pour expliquer comment les ondes radio pouvait suivre la courbure de la terre comme l'avait montré Marconi dans ses expériences transatlantiques de télégraphie sans fil. Zenneck suggère ainsi la propagation d'une onde électromagnétique le long de la frontière terre-air différente de l'onde de sol produite par une antenne ordinaire dans les radiofréquences usuelles, postulant ainsi l'existence d'un concept désigné comme «onde de surface» par opposition aux «ondes spatiales» [9]. L'onde de surface de Zenneck fut peu de temps après formalisée par Sommerfeld [10]. Zenneck analysera par la suite la propagation d'ondes électromagnétiques le long de surfaces métalliques étendues [11], et c'est en 1957 que des prédictions théoriques faites par Ritchie ont mis en évidence l'existence d'une classe d'excitation collective présente à la surface d'un métal : les plasmons de surface [12].

La présence de l'interface entre le métal et le milieu diélectrique donne lieu à une onde de densité de charges surfaciques de même nature que les plasmons étudiés précédemment, à la différence près que l'oscillation cohérente des électrons de conduction n'a plus lieu dans le volume du métal, mais se retrouve localisée au niveau de la surface métallique. Cette localisation de l'onde de densité de charges au niveau de l'interface a comme conséquence

importante de conférer aux champs électromagnétiques qui lui sont associés dans les deux milieux un caractère propagatif le long de l'interface mais évanescent de part et d'autre de l'interface. Dans la mesure où cette particularité proscrit les pertes par radiation hors de l'interface, on parle d'onde piégée en surface. C'est notamment ce confinement naturel au niveau de la surface qui fait des plasmons de surface un candidat avec un potentiel intéressant dans le cadre de la problématique que nous avons définie concernant des circuits photoniques fortement intégrés. Enfin, comme nous le verrons plus loin de façon explicite, un autre grand intérêt pour nous réside dans le fait qu'une onde plane peut se coupler aux plasmons de surface pour les pulsations $\omega < \omega_p$ des domaines du visible et du proche infrarouge qui nous intéressent.

2.1 Condition d'existence

Maintenant que nous avons proposé une description des plasmons de surface, nous allons voir que les plasmons de surface peuvent se présenter en tant que solution particulière des équations de Maxwell pour une onde de surface, et qu'ils apparaissent également à la résonance d'une interface, les deux approches amenant toutes deux aux mêmes conditions d'existence.

2.1.1 Résolution électromagnétique

Dans la suite, nous considérerons le système décrit sur la figure 2.1. L'espace est divisé en deux milieux semi-infinis linéaires, homogènes, isotropes et non magnétiques. On choisit un repère orthonormé $(O, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z})$ tel que l'interface entre les deux milieux se situe dans le plan $(O, \mathbf{x}, \mathbf{y})$ et le plan d'incidence s'inscrit dans le plan $(O, \mathbf{x}, \mathbf{z})$. Les indices 1 et 2 correspondent respectivement au milieu occupant le demi-espace $z > 0$ et au milieu occupant le demi-espace $z < 0$. Nous recherchons comme solutions des équations de Maxwell un mode particulier du système qui est de la forme d'une onde de surface. Une onde de surface est propagative le long de l'interface et évanescente normalement à celle-ci, on peut donc décrire les champs électriques associés à cette onde

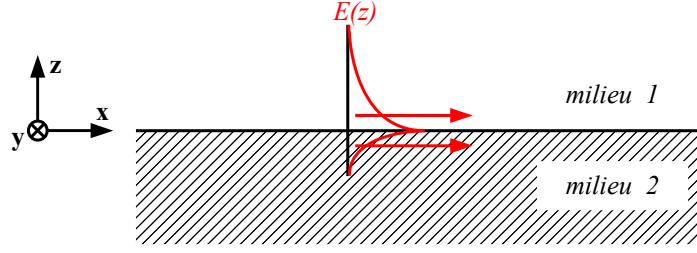


FIGURE 2.1 – Description du système étudié

dans chacun des milieux

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_1 &= (E_{x,1}, E_{y,1}, E_{z,1})e^{i(k_x x + k_{z,1} z)} \quad (z > 0) \\ \mathbf{E}_2 &= (E_{x,2}, E_{y,2}, E_{z,2})e^{i(k_x x - k_{z,2} z)} \quad (z < 0), \end{aligned} \quad (2.1)$$

où la composante k_x , commune aux deux milieux en raison de la conservation de la composante longitudinale du vecteur d'onde, présente une partie réelle strictement positive afin d'assurer le caractère propagatif de l'onde le long de la surface, tandis que les composantes $k_{z,1}$ et $k_{z,2}$ sont elles imaginaires pures pour lui donner son caractère évanescent normalement à l'interface. Les composantes sont par ailleurs reliées entre elles par la conservation de la norme du vecteur d'onde dans chaque milieu

$$\begin{aligned} k_x^2 + k_{z,1}^2 &= \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_1 \\ k_x^2 + k_{z,2}^2 &= \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_2. \end{aligned} \quad (2.2)$$

Nous allons à présent distinguer les cas de la polarisation transverse électrique TE, correspondant à un vecteur champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence, et de la polarisation transverse magnétique TM, correspondant à un vecteur champ électrique contenu dans le plan d'incidence.

Polarisation TE Pour cette polarisation, seules les composantes $E_{y,1}$ et $E_{y,2}$ du champ électrique dans chaque milieu sont non nulles. La relation de continuité à l'interface de la composante tangentielle du champ électrique

impose de plus

$$E_{y,1} = E_{y,2}, \quad (2.3)$$

ce qui permet d'exprimer le champ électrique dans chaque milieu sous la forme

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_1 &= (0, E_0, 0)e^{i(k_x x + k_{z,1} z)} \quad (z > 0) \\ \mathbf{E}_2 &= (0, E_0, 0)e^{i(k_x x - k_{z,2} z)} \quad (z < 0). \end{aligned} \quad (2.4)$$

Par ailleurs, la continuité de la composante suivant $\hat{\mathbf{x}}$ du champ magnétique \mathbf{B} , qui s'écrit

$$\text{rot}\mathbf{E} = -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{B} \quad \rightarrow \quad i\omega B_x = \frac{\partial}{\partial y} \underbrace{E_z}_{=0} - \frac{\partial}{\partial z} E_y, \quad (2.5)$$

impose à $\frac{\partial}{\partial z} E_y$ d'être également continu. D'après les expressions du champ électrique dans chacun des milieux, ceci se traduit par

$$k_{z,1} + k_{z,2} = 0. \quad (2.6)$$

Nous avons cependant fait l'hypothèse de composantes $k_{z,1}$ et $k_{z,2}$ imaginaires pures, telles que

$$k_{z,1} + k_{z,2} = i \underbrace{(|k_{z,1}| + |k_{z,2}|)}_{>0}, \quad (2.7)$$

si bien que la relation (2.6) n'est jamais satisfaite. Par conséquent, il ne peut y avoir d'onde de surface en polarisation TE.

Polarisation TM Pour cette polarisation, les composantes $E_{y,1}$ et $E_{y,2}$ du champ électrique dans chaque milieu sont nulles, et la continuité de la composante tangentielle du champ électrique impose

$$E_{x,1} = E_{x,2}, \quad (2.8)$$

ce qui permet d'exprimer le champ électrique dans chaque milieu sous la forme

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_1 &= (E_0, 0, E_{z,1})e^{i(k_x x + k_{z,1} z)} \quad (z > 0) \\ \mathbf{E}_2 &= (E_0, 0, E_{z,2})e^{i(k_x x - k_{z,2} z)} \quad (z < 0). \end{aligned} \quad (2.9)$$

Les milieux étant homogènes et non chargés, la divergence du champ électrique est nulle dans chaque milieu, ce qui permet de relier les composantes des champs électriques par

$$\begin{aligned} k_x E_0 + k_{z,1} E_{z,1} &= 0 \\ k_x E_0 - k_{z,2} E_{z,2} &= 0 \end{aligned} \quad (2.10)$$

et d'en déduire ainsi que

$$k_{z,1} E_{z,1} + k_{z,2} E_{z,2} = 0. \quad (2.11)$$

Par ailleurs, la quantité εE_z étant continue à l'interface, nous avons

$$\varepsilon_1 E_{z,1} = \varepsilon_2 E_{z,2}, \quad (2.12)$$

ce qui, combiné à l'équation précédente, permet finalement d'obtenir

$$\varepsilon_1 k_{z,2} + \varepsilon_2 k_{z,1} = 0. \quad (2.13)$$

Cette relation donne la condition d'existence d'ondes de surface en polarisation TM. On voit que pour des constantes diélectriques ε_1 et ε_2 réelles, une solution est possible si celles-ci sont de signes opposés.

Jusqu'ici, la discussion portait sur les conditions d'existence d'ondes de surface en se basant sur des solutions particulières que nous avons habilement devinées. Nous allons à présent voir qu'il est possible d'arriver aux mêmes résultats par une approche plus générale et qui renforce notre compréhension de leur origine physique.

2.1.2 Résonance de l'interface

Un plasmon de surface correspond à un mode propre qui apparaît non plus à la résonance d'un milieu métallique mais à la résonance associée à l'interface entre un métal et un milieu diélectrique. Une méthode simple et qui souligne le caractère résonant des plasmons de surface consiste à caractériser

la réponse de l'interface à un champ excitatoire. Une divergence dans la réponse de l'interface traduit le fait qu'une réponse de l'interface peut exister en l'absence d'excitation extérieure, ce qui correspond au régime de résonance que nous cherchons à identifier.

Nous reprenons le système composé de deux milieux semi-infinis et les notations utilisées précédemment. Dans la suite, ce système est éclairé par une onde plane incidente dans le plan $(O, \mathbf{x}, \mathbf{z})$. Les indices i, r , et t correspondent respectivement aux champs incident, réfléchi et transmis (figure 2.2). Dans

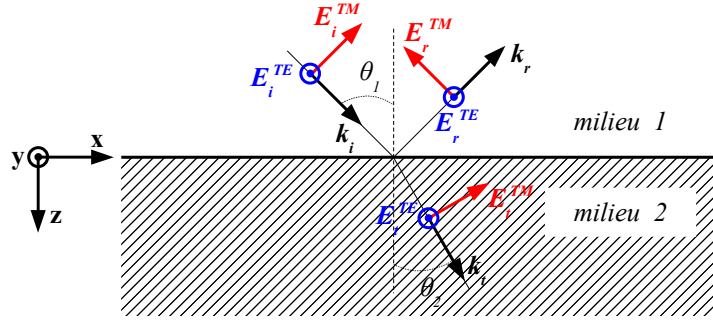


FIGURE 2.2 – Description du système étudié et des polarisations TE et TM

ces conditions, les vecteurs d'onde des champs incident, réfléchi et transmis se décomposent suivant les axes (O, \mathbf{x}) et (O, \mathbf{z}) et vérifient, d'après la conservation de la norme du vecteur d'onde dans chaque milieu,

$$\begin{aligned} k_{x,i}^2 + k_{z,i}^2 &= k_{x,r}^2 + k_{z,r}^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_1 \\ k_{x,t}^2 + k_{z,t}^2 &= \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_2. \end{aligned} \quad (2.14)$$

La composante tangentielle du vecteur d'onde est conservée. On pose

$$k_x = k_{x,i} = k_{x,r} = k_{x,t} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_1} \sin \theta_1 = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_2} \sin \theta_2. \quad (2.15)$$

La composante normale, elle, n'est pas conservée. Son expression se déduit de

la composante tangentielle et de la conservation de la norme totale. On pose

$$\begin{aligned} k_{z,1} &= k_{z,i} = -k_{z,r} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_1} \cos \theta_1 \\ k_{z,2} &= k_{z,t} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_2} \cos \theta_2. \end{aligned} \quad (2.16)$$

Nous allons à présent distinguer les deux cas de la polarisation TE et de la polarisation TM. Pour simplifier les expressions, nous écrivons les amplitudes des champs au voisinage immédiat de l'interface, et nous définissons les champs magnétiques H avec la même dimension que les champs électriques E : dans chaque milieu, l'amplitude du champ H est celle du champ E multipliée par l'indice $\sqrt{\varepsilon}$ correspondant. On commence par considérer une onde incidente en polarisation TM. On a donc toujours

$$E_y^{TM} = H_x^{TM} = 0, \quad (2.17)$$

et les champs dans chaque milieu s'écrivent

$$\begin{aligned} E_{x,1}^{TM} &= (E_i^{TM} + E_r^{TM}) \cos \theta_1 \\ H_{y,1}^{TM} &= (E_i^{TM} - E_r^{TM}) \sqrt{\varepsilon_1} \\ E_{x,2}^{TM} &= E_t^{TM} \cos \theta_2 \\ H_{y,2}^{TM} &= E_t^{TM} \sqrt{\varepsilon_2}. \end{aligned} \quad (2.18)$$

Les conditions générales de continuité des composantes tangentielles des champs à l'interface permettent d'écrire les équations de continuité suivantes

$$\begin{aligned} (E_i^{TM} + E_r^{TM}) \cos \theta_1 &= E_t^{TM} \cos \theta_2 \\ (E_i^{TM} - E_r^{TM}) \sqrt{\varepsilon_1} &= E_t^{TM} \sqrt{\varepsilon_2}. \end{aligned} \quad (2.19)$$

Il sera intéressant pour la suite de former le rapport entre ces deux équations

$$\frac{E_i^{TM} + E_r^{TM}}{E_i^{TM} - E_r^{TM}} = \frac{\sqrt{\varepsilon_1} \cos \theta_2}{\sqrt{\varepsilon_2} \cos \theta_1} = \frac{\varepsilon_1 k_{z,2}}{\varepsilon_2 k_{z,1}}. \quad (2.20)$$

Pour une onde polarisée TE, on a cette fois

$$E_x^{TE} = H_y^{TE} = 0, \quad (2.21)$$

et, comme précédemment, nous écrivons les champs dans chaque milieu

$$\begin{aligned}
 E_{y,1}^{TE} &= (E_i^{TE} + E_r^{TE}) \\
 H_{x,1}^{TE} &= -(E_i^{TE} - E_r^{TE})\sqrt{\varepsilon_1} \cos \theta_1 \\
 E_{y,2}^{TE} &= E_t^{TE} \\
 H_{x,2}^{TE} &= -E_t^{TE} \sqrt{\varepsilon_2} \cos \theta_2,
 \end{aligned} \tag{2.22}$$

d'où les relations de continuité

$$\begin{aligned}
 (E_i^{TE} + E_r^{TE}) &= E_t^{TE} \\
 (E_i^{TE} - E_r^{TE})\sqrt{\varepsilon_1} \cos \theta_1 &= E_t^{TE} \sqrt{\varepsilon_2} \cos \theta_2.
 \end{aligned} \tag{2.23}$$

Le rapport entre ces deux équations donne une expression analogue à (2.20) avec les facteurs de projections $\cos \theta$ interchangeés

$$\frac{E_i^{TE} + E_r^{TE}}{E_i^{TE} - E_r^{TE}} = \frac{\sqrt{\varepsilon_1} \cos \theta_1}{\sqrt{\varepsilon_2} \cos \theta_2} = \frac{k_{z,1}}{k_{z,2}}. \tag{2.24}$$

À ce stade, la réponse de l'interface peut être caractérisée par les coefficients de Fresnel qui relient l'amplitude du champ électrique incident à l'amplitude du champ électrique réfléchi et transmis. Chercher une résonance de la réponse de l'interface reviendra ensuite à identifier les pôles de ces coefficients. Nous allons écrire le facteur de réflexion R d'une part, qui se définit comme le rapport du champ réfléchi au champ incident, et le facteur de transmission T d'autre part, qui se définit par le rapport du champ transmis au champ incident, soit

$$R_{1|2} = \frac{E_r}{E_i} \quad \text{et} \quad T_{1|2} = \frac{E_t}{E_i}. \tag{2.25}$$

On déduit de (2.20) et de (2.24) les expressions explicites, pour chacune des deux polarisations, des coefficients de réflexion. Les relations (2.19) et (2.23), qui relient les amplitudes transmises et réfléchies, permettent ensuite d'en déduire les expressions explicites des coefficients de transmission. On obtient

$$R_{1|2}^{TM} = \frac{\varepsilon_1 k_{z,2} - \varepsilon_2 k_{z,1}}{\varepsilon_1 k_{z,2} + \varepsilon_2 k_{z,1}} \tag{2.26}$$

$$T_{1|2}^{TM} = \frac{2\varepsilon_2 k_{z,1}}{\varepsilon_2 k_{z,1} + \varepsilon_1 k_{z,2}} \quad (2.27)$$

$$R_{1|2}^{TE} = \frac{k_{z,2} - k_{z,1}}{k_{z,1} + k_{z,2}} \quad (2.28)$$

$$T_{1|2}^{TE} = \frac{2k_{z,1}}{k_{z,1} + k_{z,2}}. \quad (2.29)$$

Les pôles de ces coefficients définissent l'existence des modes propres de la surface. Les conditions d'existence de pôles pour ces coefficients s'écrivent

$$\varepsilon_2 k_{z,1} + \varepsilon_1 k_{z,2} = 0 \quad \text{pour la polarisation TM,} \quad (2.30)$$

$$k_{z,1} + k_{z,2} = 0 \quad \text{pour la polarisation TE.} \quad (2.31)$$

Par définition, $k_{z,1}$ et $k_{z,2}$ étant de même signe, les coefficients en polarisation TE ne peuvent clairement pas posséder de pôle. Il est impossible d'exciter de modes propres de la surface avec des ondes polarisées TE. En revanche, pour une onde polarisée TM, les coefficients peuvent présenter un pôle si les constantes diélectriques des deux milieux sont de signes opposés (discussion pour des constantes diélectriques réelles). Cette seconde approche permet d'aboutir, dans un cadre général, aux mêmes conclusions que pour les solutions particulières d'une onde de surface étudiées précédemment.

2.2 Propriétés des plasmons de surface

Dans la suite, nous associerons le milieu 1 à un milieu diélectrique d de constante diélectrique réelle strictement positive, et le milieu 2 à un métal m . Par ailleurs, on notera désormais de manière générale $k_{PS} \equiv k_x$ la composante tangentielle du vecteur d'onde associé aux plasmons de surface.

2.2.1 Relation de dispersion

Avec ces notations, la conservation de la norme du vecteur d'onde dans les milieux s'écrit

$$\frac{\omega^2}{c^2}\varepsilon_d = k_{PS}^2 + k_{z,d}^2 \quad \text{et} \quad \frac{\omega^2}{c^2}\varepsilon_m = k_{PS}^2 + k_{z,m}^2, \quad (2.32)$$

et la condition d'existence d'une onde de surface en polarisation TM s'écrit

$$\varepsilon_m k_{z,d} + \varepsilon_d k_{z,m} = 0. \quad (2.33)$$

Nous pouvons écrire la condition (2.33) en remplaçant $k_{z,m}$ et $k_{z,d}$ par leur expression en fonction de k_{PS} qui découle des relations (2.32), ce qui permet d'obtenir la relation de dispersion caractéristique d'un plasmon de surface reliant son vecteur d'onde k_{PS} à la pulsation :

$$k_{PS} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_d \varepsilon_m}{\varepsilon_d + \varepsilon_m}}. \quad (2.34)$$

Remarquons tout d'abord que cette relation impose à son tour une condition sur les constantes diélectriques des milieux si l'on veut que l'onde soit propagative. En effet, étant donnée la condition (2.33) qui nécessite des constantes diélectriques de signes opposés, on s'aperçoit ici qu'il est de plus nécessaire que le dénominateur sous la racine soit également négatif pour que k_{PS} ne soit pas imaginaire pur. En supposant le métal peu dissipatif, tel que $|\varepsilon'_m| \gg \varepsilon''_m$ soit $\varepsilon_m \simeq \varepsilon'_m$, on a au final les conditions suivantes sur les constantes diélectriques vis-à-vis de l'onde de surface

$$\begin{cases} \varepsilon'_m \varepsilon_d < 0 & \text{(existence),} \\ \varepsilon'_m + \varepsilon_d < 0 & \text{(propagation).} \end{cases} \quad (2.35)$$

Si nous utilisons ensuite le modèle de Drude de la constante diélectrique d'un métal sans perte donné par la relation (1.13), la relation de dispersion des

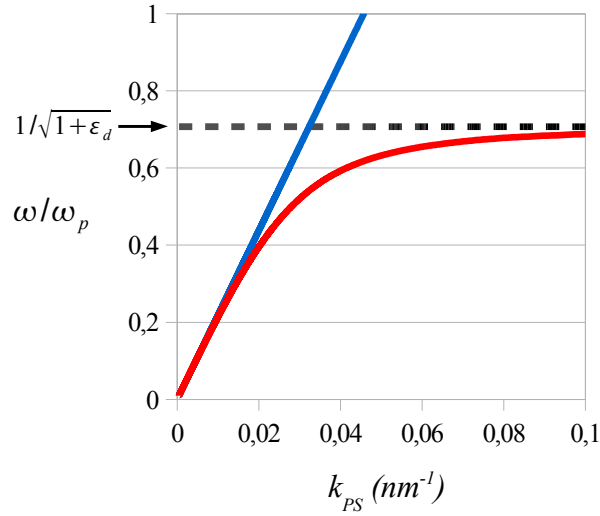


FIGURE 2.3 – Relation de dispersion pour un plasmon de surface à l'interface air-or

plasmons de surface devient

$$k_{PS} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_d(\omega^2 - \omega_p^2)}{\omega^2(1 + \varepsilon_d) - \omega_p^2}}. \quad (2.36)$$

L'allure de cette relation de dispersion est représentée sur la figure 2.3. Elle admet une asymptote horizontale en $\omega = \omega/\sqrt{1 + \varepsilon_d}$, valeur qui correspond à la divergence de l'expression (2.36) de k_{PS} . Étant données les valeurs de ω_p pour les métaux nobles et de ε_d des diélectriques usuels, on peut remarquer que les domaines du visible et du proche infrarouge qui nous intéressent font cette fois partie du domaine de définition de k_{PS} .

2.2.2 Polarisation

On peut écrire de manière explicite les champs électromagnétiques associés aux plasmons de surface dans chacun des milieux. En reprenant les notations usuelles, la solution décrivant les champs dans le milieu diélectrique

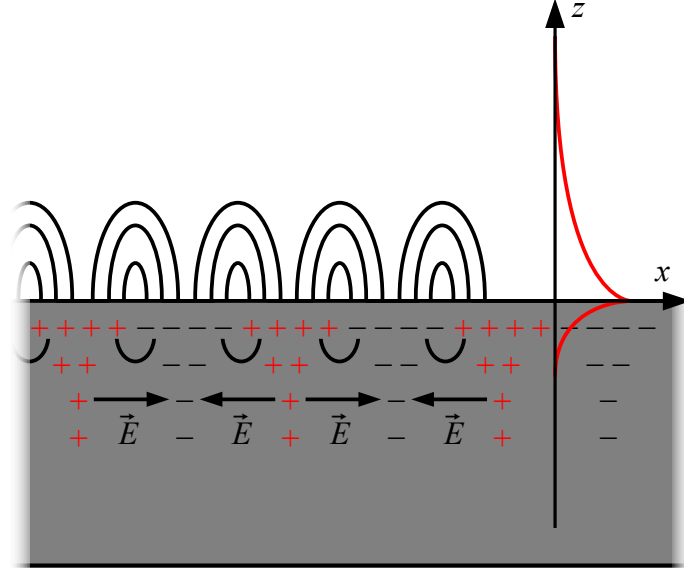


FIGURE 2.4 – Représentation des charges et des champs électromagnétiques associés aux plasmons de surface.

occupant le demi-espace $z > 0$ s'écrit

$$\begin{aligned}\mathbf{E} &= E_0(1, 0, i\frac{k_{PS}}{k_{z,d}})e^{i(k_{PS}x+k_{z,d}z-\omega t)} \\ \mathbf{H} &= i\omega\varepsilon_0 E_0(0, -\frac{\varepsilon_d}{k_{z,d}}, 0)e^{i(k_{PS}x+k_{z,d}z-\omega t)}\end{aligned}\quad (2.37)$$

et la solution décrivant les champs dans le métal occupant le demi-espace $z < 0$ s'écrit

$$\begin{aligned}\mathbf{E} &= E_0(1, 0, -i\frac{k_{PS}}{k_{z,m}})e^{i(k_{PS}x-k_{z,m}z-\omega t)} \\ \mathbf{H} &= i\omega\varepsilon_0 E_0(0, \frac{\varepsilon_m}{k_{z,m}}, 0)e^{i(k_{PS}x-k_{z,m}z-\omega t)}\end{aligned}\quad (2.38)$$

D'après la direction prise par le vecteur \mathbf{H} , ce mode possède une polarisation rectiligne TM. Le champ électrique présente en revanche une polarisation elliptique due à la présence d'une composante transverse et d'une composante longitudinale déphasée l'une par rapport à l'autre. Ceci explique la courbure régulière du champ électrique représenté dans la figure 2.4. Étant donné les valeurs des constantes diélectriques, c'est généralement la composante transverse qui domine dans le diélectrique, mais nous verrons avec les expériences réalisées dans le cadre des sources à plasmons de surface que la

composante longitudinale a toute son importance pour l'étude du mécanisme de lancement des plasmons de surface. Profitons également de cette schématisation pour faire remarquer que l'absence de composante du champ électrique normale à la surface empêche toute induction de densités de charges dans l'épaisseur de peau du métal, ce qui permet de comprendre pourquoi il est impossible d'exciter une onde de surface en polarisation TE.

2.2.3 Confinement

Les composantes du vecteur d'onde normales à la surface s'obtiennent en combinant (2.32) et (2.34) et s'écrivent

$$k_{z,d}^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\varepsilon_d^2}{\varepsilon_d + \varepsilon_m} \quad (2.39)$$

$$k_{z,m}^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\varepsilon_m^2}{\varepsilon_d + \varepsilon_m}. \quad (2.40)$$

On s'aperçoit alors que la condition $\varepsilon'_m + \varepsilon_d < 0$, nécessaire pour assurer un caractère propagatif à l'onde le long de la surface, fixe dans le même temps le caractère évanescent de l'onde dans la direction normale à la surface puisqu'elle se traduit par des composantes $k_{z,d}$ et $k_{z,m}$ toutes deux imaginaires pures. Nous sommes bien en présence d'une onde de surface : la propagation est possible le long de celle-ci mais interdite normalement à celle-ci. Ceci faisait bien sûr partie des hypothèses de départ lorsque nous avons proposé les solutions particulières pour une onde de surface, mais permet en revanche de s'assurer de manière consistante que le mode propre qui apparaît à la résonance de l'interface, pour lequel aucune hypothèse de ce genre n'avait été faite, correspond bien à la définition d'une onde de surface. Dans ce contexte, rappelons-nous que le mode propre de l'interface apparaît pour une divergence dans la réponse de l'interface, ce qui pose *a priori* la question de la conservation de l'énergie, mais nous voyons bien ici que l'onde de surface est confinée au niveau de l'interface et ne peut donc pas transporter d'énergie hors de celle-ci. On peut également constater à l'aide des expressions des champs électromagnétiques explicités précédemment que la

moyenne temporelle du vecteur de Poynting $\langle \mathbf{S} \rangle = \frac{1}{2} \Re(\mathbf{E} \wedge \mathbf{H}^*)$ n'a pas de composante suivant $\hat{\mathbf{z}}$, ce qui signifie bien que l'atténuation dans cette direction ne s'accompagne d'aucune dissipation d'énergie. Ceci est vrai dans le cas d'un métal parfait, sans perte, mais il bien entendu qu'en réalité l'atténuation s'accompagne toujours d'un transfert d'énergie dans le milieu environnant, aussi faible soit-il.

Ces observations mettent en avant la notion de confinement de l'onde au niveau de l'interface. Pour quantifier la qualité de ce confinement, on peut évaluer l'extension spatiale du champ électrique de part et d'autre de l'interface par le biais de l'épaisseur de peau δ . Toujours dans l'hypothèse d'un métal peu dissipatif, on a

$$\delta = \frac{1}{2\Im(k_z)} \simeq \frac{1}{2|k_z|}, \quad (2.41)$$

ce qui donne dans le diélectrique

$$\delta_d = \frac{c}{\omega} \frac{\sqrt{-\varepsilon_d - \varepsilon_m}}{\varepsilon_d} \quad (2.42)$$

et dans le métal

$$\delta_m = \frac{c}{\omega} \frac{\sqrt{-\varepsilon_d - \varepsilon_m}}{\varepsilon_m}. \quad (2.43)$$

La figure 2.5 montre l'évolution de ces épaisseurs dans le domaine du visible. Elles sont typiquement de l'ordre de quelques nanomètres dans le métal et de quelques centaines de nanomètres dans le diélectrique. On s'aperçoit que ces modes concentrent l'énergie dans des épaisseurs très fines, inférieures à la longueur d'onde, ce qui constitue un aspect remarquable des plasmons de surface sur lequel nous reviendrons dans la suite.

2.2.4 Longueur caractéristique de propagation

Dans un métal réel, les plasmons de surface sont amortis dans leur propagation le long de l'interface en raison de pertes liées à l'absorption dans le métal. De manière analogue à l'épaisseur de peau pour un champ évanescent, nous pouvons ici définir une longueur caractéristique de propagation L_{PS} au

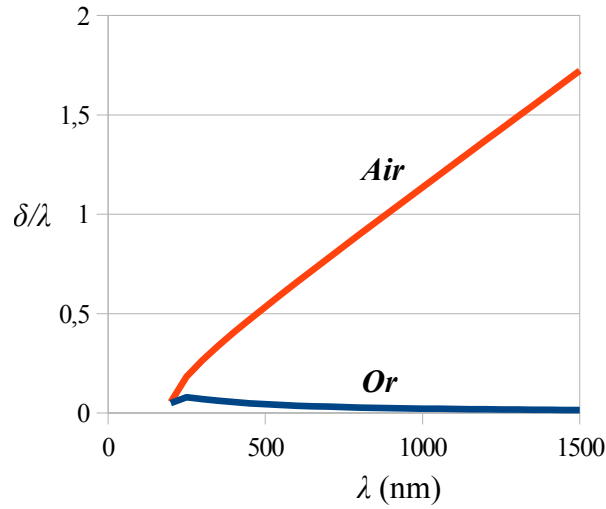


FIGURE 2.5 – Longueur d’atténuation δ dans les deux milieux pour un plasmon de surface à l’interface air-or

bout de laquelle l’intensité initiale du champ est atténuée d’un facteur $1/e$. D’après les expressions (2.37) et (2.38) des champs associés aux plasmons de surface dans chacun des milieux, L_{PS} s’écrit

$$L_{SP} = \frac{1}{2\Im(k_{PS})} = \frac{c}{\omega} \frac{\varepsilon_m'^2}{\varepsilon_m''} \sqrt[3]{\frac{\varepsilon_d + \varepsilon_m'}{\varepsilon_d \varepsilon_m'}}. \quad (2.44)$$

Soulignons que la chute exponentielle du champ dans le sens de la propagation des plasmons de surface provient d’une déperdition par absorption dans le métal. Elle est par conséquent d’une toute autre nature que la chute exponentielle du champ normalement à l’interface que nous avons étudiée précédemment. L’allure de L_{PS} est tracée sur la figure 2.6. Dans les métaux nobles, cette distance est typiquement de l’ordre de quelques dizaines de microns dans le visible et peut atteindre plusieurs millimètres dans l’infrarouge. Notons que dans la pratique, la distance de propagation observée se trouve évidemment diminuée par des pertes radiatives dues à la diffusion sur des défauts et par la rugosité de la surface métallique.

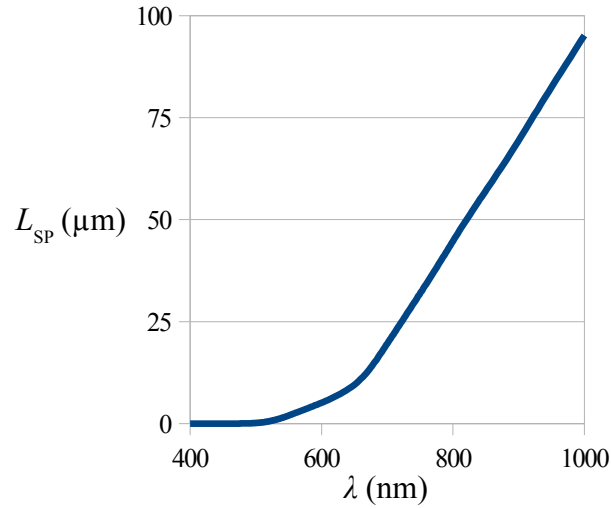


FIGURE 2.6 – Longueur de propagation L_{PS} pour un plasmon de surface à l'interface air-or

Après avoir identifié les conditions d'existence d'une onde de surface liée à l'oscillation collective de la densité de charges localisée au niveau de la surface d'un métal, il convient de réaliser que sa nature débouche sur une double conséquence. Sa capacité à concentrer et à propager le champ électromagnétique, d'une part, en fait un des ses atouts majeurs pour créer des fonctionnalités de traitement de l'information dans des volumes sublongueur d'onde, et, à ce titre, nous l'avons quantifiée en termes d'épaisseur de peau dans les deux milieux et de distances caractéristiques de propagation le long de l'interface. L'évolution de ces grandeurs nous permettra par la suite d'identifier les régimes de fonctionnement intéressants dans le cadre de l'utilisation des plasmons de surface au sein de circuits photoniques. Mais d'autre part, cette nature non radiative de l'onde de surface implique par la même occasion, et avant même d'envisager des techniques de manipulation d'un signal plasmonique, le développement préalable de techniques permettant l'excitation et la détection contrôlées des plasmons de surface. Ce sont ces techniques et les applications qui en découlent qui seront abordées dans la suite.

Chapitre 3

Plasmonique

Dans un premier temps, l'intérêt porté aux plasmons de surface après leur découverte resta de nature académique principalement. Ce fût le cas jusqu'à ce qu'on réalise que les résonances associées aux plasmons de surface, étroitement liées à la nature de l'interface, pouvaient être exploitées pour mesurer avec précision de faibles changements de la constante diélectrique des milieux, ce qui permet de suivre l'adsorption d'espèces moléculaires par la surface et constitue le principe de base de la spectroscopie de résonance plasmon de surface [13]. On observa également que les champs électromagnétiques intenses générés au voisinage de l'interface permettaient d'amplifier des effets non linéaires tels que la génération de seconde harmonique par la surface ou la diffusion inélastique par des molécules [14]. Cette dernière est de nos jours au cœur de la spectroscopie Raman exaltée par surface qui permet de résoudre la structure chimique de matériaux même à l'échelle de molécules uniques [15]. En dehors de ces quelques applications, pourtant, les plasmons de surface étaient perçus comme une nuisance, une source de perte d'énergie par absorption dans le métal.

Au cours de la dernière décennie, les développements technologiques et la démonstration de nouveaux phénomènes induits par les plasmons de surface ont largement changé cette perception. En particulier, l'évolution conjointe des techniques de fabrication et de caractérisation des échantillons d'une part, des codes et de la puissance de calcul d'autre part, a permis la réali-

sation, l'étude et l'optimisation de surfaces métalliques structurées capables de contrôler le flux des plasmons de surface à une échelle inédite. Outre une compréhension étendue des phénomènes physiques se déroulant au voisinage direct des structures, cette capacité récente à simuler et à élaborer des fonctionnalités dans des volumes sublongueur d'onde offre la perspective alléchante d'allier la capacité d'intégration des circuits électroniques à la bande passante d'un réseau optique, et pose les jalons d'une nouvelle discipline, la *plasmonique*.

À l'aide des propriétés des plasmons de surface étudiées dans la partie précédente, nous proposerons tout d'abord quelques considérations d'ordre très général mais pratique qu'il convient d'avoir à l'esprit pour élaborer des applications impliquant des plasmons de surface. Nous nous pencherons ensuite sur les techniques élémentaires de la plasmonique, dont le but est de permettre le contrôle de l'émission, de la propagation et de la détection des plasmons de surface. Enfin nous tâcherons de proposer un humble tour d'horizon des différentes applications de la plasmonique existantes à ce jour.

3.1 Un candidat pour une optique sub- λ ?

Les instruments d'optiques voient typiquement leur pouvoir de résolution limité par la diffraction à des dimensions de l'ordre de la longueur d'onde. C'est à ce même ordre de grandeur que se trouvent confrontée la miniaturisation des composants usuels de l'optique guidée : les guides diélectriques présentent ainsi une section critique pour le guidage de la lumière qui est également de l'ordre de la longueur d'onde. Récemment, les cristaux photoniques sont venus apporter une solution au problème du guidage de la lumière dans des volumes sublongueur d'onde, mais hormis le cas de géométries particulières (symétrie cylindrique des fibres à cristaux photoniques par exemple), le guidage se fait souvent par réflexion totale interne dans une des directions, les cristaux photoniques 3D étant difficiles à fabriquer, avec la limitation d'un guide classique concernant les dimensions des composants dans cette direction. Nous allons regarder ce qu'il advient de ces notions de résolution, de miniaturisation et de guidage dans le cas des plasmons de surface.

3.1.1 Résolution et miniaturisation

Le fait que la relation de dispersion des plasmons de surface se situe sous la ligne de lumière signifie que pour une pulsation donnée, la longueur d'onde associée aux plasmons de surface est inférieure à la longueur d'onde de la lumière dans le diélectrique. C'est un argument qui introduit l'idée que les plasmons de surface repoussent la limite de diffraction de l'optique classique, avec à la clé un pouvoir de résolution accru et une meilleure capacité de miniaturisation des composants à base de plasmons de surface, mais qu'il convient néanmoins de quantifier. La figure 3.1 montre l'évolution de la longueur d'onde λ_{PS} associée aux plasmons de surface, définie par

$$\lambda_{PS} = \frac{2\pi}{k_{PS}}, \quad (3.1)$$

en fonction de la longueur d'onde d'excitation dans le vide. Pour fixer les idées, λ_{PS} a été normalisée par la longueur d'onde $\lambda/\sqrt{\epsilon_d}$ de la lumière dans le diélectrique. On constate logiquement que l'écart entre la longueur d'onde des plasmons de surface et la longueur d'onde de la lumière est proportionnel à la distance entre leur branche respective sur la relation de dispersion (figure 2.3). Cette donnée prise à part, il apparaît naturellement tentant de se rapprocher de l'ultraviolet afin d'obtenir des plasmons de surface de longueur d'onde extrêmement faible devant celle de la lumière, mais cette idée doit immédiatement être nuancée :

- dans l'absolu, il existe une limite sous laquelle le métal ne peut plus être considéré comme un milieu continu décrit par des constantes diélectriques macroscopiques ;
- d'un point de vue pratique, la longueur caractéristique de propagation des plasmons de surface dans l'ultraviolet (figure 2.6) rend absolument rédhitoire ce domaine fréquentiel.

Ce second point montre que l'on ne peut pas se passer de prendre en compte l'ensemble des caractéristiques des plasmons de surface, telle que dans le cas présent leur longueur caractéristique de propagation. La réalisation de fonctionnalités tirant parti du contrôle du flux de plasmons de surface requiert bien évidemment qu'il se propage, ce qui implique de travailler dans les do-

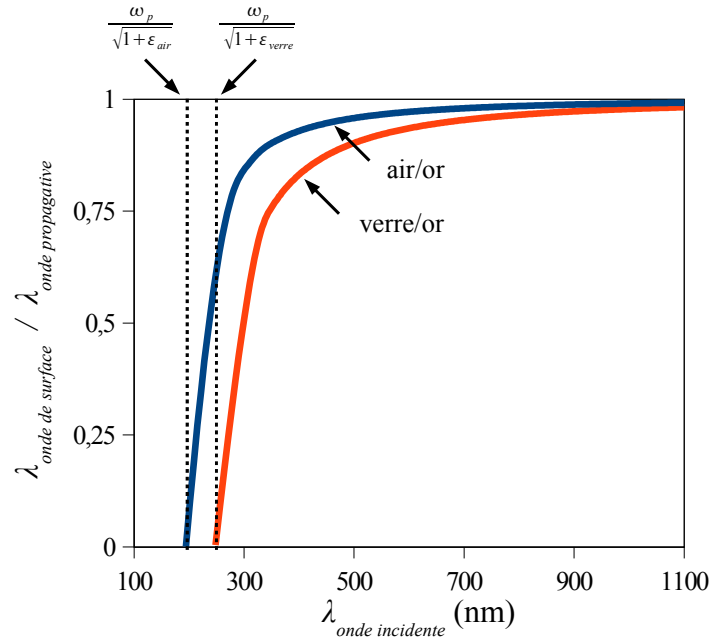


FIGURE 3.1 – Rapport entre la longueur d’onde associée à l’onde de surface se propageant le long d’une interface diélectrique-métal et la longueur d’onde associée et à l’onde propagative dans le diélectrique.

maines du visible et de l’infrarouge. La figure 3.1 montre que dans ce cas, le gain sur la longueur d’onde est moindre. L’utilisation d’un matériau diélectrique d’indice supérieur permet d’améliorer la chose, mais étant donné que l’indice maximum que l’on peut espérer obtenir avec les indices des diélectriques usuels est de l’ordre de 2, on peut indiquer, pour fixer les idées, que le gain sur la longueur d’onde d’un plasmon de surface capable de se propager au moins à l’échelle de quelques microns sera de l’ordre de 50% au maximum.

La longueur d’onde est un critère qui affecte le flux de plasmons de surface dans le plan de l’interface. Elle va conditionner, dans ce plan uniquement, le pouvoir de résolution des plasmons de surface et les dimensions minimales des composants à plasmons de surface. Il convient de s’intéresser également à ce qu’il en est dans la direction orthogonale à l’interface. Suivant cette

direction, les champs électromagnétiques associés aux plasmons de surface sont évanescents et la discussion porte alors sur leur extension spatiale dans les deux milieux. Le confinement des plasmons de surface a été quantifié dans le chapitre 2 lors de l'étude des propriétés des plasmons de surface : la figure 2.5 montrait que la longueur d'atténuation de ces champs reste inférieure à la longueur d'onde de la lumière dans le diélectrique pour les fréquences du visible, et toujours largement inférieure dans le métal. C'est donc dans la direction orthogonale à l'interface encore plus que le long de celle-ci que le potentiel de miniaturisation composants à base de plasmons de surface prend tout son sens.

3.1.2 Guidage et pertes

Le confinement des champs électromagnétiques à proximité de la surface métallique est intrinsèquement lié à la nature non radiative de l'onde de surface. C'est donc l'interface entre les deux milieux qui constitue le guide des plasmons de surface. La question du guidage se résume ensuite, de façon analogues aux cristaux photoniques 2D, à un problème à deux dimensions dans le plan de propagation de l'onde.

Comme dans tout contexte de circuiterie, la lutte contre les pertes constitue un sujet incontournable. Dans le cas des plasmons de surface, nous avons vu qu'il existe des pertes par absorption dans le métal, que nous avons quantifiées par le biais de la longueur caractéristique de propagation des plasmons de surface dans le plan de l'interface. Celle-ci est inversement proportionnelle à la partie imaginaire de la constante diélectrique du métal, qui rend compte des pertes dans le matériau, mais elle dépend également du confinement et cette fois de manière proportionnelle : un champ fortement confiné sera en effet d'autant plus sensible aux pertes dans le métal. Par ailleurs, malgré la nature évanescence des champs électromagnétiques de l'onde de surface dans les directions normales à l'interface, il existe tout de même dans la pratique des pertes radiatives. Comme nous l'avons évoqué précédemment, celles-ci sont dues à la rugosité ou à des imperfections de la surface métallique. Soulignons également qu'elles seront d'autant plus importantes que la branche de

la relation de dispersion des plasmons de surface se situe proche du cône de lumière. En effet, le désaccord à combler entre le vecteur d'onde tangentiel de l'onde de surface et de l'onde radiative est alors faible et correspond à la zone la plus intense de la densité spectrale de puissance diffusée par un défaut de surface.

3.1.3 Le bilan : une affaire de compromis

Les observations précédentes ont mis en évidence que les différents paramètres sur lesquelles reposent les performances d'une application à base de plasmons de surface dépendent de la longueur d'onde et évoluent pour certains de manière antagoniste. En particulier, un confinement important permet un fort potentiel de miniaturisation mais provoque des pertes par absorption dans le métal conséquentes. Inversement, un faible confinement permet de grandes longueurs de propagation mais amoindrit le potentiel de miniaturisation et rend le système sujet à des pertes radiatives dans la pratique. Il apparaît donc opportun de dresser un bilan qui donne une idée globale de la bande passante des composants plasmoniques.

Ultraviolet Dans le proche ultraviolet, $k_{PS} \gg \omega/c$ et la longueur d'onde associée aux plasmons de surface devient extrêmement faible devant celle de la lumière. Ceci permet *a priori* d'espérer une très bonne résolution dans le plan de la surface ainsi qu'une capacité d'intégration d'autant plus importante que le confinement de l'onde est remarquable dans les deux milieux simultanément. En revanche, et c'est là un frein définitif à l'intérêt que l'on pourrait trouver à ce domaine de fréquences, la longueur caractéristique de propagation ainsi que les vitesses de groupe $v_g = \partial\omega/\partial k_{PS}$ et de phase $v_\phi = \omega/k_{PS}$ des plasmons de surface tendent vers zéro. Concrètement, les plasmons de surface ne se propagent plus mais deviennent une fluctuation de charges localisée, ce qui correspond à la limite électrostatique.

Visible Dans le visible et le proche infrarouge, $k_{PS} > \omega/c$ et la longueur d'onde des plasmons de surface reste inférieure à celle d'une onde se pro-

pageant. Le confinement reste également sublongueur d'onde et promet par conséquent une bonne capacité d'intégration mais également une robustesse face aux défauts de surface qui pourraient engendrer des pertes radiatives. Enfin l'ordre de grandeur des longueurs caractéristiques de propagation devient appréciable, ce qui permet d'envisager l'implémentation de différentes fonctionnalités successives de traitement de l'information, alors que les vitesses de phase et de groupe restent proches de celle de la lumière.

Infrarouge Dans l'infrarouge, $k_{PS} \approx \omega/c$, la longueur d'onde associée aux plasmons de surface est proche de celle d'une onde propagative. La longueur caractéristique de propagation est certes très grande, mais le fait que la courbe de dispersion des plasmons de surface soit très proche de celle de la lumière va engendrer une grande sensibilité aux défauts de surface, ceux-ci provoquant des pertes radiatives importantes. Dans ce régime, le mode de surface est semblable à une onde rasante.

Lorsque l'on se déplace le long de la relation de dispersion des plasmons de surface, on se rend compte que les maxima en termes de longueur de propagation et de confinement se situent sur les extrémités opposées de cette branche. L'application plasmonique idéale requiert à la fois la possibilité de propager efficacement le signal d'un bout à l'autre d'un circuit et une capacité de miniaturisation appréciable. On constate ainsi que c'est dans le régime qui correspond au domaine du visible et du proche infrarouge que l'onde de surface présente le meilleur compromis pour le développement d'une technologie plasmonique.

3.2 Structures et techniques élémentaires

À la vue de la relation de dispersion des plasmons de surface, une remarque importante est à faire : certes les domaines du visible et du proche infrarouge qui nous intéressent font partie du domaine de définition de k_{PS} , en revanche, dans la mesure où la relation de dispersion des plasmons de surface et le cône de lumière correspondant aux modes électromagnétiques

radiatifs dans le diélectrique présentent des domaines de définition disjoints, il est clair que l'on ne peut pas directement coupler une onde plane radiative aux plasmons de surface sur une interface plane. Cette opération nécessite certains dispositifs dont la nécessité est double : non seulement pour exciter les plasmons de surface, mais également pour parvenir à les détecter. Une fois ces dispositifs de couplage radiatif mis en place, on peut alors se pencher à proprement parler sur les structures de contrôle du flux des plasmons de surface.

3.2.1 Excitation et détection

Les dispositifs que nous allons à présent étudier visent à permettre l'excitation de plasmons de surface à partir d'une onde incidente ou inversement leur détection par découplage radiatif. Leur principe de fonctionnement consiste à faire croître dans les bonnes proportions le vecteur d'onde tangentiel d'une onde radiative dans le milieu diélectrique qui, comme on le voit sur la relation de dispersion, est à pulsation ω donnée toujours inférieur à k_{PS} . Historiquement, les plasmons de surface ayant de grandes valeurs de vecteur d'onde ont été observés pour la première fois par spectroscopie de pertes d'énergie d'électrons [16]. La première observation expérimentale de plasmons de surface à l'aide de lumière est elle due à Otto [17].

Dispositif d'Otto

Le dispositif utilisé est un prisme éclairé en réflexion totale interne et qui se trouve au voisinage d'un film de métal. Malgré cette «réflexion totale» dans le prisme, il existe une perturbation électromagnétique dans le second milieu qui prend la forme d'une onde évanescente. Par conservation de la composante tangentielle du vecteur d'onde dans les deux milieux, celle-ci vaut

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sin(\theta) \sqrt{\varepsilon_{prisme}}, \quad (3.2)$$

et il est alors possible, pour un choix adéquat de l'angle d'incidence θ et de l'indice du prisme $\sqrt{\varepsilon_{prisme}}$, de faire coïncider cette valeur avec le k_{PS} de la

surface de métal. Lorsque la distance entre le prisme et la surface de métal est suffisamment faible, l'onde évanescente créée à la surface externe du prisme peut, par effet tunnel, provoquer l'excitation d'un plasmon de surface. Ce dispositif fonctionne ainsi de manière analogue au phénomène bien connu de réflexion totale frustrée.

Dispositif de Kretschmann-Raether (film mince)

Soient deux milieux 1 et 3 semi-infinis séparés par un milieu 2 d'épaisseur h finie, tels que représentés sur la figure 3.2. Dans la suite, on fera référence

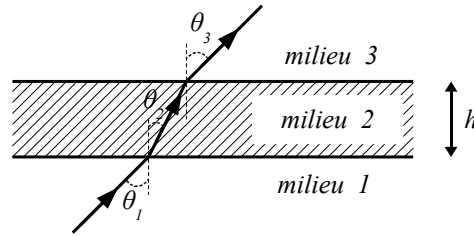


FIGURE 3.2 – Descriptif du système étudié

aux milieux 1 et 3 respectivement par les termes *substrat* et *superstrat*. Pour une onde incidente dans le substrat, nous pouvons évaluer la réflectivité R du film constitué par le milieu 2 à l'aide de l'expression

$$R = \left| \frac{R_{1|2} + R_{2|3}e^{2i\phi}}{1 + R_{1|2}R_{2|3}e^{2i\phi}} \right|^2, \quad (3.3)$$

où les $R_{i|j}$ correspondent aux coefficients de Fresnel de l'interface $i - j$, tels que donnés par (2.28) et (2.26) pour les polarisation TE et TM, et où ϕ représente le déphasage de l'onde induit dans le film qui s'écrit, en notant θ l'angle d'incidence, sous la forme

$$\phi = k_{z,2}h \quad \text{avec} \quad k_{z,2}^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 (\varepsilon_2 - \varepsilon_1 \sin^2 \theta). \quad (3.4)$$

Considérons à présent le cas particulier d'un film métallique fin, typiquement de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur, pris entre deux

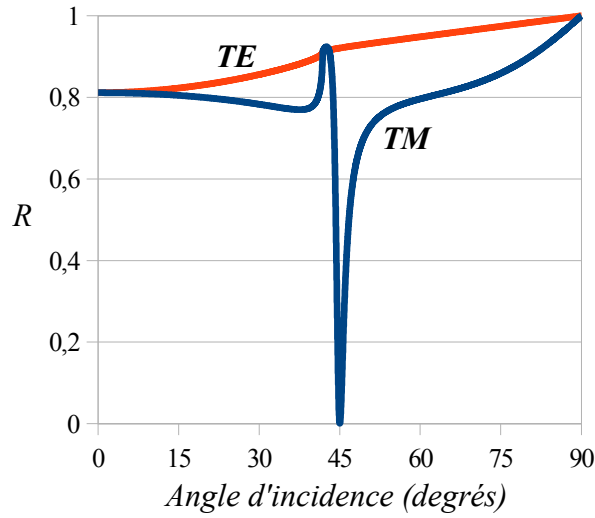


FIGURE 3.3 – Réflectivité à 633 nm sur un film d’or de 50 nm d’épaisseur, situé entre le verre ($\varepsilon_1 = 2.25$) et l’air ($\varepsilon_3 = 1$), pour une onde incidente polarisée TE (courbe orange) et TM (courbe bleue). La valeur de la constante diélectrique de l’or pour la longueur d’onde choisie, $\varepsilon_2 = -9.52 + i1.20$, est extrapolée à partir des données de [3].

milieux diélectrique tels que le milieu d’incidence possède l’indice optique le plus élevé des deux. Ce mode d’illumination correspond à la configuration de Kretschmann-Raether. L’allure de R en fonction de l’angle d’incidence est représentée, pour cette configuration, sur la figure 3.3. Pour la longueur d’onde incidente considérée, la partie réelle de la constante diélectrique est fortement négative et supérieure en valeur absolue à sa partie imaginaire ; le métal devrait donc être réfléchissant. Or on s’aperçoit que la polarisation de l’onde incidente modifie fortement l’allure de la courbe de réflectivité : tandis qu’en polarisation TE, la réflectivité reste bien voisine de l’unité, on observe une raie d’absorption très marquée en polarisation TM. Ceci signifie qu’un mode propre du film a été excité pour cette polarisation. La relation de dispersion du mode propre du film mince s’obtient d’après la condition d’existence d’un pôle de la réflectivité du film, soit

$$1 + \frac{\varepsilon_1 k_{z,2} - \varepsilon_2 k_{z,1}}{\varepsilon_1 k_{z,2} + \varepsilon_2 k_{z,1}} \frac{\varepsilon_2 k_{z,3} - \varepsilon_3 k_{z,2}}{\varepsilon_2 k_{z,3} + \varepsilon_3 k_{z,2}} e^{2i\phi} = 0 \quad (3.5)$$

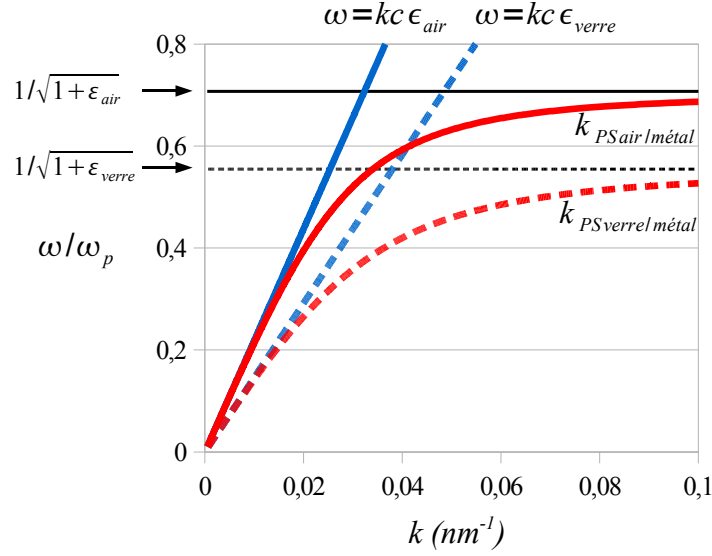


FIGURE 3.4 – Courbes de dispersion des modes de surface d’un film d’or de 50 nm d’épaisseur, situé entre le verre ($\epsilon_1 = 2.25$) et l’air ($\epsilon_3 = 1$), pour une onde incidente polarisée TM. La constante diélectrique du métal est calculée à partir du modèle de Drude sans perte (1.13).

avec les notations usuelles. En écrivant cette relation en fonction de la composante tangentielle du vecteur d’onde

$$k_x^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \epsilon_i - k_{z,i}^2 \quad (i = 1, 2, 3), \quad (3.6)$$

on peut tracer cette relation de dispersion dans l’espace (k_x, ω) , ce qui, comme le montre la figure 3.4, permet d’identifier deux branches correspondant aux plasmons de surface de chacune des interfaces du film métallique. Nous y avons également représenté les droite de lumière dans le substrat et dans le superstrat ($k = \sqrt{\epsilon_i}\omega/c$ où $i = 1, 3$). On remarque que dans cette configuration, une partie de la branche des plasmons de surface à l’interface superstrat-métal intersecte le domaine de définition des ondes radiatives dans le substrat. En d’autres termes, pour un choix adéquat de l’angle d’incidence θ fonction des constantes diélectriques des différents milieux, la composante tangentielle du vecteur d’onde des modes propagatifs dans le substrat peut égalier

celle du plasmon de surface à l'interface superstrat-métal. En revanche, la branche des plasmons de surface à l'interface substrat-métal étant toujours située sous les droites de lumière, ces modes ne peuvent être excités ni par une onde électromagnétique incidente depuis le substrat, ni *a fortiori* depuis le superstrat. Au total, deux conditions importantes sont à vérifier pour permettre le couplage entre un mode radiatif dans le substrat et l'onde de surface de l'interface superstrat-métal :

- l'indice du substrat, c'est-à-dire du milieu d'incidence, doit impérativement être supérieur à l'indice du superstrat (condition pour que la branche des plasmons de surface de l'interface superstrat-métal intersecte le cône de lumière du substrat) ;
- l'épaisseur du film métallique doit être inférieure à la longueur de décroissance des plasmons de surface de l'interface superstrat-or (condition pour pouvoir transférer de l'énergie entre les deux interfaces).

Lorsque ces conditions sont réunies, elles autorisent le couplage entre une onde radiative dans le substrat et un plasmon de surface à l'interface entre le superstrat et le métal. En permettant le couplage d'une lumière incidente aux plasmons de surface, ce dispositif peut donc être employé comme une technique d'*excitation*. Inversement, il peut également constituer une bonne technique de *détection*, car une fois les plasmons de surface lancés, cette configuration provoque aussi leur découplage radiatif. L'ouverture de ce canal de pertes radiatives, qui diminue certes la longueur de propagation des plasmons de surface comparé au cas d'un film métallique épais, est ainsi mise à profit pour l'observation des plasmons de surface en champ lointain : cette technique particulièrement puissante et élégante est à la base de la microscopie en champ de fuite.

Cas excitation La figure 3.5 montre un plasmon de surface excité à l'aide de cette technique. Contrairement aux techniques abordées plus loin, elle ne nécessite pas la réalisation de structures dévouées à jouer le rôle de source. Ceci a pour autre conséquence de ne pas localiser l'émission des plasmons de surface à un endroit précis de l'échantillon. Ce dernier point constitue à la fois un avantage et un inconvénient puisque d'une part on est en mesure de

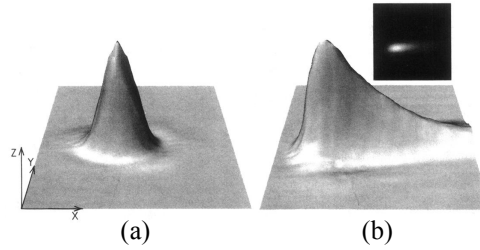


FIGURE 3.5 – Mesure du champ proche d'un prisme éclairé en configuration de Kretschmann-Raether par un faisceau laser à 633 nm en l'absence de métal (a) et en présence d'un film d'argent de 53 nm d'épaisseur (b). La décroissance exponentielle observée sur (b) est la signature de la propagation d'un plasmon de surface à partir de la région d'excitation. Reproduit d'après [18].

lancer des plasmons de surface dans n'importe quelle zone de l'échantillon, ce qui peut se révéler utile d'un point de vue pratique, mais d'autre part cela ne permet pas un grand degré de contrôle sur les propriétés optiques du faisceau plasmon, celles-ci étant entièrement fixées par les paramètres d'illumination. La condition de couplage impose ainsi la génération d'un faisceau unique dont la direction et la divergence sont fixés, tandis que l'absence de structure source localisée impose une section au faisceau plasmon limité par la diffraction de l'illumination, de l'ordre de la longueur d'onde d'excitation.

Une variante de cette technique consiste à illuminer le substrat sous incidence normale mais avec un objectif d'illumination de grande ouverture numérique, comme indiqué sur la figure 3.6. Une grande ouverture numérique fait bénéficier l'illumination d'une grande plage d'incidences. Certaines valeurs de cette distribution angulaire vont ce faisant permettre de vérifier (3.5), ceci pour un grand intervalle de longueurs d'onde incidente et rendant de fait ce dispositif particulièrement adapté pour des applications nécessitant la génération de plasmons de surface à différentes fréquences. Dernier avantage, une grande ouverture numérique ON fournit un spot d'illumination de taille réduite, ce qui permet de générer de fins faisceaux plasmon limités par la diffraction de l'illumination, typiquement en λ/ON .

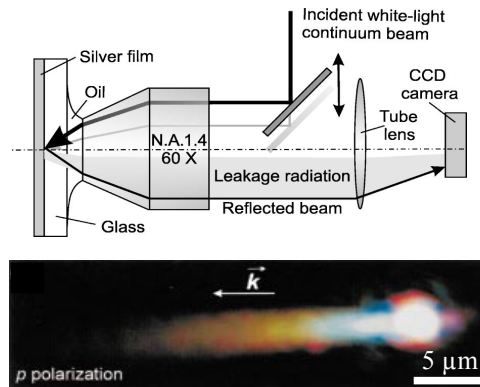


FIGURE 3.6 – (Haut) Dispositif d’excitation de plasmons de surface par utilisation d’un faisceau incident très focalisé. Le centrage hors-axe du faisceau incident assure une distribution d’intensité centrée sur l’angle de couplage au plasmon de surface et réduit le bruit dû à la lumière réfléchiée ou transmise par le film. (Bas) Distribution d’intensité des plasmons de surface excités par un continuum de lumière blanche. On observe bien l’effet de longueur de propagation fonction de la longueur d’onde. Reproduit d’après [19].

Cas détection : *microscopie en radiation de fuite* Lorsque les conditions évoquées plus haut sur les milieux sont réunies pour permettre le couplage entre l’onde de surface et l’onde propagative, le champ de fuite peut être collecté à l’aide d’un microscope optique classique et donne alors une image en champ lointain sur laquelle les intensités sont directement proportionnelles au champ proche de l’onde de surface [20, 21, 22]. La figure 3.6 montre une image obtenue par ce biais. Cette technique est aujourd’hui largement répandue en raison de sa puissance et de la relative facilité de sa mise en œuvre. Pour bien fonctionner, elle nécessite néanmoins un choix adéquat des paramètres de l’échantillon, notamment au niveau de l’épaisseur du film métallique. En évaluant le coefficient de réflexion du film métallique donné par (3.3) en polarisation TM, à la longueur d’onde d’excitation du plasmon de surface et pour les différents paramètres des milieux, il est possible de connaître dans quelles proportions le champ du plasmon de surface se va se répartir entre le mode de surface de l’interface superstrat-métal et le mode radiatif dans le substrat. Travailler avec un film plus mince privilégie le canal

radiatif, ce qui offre des images très lumineuses mais diminue la longueur de propagation des plasmons de surface, tandis qu'avec un film plus épais privilégie le canal plasmon de surface, ce qui offre des images plus sombres mais augmente la longueur de propagation des plasmons de surface. Dans la pratique, on choisit parfois une épaisseur telle que le champ se répartit de manière égale dans les deux canaux afin de faciliter les mesures quantitatives, mais il convient avant tout de choisir cette épaisseur suivant le type d'expérience que l'on souhaite conduire.

L'épaisseur du film joue également un rôle au niveau du bruit pour la détection. Le bruit peut provenir de la lumière réfléchiée par la surface métallique si la détection a lieu du même côté que l'illumination, c'est le cas quelle que soit l'épaisseur du film métallique, ou bien de la lumière transmise à travers le film métallique si la détection a lieu du côté opposé de l'échantillon par rapport à l'excitation, et c'est alors le cas pour un film métallique épais mais présentant des ouvertures ou pour un film mince sans ouverture car ce dernier n'est pas optiquement opaque. La microscopie par radiations de fuite est donc sujette au problème de bruit dû à l'illumination. Ceci peut par ailleurs provoquer une interférence de type Fano entre la contribution plasmon et la contribution directe ou réfléchiée de l'illumination, sur laquelle nous reviendrons plus en détail dans la partie expérimentale consacrée à ces mesures.

Enfin, soulignons que la résolution de ces mesures est limitée par la diffraction du système optique de collection. Elle ne permet donc pas d'espérer une résolution aussi bonne que les mesures en champ proche optique que nous verrons plus loin, en revanche elle donne accès à l'espace réciproque des k dans le plan Fourier du système de collection. Comme nous le verrons dans la partie expérimentale, l'intérêt est double : cet espace apporte des informations sur les composantes réelle et imaginaire de k_{PS} d'une part, et permet d'autre part, en mettant en place un dispositif de filtrage optique, d'éliminer toutes les composantes de bruit (illumination, franges d'interférence) telles que $k_{bruit} \neq k_{PS}$ [23].

Le descriptif du montage de microscopie en champ de fuite réalisé dans le cadre de cette thèse sera donné dans le chapitre 4. La mise en pratique de ce

montage permettra tout particulièrement d'obtenir les résultats expérimentaux présentés dans le chapitre 6. Enfin, on pourra trouver dans l'annexe C le détail de quelques grandeurs typiques liées à l'utilisation de ce dispositif (évolution de la longueur de propagation des plasmons de surface ou de leur coefficient de transmission vers l'onde radiative en fonction de l'épaisseur du film métallique, etc.) ainsi que des exemples de mesures complémentaires.

Réseaux périodiques

Une autre approche permettant de faire croître le vecteur d'onde tangentiel du champ excitatoire consiste à exploiter les phénomènes de diffraction. La solution la plus efficace utilise une surface métallique pourvue d'une structure périodique d'aspérités [24, 25, 26]. Prenons l'exemple d'un réseau métallique à maille carrée. Le vecteur d'onde tangentiel de la lumière diffractée $k_{diffraction}$ est déterminé par la périodicité (P_x, P_y) de la structure et s'écrit, d'après la loi des réseaux,

$$k_{diffraction} = \frac{\omega}{c} \sin(\theta) + i \frac{2\pi}{P_x} + j \frac{2\pi}{P_y} \quad (i, j \text{ entiers}). \quad (3.7)$$

Cette relation indique que le vecteur d'onde tangentiel de la lumière incidente peut être augmentée d'une quantité égale à un multiple entier des vecteurs de Bragg $(2\pi/P_i)_{i=x,y}$ du réseau. Un choix adéquat des périodes du réseau, de la longueur d'onde incidente et de l'angle d'incidence θ permet alors d'obtenir un ordre de diffraction tel que $k_{diffraction} = k_{PS}$ et de coupler la lumière diffractée dans ces conditions aux plasmons de surface [27]. Remarquons que cette égalité implique un ordre diffracté évanescent, ce qui se traduit dans la pratique par une période typiquement inférieure à la longueur d'onde incidente. Ces structures peuvent à la fois être utilisées en guise de sources ou de sondes, et un de leur avantage majeur est de permettre une illumination et une détection de part et d'autre d'un film métallique optiquement épais, ce qui, en dehors de la zone située directement au-dessus des ouvertures, réduit considérablement le bruit dû à l'illumination.

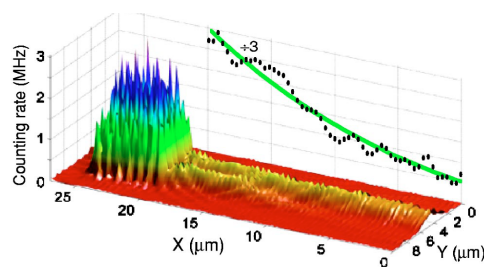


FIGURE 3.7 – Distribution d’intensité des plasmons de surface lancés par un réseau de trous sublongueur d’onde. La zone de forte intensité correspond à la structure. L’intensité des plasmons de surface qui se propagent à partir de la structure suit une décroissance exponentielle. La structure est un réseau carré de 6×7 trous de diamètre 200 nm et de période 840 nm. Elle est éclairée à 760 nm sous une incidence de 50° qui permet de coupler au mode $(-2,0)$ de la structure. Reproduit d’après [26].

Réseaux source La figure 3.7 montre le faisceau plasmon lancé par ce type de structure source. Les réseaux sources constituent une source localisée de plasmons de surface. De plus, la section transverse du faisceau plasmon, sous réserve d’une illumination adéquate, est désormais imposée par la taille de la structure et la limite de diffraction des plasmons de surface dans le plan de la surface métallique. Enfin, comme nous le verrons en détails dans le chapitre 5 consacré à leur étude et à leur optimisation, les réseaux source offrent un grand degré de contrôle sur les propriétés optiques des faisceaux plasmons émis, telles que le nombre ou la direction des faisceaux générés ou encore leur divergence. En revanche, leur fonctionnement est soumis à une condition de couplage qui impose dans la pratique de fabriquer ces structures avec des paramètres géométriques, en particulier la période, imposés par les conditions d’illumination (incidence, longueur d’onde) de l’expérience.

Réseaux sonde Une telle structure peut également être utilisé en guise de sonde pour provoquer le découplage radiatif d’un plasmon de surface rencontrant un réseau de période adaptée. La figure 3.8 montre le principe d’un dispositif source-sonde qui, comme nous le verrons dans le chapitre 7, peut être utilisé pour caractériser des composants pour plasmons de surface placés

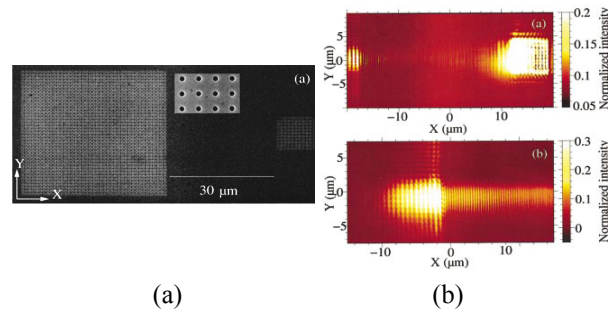


FIGURE 3.8 – (a) Image SEM d’un dispositif source-sonde. Le réseau source est le petit réseau à droite de l’image, le réseau sonde est le grand réseau à gauche. Les structures sont réalisées dans un film d’or de 160 nm d’épaisseur et consistent en des réseaux de trous de diamètre 220 nm arrangés en maille carrée de période 760 nm (b) Image du champ proche optique du faisceau émis par la source et se propageant jusqu’à la sonde (haut) et zoom sur le bord du réseau sonde (bas). Illumination à 815 nm. Reproduit d’après [25].

entre les structures source et sonde [25]. On constate que l’amortissement du signal plasmonique au sein de la sonde est rapide, ce qui équivaut à un temps de vie très court des plasmons de surface dans la structure [24]. Les réseaux sonde garantissent ainsi un découplage efficace des plasmons de surface dans le champ lointain, ce qui permet une mesure facile à l’aide d’un microscope optique classique, mais ne permet en revanche pas d’imager le faisceau plasmon sur toute sa propagation. Cette technique est donc à privilégier dans le cadre de l’étude de phénomènes pour lesquels le seul point d’impact du faisceau plasmon sur la sonde apporte des informations suffisantes. Elle est en revanche facile à mettre en œuvre, les conditions restrictives de la microscopie à champ de fuite sur les milieux (indices des milieux diélectriques et épaisseur du film métallique) se traduisant simplement par le choix adéquat de la période du réseau.

On ne saurait conclure sur le mécanisme de couplage à l’aide des réseaux de trous sans indiquer que ce phénomène est au coeur de mécanismes tels que l’absorption résonante, connue sous le nom d’anomalie de Wood [28], qui a été observée il y a plus d’un siècle sur les réseaux métalliques et pour laquelle le

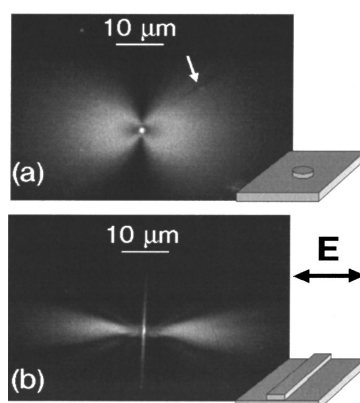


FIGURE 3.9 – Distribution d'intensité des plasmons de surface lancés par des défauts uniques tels qu'un plot (a) ou une marche (b) métalliques. Reproduit d'après [31].

rôle des plasmons de surface n'a été analysée que bien plus tard [29], ou que le phénomène de transmission exaltée de la lumière par des réseaux métalliques de trous sublongueur d'onde, dont la découverte en 1998 constitue un des éléments qui ont concouru au vif regain d'intérêt qu'a connu la discipline [30].

Défaut unique

Par extension, la diffraction peut avoir lieu sur tout défaut de planéité, sans condition de périodicité. Notons que la densité spectrale de puissance diffracté par un défaut local est directement liée au spectre de Fourier du profil de cet objet. Pour qu'un défaut local permette de coupler de la lumière aux plasmons de surface, il faut donc que son spectre de Fourier s'étende jusqu'au domaine des ondes évanescentes. Ceci correspond à des défauts de taille sublongueur d'onde, ou de manière plus générale à un défaut présentant des détails de dimensions sublongueur d'onde, ce qui dans la pratique est toujours le cas, et explique par exemple les pertes radiatives dues à la rugosité des surfaces métalliques. Un défaut unique peut donc constituer une source localisée de plasmons de surface, avec l'avantage de pouvoir être encore plus compact qu'un réseau source. La figure 3.9 montre deux exemples de faisceaux plasmons lancés par des défauts uniques. Nous expliquerons les

phénomènes observés dans la partie expérimentale relative au lancement des plasmons de surface (chapitres 5 et 6), mais nous pouvons dès à présent retenir qu'un défaut ponctuel génère un faisceau plasmon fortement divergent, et que le contrôle des propriétés optiques du faisceau nécessite en effet un système de plus grandes dimensions (au minimum un système 1D tel qu'une fente ou une marche pour contrôler la divergence du faisceau, voire 2D pour contrôler le nombre de faisceaux). En revanche, les défauts uniques ont l'avantage de coupler la lumière aux plasmons de surface quelle que soit la longueur d'onde incidente : même pour un défaut suffisamment grand pour que la densité spectrale de puissance diffusée par le défaut soit nulle dans le domaine des vecteurs d'onde évanescents, on peut par exemple penser que dans la pratique, les bords de ce défaut offriront tout de même le contenu fréquentiel adéquat. Le fonctionnement de ces défauts locaux revient donc à une question d'efficacité du dispositif qu'il conviendra d'aborder, même si dans la pratique, on peut se contenter en première approximation d'augmenter la puissance du laser d'excitation ! L'efficacité de couplage ou de découplage d'une structure périodique par rapport à un défaut local peut d'ores et déjà s'aborder en termes de spectres Fourier : une structure périodique permet de concentrer la puissance diffractée autour d'un vecteur d'onde donné, tandis qu'un défaut local présente un spectre large dont l'extension dans la zone des vecteurs d'onde correspondant aux ondes évanescentes est d'autant plus importante que les dimensions du défaut sont faibles. La question de l'efficacité du couplage d'un défaut unique en fonction de ses dimensions sera l'objet même du chapitre 6.

Microscopie en champ proche optique

Le microscope en champ proche optique repose sur l'utilisation d'une fibre optique étirée en son bout de manière à obtenir une pointe avec un apex de rayon de courbure sublongueur d'onde. Il est alors possible, en la plaçant à proximité immédiate de la surface métallique, d'utiliser les composantes évanescentes du champ proche émises ou collectées par cette pointe pour respectivement exciter ou détecter des plasmons de surface. Typiquement,

une distance à la surface d'une centaine de nanomètre permet à la pointe de se trouver dans la décroissance exponentielle du champ normale à la surface. La pointe peut éventuellement être recouverte d'une couche de métal percée d'un trou sublongueur d'onde, sa résolution étant alors limitée par le diamètre de l'ouverture et par la pénétration du champ dans le métal. Ces paramètres sont tels qu'en notant d le diamètre de l'ouverture et δ_m l'épaisseur optique de peau dans le métal, on a

$$d + 2\delta_m \leq \lambda_{PS} \leq \lambda.$$

Comme nous l'avions évoqué au chapitre 1, dans la partie relative aux propriétés optiques des métaux, on constate que la puissance de cette technique réside dans sa capacité à battre la limite de diffraction de la lumière et des plasmons de surface.

Utilisée en illumination, une pointe de fibre optique combine alors les avantages du dispositif de Kretschmann-Raether d'une part, de par la possibilité de positionner la pointe et ainsi de générer des plasmons de surface en tout point de l'échantillon, et du défaut local ponctuel d'autre part, de par l'excitation de plasmons de surface sur une aire non plus limitée à λ par la diffraction du faisceau laser incident mais par la diffraction des plasmons de surface [21, 22]. Pour cette raison, l'allure typique du faisceau plasmon observé présente des caractéristiques analogues au cas du défaut ponctuel, comme l'illustre la figure 3.10.

Inversement, le balayage de l'échantillon par une pointe de champ proche optique utilisée en collection permet d'obtenir une cartographie extrêmement précise de l'intensité du champ lié aux plasmons de surface [18]. Il est à noter que les différents matériaux constituant la pointe ont une influence vis-à-vis de l'efficacité de collection du dispositif, ainsi qu'au niveau des composantes du champ électromagnétique mesurées [32, 33]. Dans le présent contexte, on utilise habituellement deux types de pointes. Les pointes non métallisées offrent une grande efficacité de collection mais sont par conséquent sujettes à un bruit important dû à la lumière diffractée. Les pointes recouvertes d'une fine couche de chrome permettent de supprimer cette contribution de la lu-

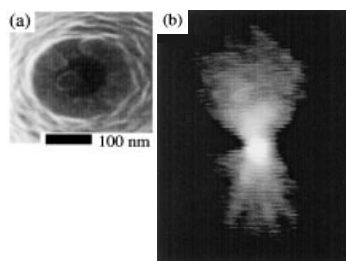


FIGURE 3.10 – (a) Pointe de fibre optique recouverte d'aluminium et percée d'un trou de diamètre 50–100 nm. (b) Distribution d'intensité des plasmons de surface lancés à 633 nm par la pointe sur un film d'argent. Reproduit d'après [21].

mière diffractée, la contribution plasmon introduite par ce type de matériau étant négligeable [34]. Les figures 3.5, 3.7 et 3.8 sont autant d'illustrations de mesures obtenues par cette technique. Dans la partie dédiée aux résultats expérimentaux de cette thèse, on trouvera nombre de mesures en champ proche optique dans les chapitres 5 et 7, le détail du montage utilisé figurant au préalable dans le chapitre 4.

Espèces fluorescentes

La figure 3.11 donne un exemple de l'utilisation d'espèces fluorescentes telles que des colorants organiques ou des ions luminescents qui, placées au voisinage immédiat de la surface, permettent l'excitation et la détection de plasmons de surface [35].

Utilisées en détection, ces espèces fluorescentes absorbent une partie du champ proche de l'onde de surface et leur fluorescence qui en découle en champ lointain peut être collectée par un microscope optique classique [31]. Lorsque la bande spectrale d'absorption de ces espèces fluorescentes correspond à la longueur d'onde des plasmons de surface, elles servent de sonde locale du champ proche et permettent ainsi d'obtenir une cartographie de l'intensité du champ lié aux plasmons de surface. La résolution du dispositif est limitée par la diffraction du système optique utilisé pour collecter le signal de fluorescence et par les transferts de fluorescence entre les molécules

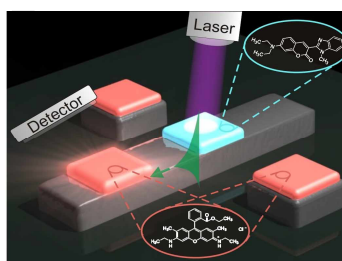


FIGURE 3.11 – Principe de fonctionnement d’une source à base de quantum dots (matériau bleu) et de détecteurs à base de molécules fluorescentes (matériaux roses). Reproduit d’après [35].

ou les particules utilisées. La figure 3.9 donne une illustration de mesures obtenues par cette technique. Il est à noter que si l’on ne veut pas changer les propriétés initiales de l’interface diélectrique–métal, il convient de réduire au maximum l’épaisseur de la couche contenant les espèces fluorescente afin de rendre cette perturbation de l’interface négligeable. L’intensité du signal de fluorescence est dans ce cas diminuée, et une couche de diélectrique est généralement insérée entre la surface du métal et la couche dopée en espèces fluorescentes afin d’éviter le phénomène de *quenching* non radiatif de la fluorescence. En revanche, le pic de fluorescence des espèces fluorescentes se situe généralement à une longueur d’onde supérieure à leur bande spectrale d’absorption, ce qui permet d’obtenir sur les mesures un bon rapport signal à bruit en utilisant côté détection les filtres adaptés pour couper la longueur d’onde d’excitation. On pourra trouver une mesure réalisée par ce biais à la fin du chapitre 6.

Utilisées en illumination, ces espèces fluorescentes peuvent absorber une onde incidente et la fraction de leur signal de fluorescence qui présente les caractéristiques de couplage adéquates peuvent alors exciter un plasmon de surface, jouant ainsi le rôle d’une source champ proche locale. On peut obtenir une excitation localisée si on réalise des structures locales d’espèces fluorescentes, comme le montre la figure 3.11, par exemple par des techniques de lithographie électronique. On peut également imaginer que ces espèces fluorescentes peuvent donner lieu à une excitation de plasmons de surface en

tout point de l'échantillon si celles-ci recouvrent uniformément l'échantillon, le faisceau plasmon étant dans ce cas limitée par la diffraction du faisceau de pompe.

Les colorants organiques rencontrent toutefois le problème de blanchissement qui se traduit par une diminution de leur fluorescence et donc de l'efficacité de ces dispositifs. Cette diminution peut être très rapide, raison pour laquelle leur remplacement par des particules telles que les quantum dots suscite actuellement l'intérêt [35]. Elles ouvrent également la voie à la génération de plasmons de surface uniques [36].

Interfaçage avec les circuits photoniques conventionnels

Différentes approches visent à permettre un interfaçage aisé des composants plasmoniques avec des circuits ou des composants optiques conventionnels. Une approche particulièrement attractive dans le cadre de circuits optoélectroniques repose sur la génération de plasmons de surface par effet tunnel au sein de jonctions métal–isolant–métal ou semiconducteur–isolant–métal. Ce processus manque pour l'instant d'efficacité, si bien que l'on préfère encore exciter les plasmons de surface par couplage avec la lumière. Dans le cadre de circuits tout optique, une approche consiste à placer au voisinage immédiat de la surface métallique une portion de fibre optique effilée, ce qui permet d'obtenir un couplage évanescent entre le signal véhiculé dans la fibre et le mode de surface [37]. Une seconde approche consiste à focaliser dans les bonnes proportions un faisceau laser sur la tranche d'une interface diélectrique–métal. Le principe d'un tel dispositif ne repose alors plus sur l'accord des composantes longitudinales de vecteurs d'onde, mais sur l'accord des distributions de champ au niveau de l'interface air–métal. Cette technique, connue sous le nom de *end-fire coupling*, est particulièrement adaptée pour lancer des plasmons de surface dans les guides d'onde qui seront abordés dans la suite. Point critique pour les applications, son efficacité est avérée sur une large bande de fréquences [38]. À la sortie du circuit, le signal plasmonique doit pouvoir se découpler en lumière propagative afin d'être utilisé ou analysé par un autre circuit optique ou par un détecteur. Actuellement, cette étape

s'obtient simplement par diffusion sur le bout du guide, et il reste à concevoir des structures de découplage performantes qui permettent le contrôle de la forme du faisceau de sortie. On peut également, suivant l'application visée, envisager que les plasmons de surface soient directement converti en signal électrique à l'aide d'un photodétecteur accolé aux structures métalliques [39].

3.2.2 Propagation

Le contrôle de la propagation des plasmons de surface peut s'obtenir à l'aide de structures locales analogues à des composants optiques classique, ou encore à l'aide de guides d'onde adaptés à la nature de l'onde de surface.

Optiques

Dans le plan de la surface métallique, le flux plasmon peut être dévié ou focalisé à l'aide de structures 2D analogues aux composants optiques traditionnels. Ces optiques peuvent être de nature réfractives ou diffractives.

Optiques réfractives Le principe des structures réfractives consiste à provoquer localement une variation de l'indice perçu par les plasmons de surface [40, 41]. On peut par exemple déposer localement sur une surface métallique exposée à l'air un polymère d'indice supérieur. Dans le plan de l'échantillon, on obtient alors un contraste d'indice à l'interface entre les milieux air-métal et diélectrique-métal. Celle-ci pourra alors donner lieu à des effets réfractifs suivant les lois classiques de l'optique géométrique : une interface droite faisant un angle d'incidence non nul avec le faisceau plasmon incident permettra de le dévier, tandis qu'une interface sphérique permettra suivant son orientation de le faire converger ou diverger. La figure 3.12 donne un premier exemple de ce type de structures, et le chapitre 7 de cette thèse est entièrement voué à leur étude. Il est également possible de doper des structures diélectriques avec des espèces fluorescentes, ce qui permet d'obtenir des structures opérant une conversion de fréquence du signal plasmonique [42] et ouvre une voie vers la réalisation de composants actifs.

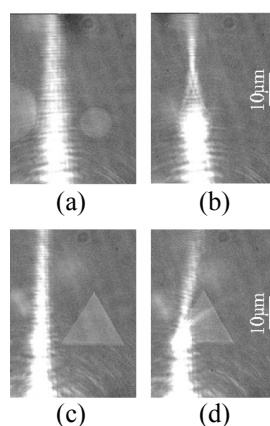


FIGURE 3.12 – Observation de la focalisation par une lentille sphérique (b) et de la réfraction par un prisme (d) d’un faisceau plasmon se propageant sur une surface d’or. Pour comparaison, les images (a) et (c) correspondent à la propagation libre du faisceau. L’illumination est faite à 800 nm, les structures diélectriques font 40 nm d’épaisseur, et les mesures sont réalisées par microscopie à radiation de fuite. Reproduit d’après [40].

Optiques diffractives Le principe de fonctionnement des optiques diffractives repose quant à lui sur la diffusion du faisceau plasmon par des défauts locaux. L’arrangement des défauts locaux est préalablement habilement déterminé de sorte que la structure donne lieu, dans une direction donnée, à une interférence constructive du champ diffusé par les défauts. Il est possible de réaliser des optiques diffractives remplissant la fonction d’une lentille ou d’un miroir sphérique [43, 44], ou encore de réaliser des miroirs de Bragg [45]. Leur coefficient de réflexion peut atteindre près de 100% par un choix adapté des paramètres de la structure [46], comme illustré sur la figure 3.13. Ce type d’optiques n’est pas directement abordé dans cette thèse, mais nous aurons en revanche l’occasion de voir dans le chapitre 5 que les réseaux source fonctionnent suivant le même principe.

La combinaison judicieuse de structures sources et d’optiques à plasmons de surface permet progressivement la mise en place de fonctionnalités diverses telles que le (dé)multiplexage de longueur d’onde [47], la conjugaison entre

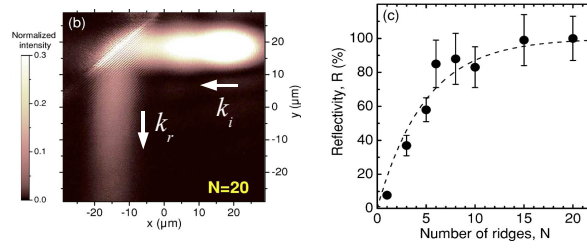


FIGURE 3.13 – Mesure champ proche du faisceau plasmon réfléchi par un miroir de Bragg, et évolution du facteur de réflexion de la structure en fonction du nombre de périodes de la structure. Reproduit d’après [46].

les foyers d’une cavité elliptique [48], l’interférométrie [45, 49] ou encore la microscopie à base de plasmons de surface [50].

Guides

Il existe différentes approches visant à créer des guides d’onde pour plasmons de surface [51]. L’une d’elles repose sur la réalisation de structures périodiques permettant le guidage de l’onde par l’ouverture d’une bande de fréquences interdites, de manière analogue aux structures présentes dans les cristaux photoniques [52]. On peut effectuer une rotation adiabatique de la maille de la structures périodique dans les sections courbes de ces guides afin d’en diminuer les pertes de guidage [53]. Une autre approche utilise des bandes de matériau diélectrique déposées sur la surface métallique, véritables analogues 2D des fibres optiques à saut d’indice [54, 55, 56, 57, 58]. La localisation du champ au niveau de l’interface permet de travailler avec des guides diélectriques de faible épaisseur, très inférieure à la valeur de coupure du mode guidé de la lumière. En revanche, le pouvoir de miniaturisation est moindre dans le plan de la surface puisque cette dimension rencontre la limite de coupure classique d’un guide diélectrique, eu égard toutefois à la longueur d’onde des plasmons de surface véhiculés. Il est possible de reproduire, notamment aux fréquences de télécommunications, les fonctionnalités usuelles de filtrage, de multiplexage ou de couplage de signaux [59, 60]. Le grand avantage de ces structures réside dans leur facilité de fabrication et d’implé-

mentation monolithique par le biais de techniques industrielles couramment utilisées.

Par ailleurs, les recherches se tournent actuellement vers géométries de guides d'onde relativement éloignées de l'interface classique entre deux milieux semi-infinis. Les modes plasmoniques correspondants présentent alors certaines particularités qui, exploitées avec un dimensionnement rigoureux de ces structures, permettent d'obtenir des guides augmentant considérablement le confinement et la longueur de propagation du signal.

Modes de bandes minces Lorsque l'épaisseur du film métalliques est de l'ordre de l'épaisseur de peau du métal, il y a recouvrement des modes des deux interfaces et apparition de deux nouveaux modes dont les composantes du champ électrique normales aux interfaces présentent une symétrie opposée [61, 62]. Le mode symétrique a une plus petite fraction de son champ dans le métal et se propage par conséquent plus loin. On parle alors de mode rapide ou de longue portée (*long-range surface plasmons*, LR-SPs) [63]. Le mode asymétrique est lui associé à un mode lent ou de courte portée (*short-range surface plasmons*, SR-SPs) [64]. La miniaturisation de ces structures connaît néanmoins une limite à la fois sur l'épaisseur et sur la largeur des bandes métalliques. Lorsque l'épaisseur de la bande métallique est très fine, les modes LR-SPs se retrouvent faiblement confinés, perdant ainsi l'avantage du confinement sublongueur d'onde des plasmons de surface. Les dimensions latérales de ces structures sont elles limitées par la diffraction et influent également sur la longueur de propagations des LR-SPs [34, 65]. Ces structures ont néanmoins été employées avec succès pour la réalisation de quelques composants actifs [66], pour créer diverses fonctionnalités de routage ou de filtrage avec des pertes de seulement 1 dB/cm aux fréquences des télécommunications [67, 63, 68, 69], ou encore pour ralentir de moitié des signaux pulsés dans l'optique d'une mise en tampon de paquets d'information [70].

Les structures complémentaires des films métalliques minces, constituées par une mince couche de diélectrique prise entre deux milieux métalliques semi-infinis, sont également à l'étude : les modes lents associés à ces structures représentent une autre piste de recherche possible dans des contextes

tels que le ralentissement de signaux pulsés ou le phénomène de réfraction négative [71, 72].

Enfin, un problème majeur des films minces réside dans les pertes radiatives significatives rencontrées lorsque les structures présentent des rayons de courbure importants. Pour palier à ce problème, une autre approche fait cette fois usage de nanofils métallique inclus dans un diélectrique, avec à la clé la perspective de structures capable de véhiculer à la fois signaux électriques et photoniques [73, 74].

Modes de sillons Une autre approche visant à surmonter la limite de diffraction consiste à utiliser les modes particuliers qui apparaissent entre les parois d'un fin sillon métallique en forme de V [75, 76, 77]. À la façon des modes des deux interfaces des films minces précédents, les modes des parois opposées du sillon se recouvrent, couplent, et forment deux modes de symétrie opposée. Toutefois le seul mode qui existe quelle que soit la largeur du sillon est le mode dont la composante transverse du champ électrique maintient son signe au dessus du sillon. Ce type de mode fait partie de la famille des *gap surface plasmons* (GSPs). L'indice effectif perçu par les GSP pour ce type de structure témoigne d'une augmentation spectaculaire à mesure que la largeur du sillon se réduit, tandis que la diminution de la longueur de propagation est elle moins drastique que dans le cas du mode de surface [78, 79]. Cette particularité remarquable offre à ces structures un gage de robustesse et un fort potentiel de miniaturisation, tout en garantissant la puissance du signal véhiculé. Différents types de circuits à base de GSP ont déjà été proposés, réalisés et testés, démontrant la possibilité de la réalisation de fonctionnalités de guidage, de filtrage ou de multiplexage du signal dans des volumes extrêmement faibles [80, 81, 82, 83, 84, 85, 86, 87]. Une des contreparties de ces structures très performantes réside dans la difficulté de leur fabrication : à ce sujet, l'annexe D détaillera le procédé développé au cours de cette thèse pour la fabrication de sillons sublongueurs d'onde en V.

Transition

Les éléments abordés dans ce chapitre permettent d’esquisser ce que pourraient être les grands traits de la définition académique de la discipline. La plasmonique est aux plasmons de surface ce que l’optique est aux photons : la science de leurs mécanismes d’émission, de propagation et de détection. Nous avons dans ce contexte introduit le principe de fonctionnement des dispositifs de couplage radiatif et de contrôle, qui constituent pour quelques uns une première ébauche des structures et des techniques que ce travail de thèse a visé à mettre en place, à analyser et à optimiser. La liste des dispositifs présentée ne se prétend pas être un état de l’art exhaustif (on pourra en complément se reporter aux références [88, 89, 90, 91]). En particulier, elle a été volontairement axée sur la réalisation de circuits photoniques en raison du contexte de cette thèse, et fait notamment l’impasse sur le phénomène de transmission exaltée par des ouvertures métalliques sublongueur d’onde. Appréhender celle-ci dans son ensemble dépasse largement le cadre de cette thèse. Nous indiquerons simplement qu’en marge des applications orientées vers les circuits photoniques, elle ouvre la voie vers toute une génération de composants *stand-alone* passifs ou actifs offrant un pouvoir de résolution ou de détection accru.

Que ce soit d’un point de vue théorique ou appliqué, cette partie témoigne du paradigme inhérent à la nature des plasmons de surface en termes de confinement et de propagation du signal. Dès lors, il apparaît clairement que les applications directement dérivées des méthodes classiques de la photonique engendreront un gain de performances notable mais plus modeste devant les applications qui tireront parti de propriétés remarquables de certains modes particuliers de l’onde de surface. Ceux-ci apparaissent pour des

configurations de structures inédites, ce qui laisse envisager que les meilleures découvertes proviendront d'horizons encore insoupçonnés à l'heure actuelle. Les applications qui en découleront dans de nombreux domaines connexes n'en seront que plus riches.

Deuxième partie

Résultats expérimentaux

Dans le contexte d'une technologie qui exploiterait les avantages d'une optique de surface, les structures métalliques et diélectriques locales se révéleraient être des candidates particulièrement intéressantes pour jouer le rôle de sources à plasmons de surface. De manière intrinsèque, elles constituent des composants tout intégrés et le lien direct qui existe entre elles et les résonances plasmons doit logiquement permettre de pouvoir agir sur le flux plasmonique. Reste alors à déterminer si ce contrôle peut s'exercer de manière précise et efficace. Il convient de se concentrer sur une étude plus fondamentale du phénomène d'*émission* et de *propagation* de l'onde de surface.

Les travaux expérimentaux présentés dans les deux premiers chapitres de cette partie ont pour but d'apporter une contribution à l'amélioration de notre compréhension du lancement de plasmons de surface par des structures métalliques locales. Nous nous concentrerons sur deux aspects particuliers : les origines des propriétés optiques des faisceaux plasmon de surface et de l'efficacité de leur génération.

Dans le **chapitre 5**, nous nous intéresserons au lancement de plasmons de surface par des microréseaux de trous sublongueur d'onde percés dans un film métallique épais. En comparant les images de champ proche optique enregistrées pour ce type de source à plasmons avec les résultats obtenus par un modèle basé sur le principe de Huygens-Fresnel, nous montrerons que les propriétés optiques telles que l'uniformité ou la divergence des faisceaux plasmons lancés localement peuvent être modifiées en ajustant la forme des microréseaux. Ces observations nous permettront de proposer un réseau source optimisé capable de fournir un faisceau plasmon étroit, collimaté et uniforme.

Dans le **chapitre 6**, nous étudierons l'efficacité de couplage de la lumière aux plasmons de surface pour des fentes uniques de largeur sublongueur d'onde gravées dans un film mince d'or. L'étude sera réalisée en analysant les images optiques obtenue en champ lointain dans le plan Fourier d'un microscope à champ de fuite. Un modèle simple basé sur une interférence de type Fano nous permettra de donner une interprétation physique claire de l'efficacité de

génération plasmonique. Celle-ci mettra notamment en évidence une valeur optimale séparant deux régimes dépendant de la taille du système source.

Une fois les mécanismes de génération des plasmons de surface mieux cernés, la prochaine étape consiste logiquement à exercer un contrôle sur l'onde de surface au cours de sa propagation. L'approche que nous avons choisie d'étudier consiste en la réalisation de micro-optiques pour plasmons de surface, analogues 2D de composants optiques classiques tels qu'une lame à faces parallèles permettant de dévier le flux plasmonique ou une lentille convergente capable de le focaliser. Ce type de composants fait appel au phénomène de réfraction optique qui s'observe au niveau d'un dioptre entre deux milieux d'indices optiques différents.

Dans le **chapitre 7**, nous allons ainsi voir dans quelles mesures il est possible de donner lieu à une variation de l'indice perçu par les plasmons de surface, en travaillant dans un premier temps à modifier localement la constante diélectrique du métal, puis celle du milieu diélectrique. Nous constaterons que c'est la seconde méthode qui s'avère efficace, et nous serons alors à même de réaliser des composants réfractifs pour plasmons de surface dont le comportement répond aux lois classiques de l'optique. Enfin, nous présenteront une approche qui propose de tirer parti des capacités de nanofabrication actuelles pour contrôler à une échelle encore plus locale la variation d'indice perçu par l'onde de surface, dans le but de déboucher sur la définition d'optiques à gradient d'indice.

Pour terminer, les annexes détaillent les aspects techniques des méthodes expérimentales de fabrication et de caractérisation utilisées ou développées dans le cadre de cette thèse. L'**annexe A** s'intéresse à l'optimisation de la qualité des films métalliques, tant au niveau de leur rugosité de surface que de l'homogénéité de la couche métallique. L'**annexe B** compare les deux approches testées pour la réalisation des optiques diélectriques pour plasmons de surface et détaille ensuite celle qui fut retenue, à savoir la technique de lithographie électronique. L'**annexe C** revient sur la technique de microscopie en champ de fuite mise en place durant la thèse et donne notamment quelques

observations expérimentales supplémentaires. Enfin, l'**annexe D** entre dans le détail du processus de fabrication de structures par lithographie à faisceaux d'ions ou d'électrons, et donne ensuite le principe du programme de pilotage des faisceaux que nous avons été amenés à développer durant la thèse pour la fabrication des structures dont la géométrie sortait des critères habituels. Ce dernier point est illustré, dans la même annexe, par l'exposé du principe de fabrication d'une structure particulièrement complexe à réaliser, mais extrêmement performante à l'utilisation : les sillons en V.

Avant tout cela, le **chapitre 4** propose, en guise d'entrée en matière, un aperçu des différentes techniques de fabrication et de caractérisation des structures mises en œuvre pour obtenir les résultats présentés dans la suite.

Chapitre 4

Protocole expérimental

4.1 Fabrication des échantillons

Le processus de fabrication des échantillons analysés au courant de cette thèse démarre par la réalisation de films métalliques sur substrats de verre. On veillera à produire une couche métallique présentant d'une part une bonne homogénéité, celle-ci conditionnant par la suite la qualité des structures métalliques réalisées, et d'autre part une faible rugosité de surface, ceci afin de minimiser les pertes radiatives et donc de maximiser la distance de propagation des plasmons de surface. Ces deux facteurs reposent à la fois sur la propreté des substrats de verre utilisés et sur la qualité de la production des couches métalliques. Dans un second temps, la fabrication des structures métalliques ou diélectrique doit quant à elle se faire dans des conditions qui permettent l'obtention de structures bien définies, ce qui nécessite une utilisation avisée des différents outils de nanofabrication, tout en veillant scrupuleusement à éviter toute détérioration ou contamination de l'échantillon.

4.1.1 Substrats

Le nettoyage rigoureux des substrats constitue la première étape inévitable du processus de production d'échantillons de grande qualité. Différentes méthodes sont utilisées en fonction de la nature du substrat à nettoyer. Le

choix du substrat peut lui-même dépendre de l'expérience à réaliser, celle-ci pouvant par exemple imposer une épaisseur limite au substrat ou encore l'utilisation d'un matériau précis. Les structures sont dans la majorité des cas réalisées sur des substrats de verre en BK7 (verre de type crown, peu dispersif) tels que des lamelles porte-objet de microscope dont l'épaisseur est de l'ordre de 2 mm. Dans le cas où l'expérience nécessite de focaliser sur l'échantillon à travers le substrat avec un objectif dont la distance de travail est inférieure à cette épaisseur, comme pour notre montage de microscopie à champ de fuite par exemple, on optera pour des lamelles couvre-objet dont l'épaisseur est cette fois de l'ordre de 0,2 mm. La procédure de nettoyage associée à ce type de substrats consiste en trois bains à ultrasons, successivement dans une solution commerciale dégraissante (Hellmannex II), de l'eau ultrapure puis de l'éthanol absolu. Les substrats propres peuvent être conservés dans le dernier bain d'alcool. Au moment de leur utilisation, ils sont rincés à l'eau ultrapure et séchés à l'étuve. Certains substrats de verre sont recouverts d'une fine couche d'oxyde d'indium-étain (ITO¹), par exemple lorsque l'application visée nécessite un substrat à la fois conducteur et transparent. Il est aussi parfois nécessaire de nettoyer un échantillon sur lequel on a déjà réalisé un dépôt métallique voire des structures. Ces échantillons demandent un nettoyage plus doux dans la mesure où une sonication prolongée va sérieusement endommager les couches d'ITO ou de métal. On fait alors usage de papiers optiques imbibés d'un solvant particulièrement dégraissant et volatil que l'on fait glisser le long de la surface à nettoyer, toujours dans le même sens, afin de repousser poussières et impuretés vers un bord de l'échantillon. Après chaque passage, on observe l'évaporation progressive du solvant le long de la surface jusqu'à ce qu'elle se fasse de manière bien uniforme, témoignant de la propreté de la surface.

4.1.2 Dépôts métalliques

Il existe différentes techniques de métallisation possibles. Le laboratoire est en l'occurrence doté d'équipements pour réaliser des évaporations ther-

1. Indium Tin Oxyde

miques ainsi que des pulvérisations cathodiques. Chaque type d'équipement possède son propre espace de paramètres agissant sur les conditions de déposition et qu'il est nécessaire de tester jusqu'à identifier les régimes de fonctionnement capables de fournir des dépôts de qualité tant au niveau de la rugosité de surface que de l'homogénéité de la couche métallique.

Évaporateur thermique Le principe de l'évaporation thermique repose sur la condensation sur le substrat d'une vapeur métallique issue d'une source liquide, le métal étant porté à haute température dans un creuset parcouru par un courant électrique.

Pulvérisation cathodique magnétron La technique de pulvérisation cathodique repose sur la condensation d'une vapeur métallique issue d'une source solide. Le système est constitué d'une chambre à vide équipée d'une cathode portée à une tension négative de quelques kilovolts et à laquelle est attachée la source métallique solide, et d'une anode faisant office de porte-substrat. La différence de potentiel créée entre les deux électrodes, disposées parallèlement à quelques centimètres de distance, génère un plasma en ionisant un gaz introduit sous faible pression dans la chambre. Les espèces ioniques du plasma sont fortement accélérées vers la cathode sous l'effet du champ électrique et entrent en collision avec la source métallique, que l'on désigne usuellement sous le terme de *cible*. Les collisions provoquent entre autres l'éjection d'atomes neutres de la cible qui diffusent dans la chambre et dont une partie se condense sur le substrat. Le processus est autoentretenu grâce aux électrons secondaires émis par la cible qui se retrouvent à leur tour attirés par l'anode et entretiennent la formation du plasma par des chocs inélastiques avec les atomes d'argon. Un système magnétron voit de plus sa cathode équipée de deux aimants concentriques de polarités inverses. La superposition des champs magnétique et électrique confinent les électrons secondaires sur des trajectoires hélicoïdales à proximité de la cible, ce qui a pour effet d'augmenter la probabilité d'ionisation et donc la densité ionique du plasma dans cette zone. L'efficacité de la déposition est ainsi améliorée par l'effet magnétron, ce qui permet en particulier de travailler à des pressions

plus faibles.

On pourra trouver dans l'annexe A les mesures de la rugosité de surface des dépôts métalliques obtenues ainsi qu'une comparaison des performances de ces deux techniques de métallisation. Pour obtenir de bons résultats, il convient naturellement de choisir des paramètres bien précis de déposition (vitesse de déposition, réglages propres à chaque appareil, etc.). Leur optimisation a fait l'objet de nombreux essais dont on pourra également trouver un bref aperçu dans cette même annexe. Enfin, celle-ci aborde également la notion d'homogénéité de la couche métallique déposée : lorsque le métal est destiné à être structuré, cet aspect est en effet aussi critique pour l'expérience que la rugosité de surface obtenue. On retiendra plus particulièrement de toutes ces observations que lorsque les bonnes conditions sont réunies, il est possible d'obtenir des films métalliques dont la rugosité moyenne est inférieure au nanomètre, ce qui permet dans la suite d'espérer des pertes radiatives minimales lors de la propagation de l'onde de surface, et dont l'homogénéité se prête à la réalisation de structures métalliques bien définies.

4.1.3 Structures métalliques

Les différentes structures métalliques réalisées dans le cadre de cette thèse (réseaux de trous du chapitre 5, fentes du chapitre 6 et optiques métalliques du chapitre 7) ont été gravées dans des films d'or par lithographie directe à faisceau d'ions focalisés, technique usuellement désignée par son acronyme anglais FIB². Le FIB est une machine-outil capable de procéder aussi bien à l'ablation de matière qu'au dépôt de couches conductrices ou isolantes : elle a d'ailleurs été initialement développée pour répondre aux besoins de l'industrie micro-électronique en matière de caractérisation (préparations de coupes pour microscopie électronique à transmission) et de réparation de masques.

Un FIB possède une source constituée d'un réservoir d'ions métalliques liquides qui mouille une fine aiguille de tungstène. Une tension d'extraction

2. Focused Ion Beam

permet d'arracher les ions métalliques formant un cône au bout de l'aiguille où le champ est largement amplifié par effet de pointe, tandis qu'une tension de suppression permet d'ajuster précisément le courant ionique extrait de la source. Le gallium est le métal le plus couramment utilisé car il possède toutes les propriétés requises pour ce type d'application : ses ions sont lourds et énergétiques, il est liquide à des températures quasi-ambiantes, possède une pression de vapeur faible et une tension de surface élevée, et enfin produit des sources dont le temps de vie est relativement long. Une fois extraits, les ions sont accélérés et guidés par une série de lentilles électrostatiques et d'octopôles. En variant les tensions appliquées à ces composants, il est possible de contrôler l'allure du faisceau (plan de focalisation, astigmatisme) mais aussi ses déplacements, ce qui permet de lui imposer un parcours prédéfini correspondant au motif de gravure désiré. La colonne ionique, qui renferme tous les composants précédemment décrits, débouche sur une chambre sous vide où se trouve l'échantillon à structurer, monté sur une platine de translation et de rotation multiaxes. L'impact des ions massifs fortement accélérés et focalisés entraîne une cascade de collisions au niveau de la surface de l'échantillon, à l'issue desquelles sont éjectés des ions et des atomes neutres, provoquant l'ablation de matière, mais aussi des électrons qui peuvent être récoltés par différents détecteurs dans un but d'analyse ou d'imagerie. En balayant l'échantillon, il est possible de se servir du FIB comme d'un microscope, mais cette utilisation provoque d'une part la contamination de l'échantillon par implantation d'ions et augmente d'autre part la rugosité de l'échantillon par ablation.

L'appareil dont nous disposons est une station DUAL BEAM FIB/SEM STRATA 235 fabriquée par FEI (figure 4.1). La colonne ionique accélère les ions gallium à des énergies de 30 keV et délivre un courant ionique total de $2.2 \mu\text{A}$. Une barrette composée d'ouvertures de différents diamètres est insérée sur le trajet du faisceau et fait office de diaphragme à valeurs discrètes qui permet à l'utilisateur de choisir l'intensité et la taille du faisceau atteignant l'échantillon. La table 4.1 donne quelques valeurs de ces paramètres pour les diaphragmes les plus couramment utilisés pour la fabrication de nanostructures. Le choix du diaphragme est un paramètre important de la gravure

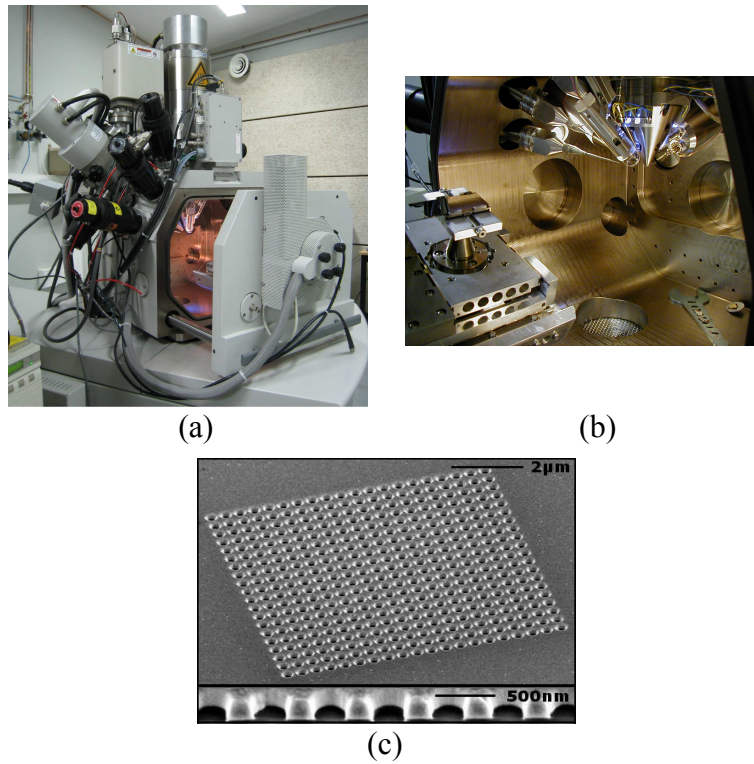


FIGURE 4.1 – (a) FEI dual beam Strata 235. (b) Vue de l'intérieur de la chambre. (c) Image MEB d'un réseau périodiques de trous sublongueur d'onde et d'une coupe pratiqué dans celui-ci, réalisés par lithographie à faisceau d'ions focalisé.

Courant ionique (pA)	Taille du faisceau (nm)
1	6
10	10
30	10
50	15
100	20
300	25
500	30
1000	35

Données techniques FEI

TABLE 4.1 – Courant ionique atteignant l'échantillon et taille du faisceau pour les diaphragmes les plus couramment utilisés pour la fabrication des nanostructures.

car il est bien sûr sujet à un compromis entre la vitesse et la résolution de l'ablation. Comme son nom l'indique, l'appareil est également équipé d'un microscope électronique à balayage classique (MEB). Son principe de fonctionnement est analogue à celui du FIB : l'organe principal est sa colonne accélératrice qui produit, à partir d'une source métallique composée d'une pointe de tungstène soumise à un champ électrique intense et par le biais de lentilles magnétiques, un faisceau d'électrons de quelques nanomètres de diamètre. Celui-ci permet de sonder localement l'objet que l'on désire examiner. Le balayage génère entre autres des électrons rétrodiffusés, des électrons secondaires et des rayons X qui fournissent des informations de topologie et de structure du matériau. Contrairement au cas du FIB, la méthode est ici non destructive car les atomes ne sont pas notablement modifiés durant le processus (lors de balayages prolongés, on pourra remarquer une légère contamination due à la déposition d'impuretés présentes dans la chambre par le faisceau d'électrons). On préférera donc l'utilisation du MEB pour les besoins d'imagerie. La table 4.2 donne une idée de la résolution du faisceau d'électrons : en imagerie, on travaille généralement à faible tension d'accélération et avec des spots petits, ce qui offre une résolution de l'ordre du nanomètre.

Bien que déjà remarquables prises séparément, les multiples fonctionnalités du *dual beam* donnent la pleine mesure de leur potentiel lorsqu'elles sont combinées entre elles : immédiatement après la gravure, on peut ainsi obtenir à des grossissements pouvant atteindre 200 kX des images de nos structures ainsi que de coupes pratiquées dans celles-ci, ce qui se révèle particulièrement utile pendant la phase d'ajustement des paramètres de gravure ionique (mise en forme du faisceau, choix du courant ionique, de la durée de gravure, etc.).

4.1.4 Couches minces polymères

La réalisation d'une couche mince de polymère recouvrant la surface métallique peut avoir de multiples applications. Elle constitue tout d'abord l'étape préalable au processus de fabrication de structures diélectriques par lithographie électronique qui sera abordée dans la suite. Dans un tout autre contexte, recouvrir la surface métallique d'un échantillon initialement ex-

posée à l'air par un polymère d'indice optique proche de celui du substrat permet d'obtenir deux interfaces similaires de part et d'autre de la couche métallique : les résonances associées aux deux interfaces sont alors dégénérées, ce qui peut simplifier l'analyse ou améliorer les performances d'une nanostructure. Enfin, la couche de polymère peut être dopée par une espèce fluorescente : le polymère fait alors office de matrice hôte en encapsulant les espèces fluorescentes. Cette méthode permet à la fois de séparer les espèces fluorescentes, limitant ainsi la formation d'agrégats aux propriétés susceptibles d'être très différentes des espèces isolées, et de former des couches très uniformes sur l'échantillon, contrairement à la déposition directe de l'espèce fluorescente en phase solide par adsorption sur le métal d'une solution liquide. Dans le cadre de cette thèse, cette approche a été utilisée à des fins de détection et d'imagerie des plasmons de surface : ceux-ci induisent un signal de fluorescence au sein du film polymère dopé qui permet d'obtenir, dans le champ lointain, une signature de la distribution d'intensité de l'onde de surface, comme il sera mis en pratique à la fin du chapitre 6.

Le matériau polymère que nous avons utilisé est le polyméthacrylate de méthyle (PMMA³), connu sous son premier nom commercial de PLEXYGLAS. Dans un premier temps, on met le PMMA en solution dans un des nombreux solvants de ce polymère. On peut éventuellement doper le polymère en ajoutant une espèce fluorescente à la solution, en s'assurant alors d'utiliser un solvant commun aux deux. Une fois la solution prête, la déposition du polymère en couches minces a été effectuée selon la technique d'enduction centrifuge, plus connue sous la dénomination anglaise de *spin coating* : le substrat est maintenu sur une tournette et recouvert de la solution puis accéléré jusqu'à une vitesse de rotation élevée. La solution s'écoule alors vers l'extérieur sous l'effet des forces centrifuges et forme après évaporation du solvant un film uniforme sur le substrat. L'épaisseur du film dépend essentiellement de deux paramètres : la concentration en polymère de la solution qui détermine sa viscosité, et les paramètres de rotation (accélération, vitesse) de la tournette. Pour en avoir un aperçu concret, on pourra consulter l'annexe B.2 qui donne la calibration précise de l'épaisseur des films de PMMA réalisés.

3. poly(methylmethacrylate)

4.1.5 Structures diélectriques

Nous avons testé deux approches différentes pour réaliser les structures diélectriques de type optiques pour plasmons (lentille, prisme et lame à faces parallèles étudiées dans le chapitre 7).

Déposition SiO_x assistée par FIB Pour effectuer une déposition assistée par FIB, on amène le matériau sous forme gazeuse à proximité de l'échantillon par le biais d'un injecteur. La réaction de ce nuage avec les ions est à l'origine du dépôt. Nous avons équipé un des injecteurs d'un réservoir de gaz de tétraéthyl orthosilicate (TEOS, $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$). Les liaisons de cette molécule sont brisées par le faisceau d'ions et il se forme sur la surface de l'échantillon un dépôt composé principalement de SiO_x , d'indice optique comparable à celui du verre. L'annexe B.1 donne le détail des essais pratiqués et des résultats obtenus avec cette technique.

Lithographie à faisceau d'électrons La lithographie à faisceau d'électrons repose sur l'irradiation d'une résine à laquelle succède une étape de développement. L'exposition de la résine au faisceau d'électron provoque la rupture des liaisons carbonées et la scission des chaînes initiales de polymère en fragments de plus faible masse moléculaire, plus susceptibles d'être dissous dans un solvant. Il existe plusieurs types de résines spécialement conçues pour cet usage. Nous avons utilisé le PMMA évoqué précédemment, qui incarne la résine positive standard de la lithographie à faisceau d'électrons : parmi les différentes résines disponibles, elle offre une des meilleures résolutions possibles en affichant une valeur intrinsèque de moins de 10 nm. En revanche, irradié à une dose à peu près dix fois supérieure à la dose normale, le PMMA réticule et se comporte alors comme une résine négative avec une résolution intrinsèque de 50 nm. D'autres facteurs entrent naturellement en ligne de compte dans la résolution finale des structures, tels que les conditions d'irradiation (taille du faisceau d'électrons, exposition aux électrons secondaires qui est fonction du substrat et de la durée de l'irradiation, etc.). La table 4.2 montre quelques valeurs de courant et de taille du faisceau électronique de notre *dual beam* en fonction de la tension d'accélération et du spot choisi. La

Spot #	Courant			Taille du faisceau (nm)		
	5 kV	20 kV	30 kV	5 kV	20 kV	30 kV
1	5 pA	13 pA	21 pA	0.5	0.4	0.4
2	25 pA	40 pA	44 pA	1.0	0.7	0.6
3	98 pA	148 pA	154 pA	2.1	1.3	1.0
4	398 pA	617 pA	625 pA	4.1	2.6	2.1
5	1.57 nA	2.39 nA	2.41 nA	8.2	5.0	4.1
6	6.27 nA	9.45 nA	9.54 nA	16.4	10.0	8.2
7	24.3 nA	36.5 nA	36.9 nA	32.3	19.6	16.0

Données techniques FEI

TABLE 4.2 – Courant et taille du faisceau d'électrons pour différentes tensions d'accélération

tension d'accélération détermine la profondeur de pénétration des électrons dans l'échantillon : 5 kV correspond à la tension utilisée en imagerie tandis que les tensions de 20 kV à 30 kV correspondent aux valeurs utilisées pour irradier la résine sur toute son épaisseur. De façon analogue à la lithographie à faisceau d'ions focalisé, ces valeurs montrent qu'il convient de trouver un compromis entre durée et résolution de l'irradiation. Ce dernier point est illustré plus en détails dans l'annexe B.2.

Outre les optiques diélectriques réalisées par cette méthode, la lithographie à faisceau d'électrons d'un film polymère connaît de nombreuses applications telles que la réalisation de masques utilisés pour la fabrication de structures par procédés de *lift-off* ou d'attaque chimique.

4.2 Caractérisation des échantillons

Il existe différentes méthodes éprouvées de caractérisation des échantillons qui permettent d'obtenir des informations sur les résonances plasmon de surface de manière indirecte, par exemple en étudiant en champ lointain le spectre de transmission d'une structure métallique. Dans le contexte de cette thèse qui vise à étudier et contrôler le flux plasmonique, il a cette fois fallu faire appel à des méthodes de caractérisation directes permettant de dresser la cartographie du champ proche optique de la surface métallique. Ce sont donc

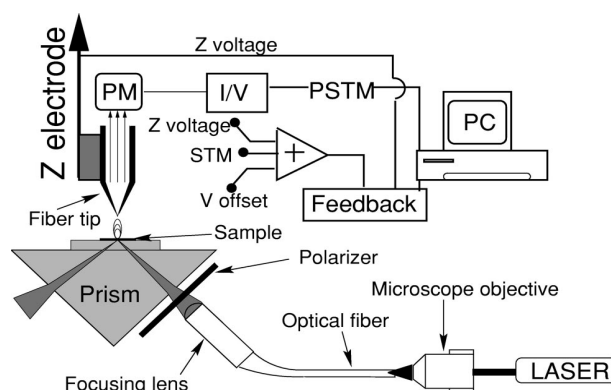


FIGURE 4.2 – Vue schématique du dispositif expérimental PSTM utilisé. PM, photomultiplicateur ; I/V amplificateur courant/tension (voir détails dans le texte). Reproduit d'après [34].

des techniques de mesures en champ proche optique et en radiation de fuite qui ont été utilisées. Leur principe a été introduit dans le chapitre 3, et nous donnerons ici la description technique des deux dispositifs expérimentaux utilisés.

4.2.1 Mesures en champ proche optique

Les mesures en champ proche optique présentées dans cette thèse ont été réalisées au Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne par le Prof. Jean-Claude Weeber, membre de l'équipe Optique Submicronique et Nanocapteurs dirigé par le Prof. Alain Dereux. La qualité des mesures en champ proche optique effectuées à l'occasion de l'étude des réseaux sources et des optiques à plasmons de surface, respectivement présentés dans les chapitres 5 et 7, est objectivement remarquable : elle en ferait oublier l'extrême rigueur que demande pourtant cette discipline à tous les niveaux, de la conception et de l'utilisation des instruments de mesure jusqu'à l'interprétation des résultats obtenus, ce qui témoigne de la grande expertise de l'équipe, entre autres en matière de microscopie en champ proche optique, dont nous avons pu bénéficier dans le cadre de ces travaux.

Les mesures ont été réalisées sur un microscope à force atomique DIGITAL

INSTRUMENT D3000 qui a été modifié en une configuration PSTM⁴ schématisée sur la figure 4.2. Le levier AFM⁵ classique peut ainsi être remplacé par une pointe obtenue par étirage mécanique de l'extrémité d'une fibre optique monomode. Le rayon de courbure des pointes obtenues par ce procédé vaut typiquement 20 nm. L'autre extrémité de la fibre est elle reliée à un tube photomultiplicateur couplé à un amplificateur courant/tension qui permettent de convertir et d'amplifier le signal optique détecté par la pointe. Lorsque la mesure est effectuée sur un échantillon diffusant, comme c'est le cas au niveau des structures métalliques, la pointe est recouverte d'une quinzaine de nanomètres de chrome afin d'éviter une trop grande contribution de la lumière radiative au signal collecté par la pointe. L'utilisation de chrome, qui ne présente pas de résonance plasmon de surface aux fréquences du visible, permet de collecter un signal qui est du même type que celui mesuré par une pointe purement diélectrique, en l'occurrence un signal proportionnel à l'intensité du champ proche électrique [32, 33, 34]. Par ailleurs, la métallisation de la pointe permet d'utiliser celle-ci comme une sonde STM sur les surfaces conductrices : le courant tunnel détecté par la pointe est ainsi mis à profit lors de la phase d'approche de la pointe, réalisée par le biais d'un tube piézoélectrique. Une boucle rétroactive entre le signal STM mesuré par la pointe et le déplacement en z du tube piézoélectrique permet de contrôler la distance entre la pointe et l'échantillon avec une précision supérieure à 10 nm. Cette procédure permet d'approcher de manière très précise la pointe à proximité immédiate de la surface, après quoi le gain de l'asservissement électronique est fortement diminué dans le but de bloquer en z le tube piézoélectrique et de forcer la sonde à se déplacer à hauteur constante et connue par rapport à la surface. Lorsque la pointe est ainsi balayée à hauteur constante à proximité de la surface, typiquement de l'ordre de la centaine de nanomètres, le signal collecté par la sonde fournit la distribution spatiale de l'intensité du champ proche optique dans un plan parallèle à la surface de l'échantillon, côté superstrat. Enfin, l'illumination est réalisée par le substrat à l'aide d'un laser Ti-Sapphire accordable, focalisé dans le plan de

4. Photon Scanning Tunneling Microscope

5. Atomic Force Microscope

l'échantillon de manière à fournir un spot d'illumination de taille finie. Ceci permet l'excitation localisée des plasmons de surface au niveau de la structure source utilisée exclusivement. Soulignons à ce sujet que le couplage de la lumière aux plasmons de surface, dans le cadre des expériences présentées dans la suite, s'obtient bien par diffraction sur des réseaux de période sublongueur d'onde ou des défauts uniques pratiqués dans des films métalliques optiquement épais, et non par réflexion totale atténuée via un dispositif de type Kretschmann-Raether comme c'est souvent le cas en configuration PSTM : cette étude a par conséquent demandé de modifier le dispositif d'illumination de l'échantillon, celui-ci étant initialement déposé sur un prisme éclairé en réflexion totale interne, de façon à permettre l'illumination en incidence normale également. Enfin, un polariseur permet de sélectionner la direction de polarisation, tandis que des platines de translations et de rotation permettent de régler respectivement la position du spot et l'angle d'incidence de l'illumination.

4.2.2 Microscopie à champ de fuite

Le montage optique de microscopie à champ de fuite réalisé dans le cadre de cette thèse avec Aurélien Drezet est représenté sur la figure 4.3. Différentes sources sont disponibles : un laser HeNe, principalement utilisé pour l'alignement du banc optique, une source blanche équipée d'un collimateur, principalement utilisée pour localiser la région d'intérêt sur l'échantillon, et enfin une diode laser à 785 nm injectée dans une fibre optique monomode afin de filtrer le faisceau, utilisée pour les mesures. Un système de périscope à base de miroirs escamotables (m_1 , m_2 et m_3) permet à tout moment de passer d'une source à l'autre. Un système afocal simple ($L_{dl} - L_{tube\ 1}$) sert d'agrandisseur de faisceau laser et permet d'avoir une illumination limitée par la diffraction de l'objectif de focalisation. On dispose pour la focalisation de plusieurs objectifs de microscope présentant différentes ouvertures numériques, ce qui permet entre autres un choix en matière de taille du spot d'excitation. Les objectifs utilisés pour la focalisation et pour la collection ($L_{obj\ 1}$ et $L_{obj\ 2}$, respectivement) sont des objectifs de microscope corrigés à l'infini, ce qui permet

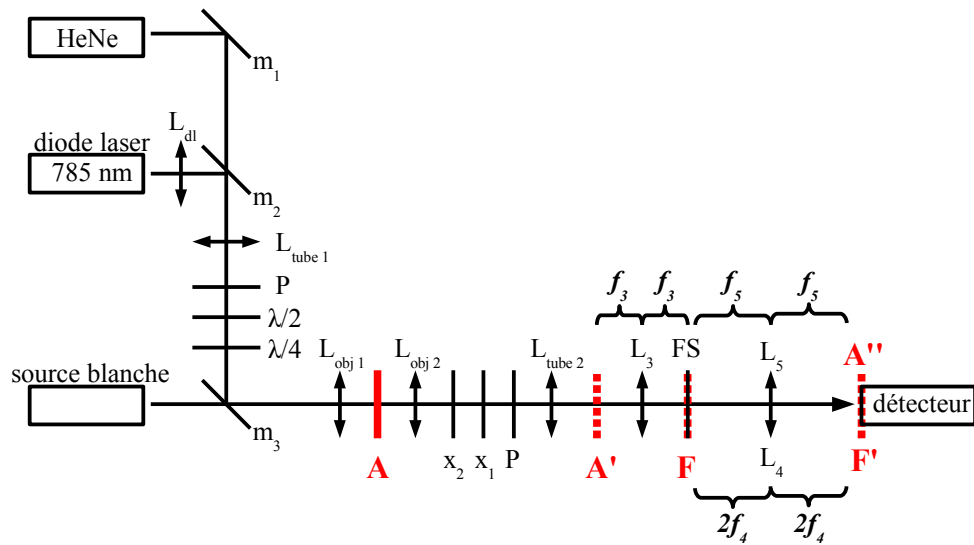
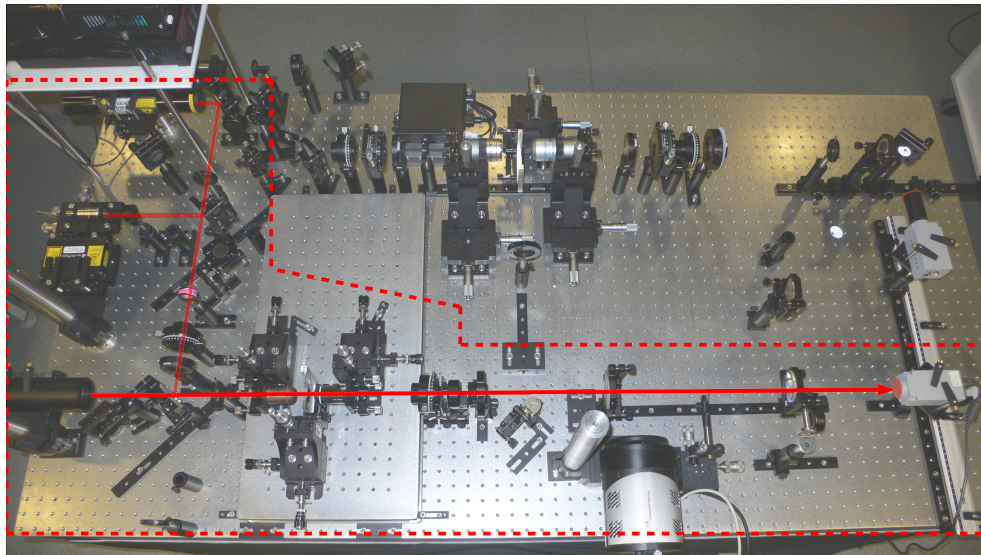


FIGURE 4.3 – Image et schéma du montage optique de microscopie en champ de fuite développé durant la thèse. Voir le texte pour le descriptif du principe et des composants du montage.

de placer filtres (x_1, x_2), polariseurs (P) et lames d'onde ($\lambda/2, \lambda/4$) dans le chemin optique sans introduire d'aberration sphérique. Côté détection, c'est naturellement un objectif à immersion de grande ouverture numérique qui est utilisé afin d'être en mesure de collecter la radiation de fuite qui sort de l'échantillon (A) sous une incidence élevée. La lentille de tube permet ensuite de former une image réelle (A'). À partir de cette image réelle, une conjugaison $f - f$ (par L_3) permet d'effectuer la transformée de Fourier optique du signal (F). Pour réaliser une opération de filtrage des fréquences spatiales, on utilise une conjugaison $2f - 2f$ (par L_4) pour imager l'espace réciproque (F') et y positionner le masque (FS), avant de la remplacer par une nouvelle conjugaison $f - f$ (par L_5) pour effectuer une seconde transformée de Fourier optique et ainsi visualiser dans l'espace réel le signal filtré (A''). Les différentes lentilles utilisées sont des doublets achromatiques qui, même si l'éclairage utilisé est monochromatique, garantissent une bonne qualité optique aux images formées par le montage. Les images sont enregistrées par un modèle de caméra CMOS standard mais dont la sensibilité reste toutefois relativement bonne à la longueur d'onde de la diode laser utilisée. On pourra en outre consulter, en complément du chapitre 3 qui avait introduit le principe de fonctionnement de la microscopie en radiation de fuite entre autres, l'annexe C qui revient sur quelques caractéristiques liées à l'utilisation de ce dispositif et donne un exemple d'application du filtrage des fréquences spatiales.

Chapitre 5

Réseaux sources

Optimisation du lancement de plasmons de surface par des réseaux de trous sublongueurs d'onde : modélisation et expériences

Introduction

Plusieurs expériences ont établi que des réseaux de trous pratiqués dans des films métalliques épais peuvent être utilisés en guise de sources pour le lancement de plasmons de surface le long de la surface métallique, avec un contrôle possible de la direction d'émission [25, 24]. Par la suite, des expériences complémentaires menées en parallèle de simulations basées sur la méthode des différences finies dans le domaine temporel (FDTD¹) ont cherché à établir dans quelle mesure l'intensité et la direction de propagation des modes plasmons de surface pouvaient être modifiées en variant les paramètres de l'illumination incidente sur le réseau source [26]. Ces études ont démontré que le fait de varier la polarisation, l'angle d'incidence ou encore la longueur d'onde incidente constituait les méthodes de base permettant d'exercer un contrôle sur les faisceaux plasmons lancés sur la surface métallique.

Parallèlement, nous avons vu que de nombreux travaux ont été menés pour développer des composants plasmons analogues aux composants op-

1. *Finite-Time-Difference-Domain*

tiques classiques tels que des miroirs ou des lentilles, l'étape suivante étant la réalisation de composants actifs [46, 40]. Dans ce contexte, les réseaux sources se révèlent être des composants utiles pour fournir le faisceau plasmon nécessaire. L'utilisation d'ouvertures sublongueurs d'onde pratiquées dans un film optiquement épais, tels que ceux étudiés ici, permettent en effet d'éviter les pertes par radiation de fuite dans le substrat et autorisent le couplage de la lumière aux plasmons de surface en illuminant l'échantillon par l'arrière, diminuant ainsi fortement au niveau de la détection le bruit et la saturation provoqués par l'excitation. Toutefois, les faisceaux plasmons lancés localement par ces sources montrent une allure et une structure transverse complexes résultant de l'interférence entre les plasmons de surface diffusés par chaque nanotrous constituant la structure. Nous nous sommes donc intéressés à la possibilité de modifier la forme de la structure pour améliorer les propriétés du faisceau plasmon tel que sa divergence ou son uniformité. Outre une meilleure compréhension du mécanisme de lancement par ces structures, cette étude offre également un intérêt pratique notamment dans le cadre d'applications nécessitant des faisceaux de profils bien définis.

La modélisation de la diffusion des plasmons de surface à partir d'un réseau de trous est nécessaire pour optimiser les propriétés des faisceaux plasmons émis par ce type de source. La description la plus basique du lancement de plasmons de surface par un réseau de trous bi-périodique de périodes P_x , P_y suivant les axes x et y repose sur la conservation du vecteur d'onde. À partir de (3.7), on écrit directement

$$\mathbf{k}_{ps} = \mathbf{k}_{in}^{\parallel} + i \frac{2\pi}{P_x} \mathbf{x} + j \frac{2\pi}{P_y} \mathbf{y} \quad (i, j \text{ entiers}), \quad (5.1)$$

où \mathbf{k}_{ps} et $\mathbf{k}_{in}^{\parallel}$ désignent respectivement les vecteurs d'onde des plasmons de surface diffusés et de la lumière incidente dans le plan $(\mathbf{x}0\mathbf{y})$ de la surface métallique [27]. Il s'agit d'une condition de l'espace réciproque qui détermine les directions de propagation des plasmons de surface mais qui n'offre en revanche aucune information sur la structure du faisceau plasmon. Une approche possible qui permet d'en obtenir la distribution d'intensité repose sur l'utilisation de simulations FDTD [26]. Elles montrent un très bon accord avec

les observations expérimentales, mais ces méthodes purement numériques ne conduisent pas à une interprétation physique simple du profil d'intensité des champs plasmons.

Dans la suite, nous proposons une approche différente basée sur une analyse de l'espace direct. La dynamique de la diffusion des ondes de surface sera décrite à l'aide d'un modèle de Huygens-Fresnel. Ce modèle simple fournit des simulations qui sont consistantes avec les résultats expérimentaux et offre une description physique claire de la formation et de l'allure des faisceaux plasmons.

5.1 Modélisation

Notre approche considère une description du réseau source basée sur des points diffusants où chaque trou sublongueur d'onde est traité comme une source discrète dipolaire secondaire [92]. Sous illumination cohérente et polarisée, chaque point source se comporte comme un dipôle cohérent qui émet des ondes de surface dans le plan de l'interface. Le champ plasmon global est alors la somme cohérente de tous les champs élémentaires.

Le champ incident \mathbf{E}_{in} est pris comme une onde plane de vecteur d'onde \mathbf{k}_{in} . Pour un trou donné, ce champ incident est converti en onde de surface 2D qui se propage à partir du trou comme une onde cylindrique de Huygens en $\exp(ik_{ps}r_n/\sqrt{r_n})$. La distance entre la n^e source et le point d'observation est donnée par r_n et k_{ps} est l'amplitude complexe du vecteur d'onde plasmon de surface, défini par la relation de dispersion standard pour une interface plane donnée par (2.34). Dans nos simulations, nous avons pris $\varepsilon_d = 1$ car nous avons mesuré l'intensité des champs plasmons lancés sur une interface air/or et nous avons utilisé des valeurs expérimentales tabulées pour ε_m [93]. En relation avec les plasmons de surface excités sur des interfaces lisses, nous avons vu que les ondes de surface sont polarisées elliptiquement avec un axe long suivant la normale à l'interface (paragraphe 2.2.2). Toutefois, pour prendre en compte l'efficacité de couplage entre la polarisation de l'onde incidente et les ondes de surface excitées, c'est la composante parallèle à la surface qui est considérée, par le biais du vecteur unitaire de polarisation

$\mathbf{e}_{ps} = \mathbf{r}_n/r_n$. Étant donnée la polarisation \mathbf{E}_{in} du champ incident, il est naturel d'introduire cette efficacité de couplage par $\mathbf{e}_{ps} \cdot \mathbf{E}_{in}$, ce qui conduit à un motif d'émission dipolaire par chaque trou individuel, comme observé expérimentalement [21]. Le processus de diffusion est cohérent et chaque onde de surface élémentaire émise par un trou n donné possède une relation de phase fixée $\exp(i\mathbf{k}_{in} \cdot \delta_n)$ avec la lumière incidente, où δ_n représente la distance entre le n^{e} trou source et le centre du réseau. Ce terme rend compte de la différence de phase initiale entre les ondes de surface émises par les différents trous sources qui apparaît en illumination oblique ($\mathbf{k}_{in} \cdot \delta_n \neq 0$). Le champ plasmon de surface global se définit comme la somme de tous les champs élémentaires, et son intensité I_{ps} s'écrit

$$I_{ps} = \left| \sum_n \frac{\exp(ik_{ps}r_n)}{\sqrt{r_n}} \exp(i\mathbf{k}_{in} \cdot \delta_n) (\mathbf{e}_{ps} \cdot \mathbf{E}_{in}) \right|^2. \quad (5.2)$$

Des interférences se produisent naturellement lorsque les différents champs plasmons de surface se recouvrent. L'intensité du faisceau plasmon qui est mesurée par imagerie NFO est l'expression directe du motif d'interférences propre à l'ensemble de points sources considéré, aux matériaux du substrat et aux conditions d'illumination. La relation (5.2) fournit une évaluation directe de ce motif d'interférences.

Il est à ce stade utile de remarquer que la contribution de la transmission directe du champ incident à travers les trous est absente de ce modèle. On néglige donc les interférences de type Fano entre les ondes de surface et les ondes propagatives [94] : nous faisons l'hypothèse que la transmission directe ne doit pas apporter de contribution significative lorsque l'on ne se situe pas directement au-dessus ou à proximité immédiate de la structure. Enfin, bien que ce modèle ne prenne pas en compte la diffusion multiple par les trous voisins du point source considéré, nous verrons dans la suite qu'il permet néanmoins d'obtenir un accord remarquable avec les résultats expérimentaux.

5.2 Expériences et simulations

Les réseaux sources furent réalisés par FIB dans des films d'or de 160 nm d'épaisseur déposés par évaporation assistée par faisceau d'électrons sur des substrats de verre BK7 recouverts d'ITO. Les mesures en champ proche optique (NFO²) furent réalisées à l'Université de Bourgogne par l'équipe du Prof. Alain Dereux. Nous avons tout d'abord étudié des réseaux sources consistant en une maille carrée de 11×11 trous de période 760 nm et de diamètre 220 nm. Sur les mesures NFO, l'illumination est faite à 800 nm sous une incidence de 47° afin de coupler au mode (-2,0) de l'interface air-métal, comme expliqué plus bas [27]. L'illumination est faiblement focalisée ($\pm 8^\circ$) pour produire un spot de 10 μm de diamètre sur le réseau source en arrivant par le substrat, une condition acceptable vis-à-vis de notre hypothèse d'illumination en onde plane. La comparaison entre la mesure et la simulation est présentée sur la figure 5.1, montrant un bon accord sur la distribution d'intensité expérimentale et calculée. En particulier, les coupes montrent que le faisceau présente deux maxima transverses à proximité du bord de la structure, qui fusionnent ensuite en un pic unique, donnant l'impression d'un faisceau qui se focalise. Cette allure est toutefois uniquement due aux interférences qui résultent des conditions de phase issues des différents trous sources. Ce premier résultat illustre bien, comme nous l'avons évoqué plus tôt, le fait que le modèle ne tient pas compte de l'illumination directe. Celle-ci est en revanche bien collectée par la pointe NFO, ce qui occasionne une plus forte intensité au niveau de la structure sur l'expérience en comparaison de la simulation.

Les résultats expérimentaux et les simulations correspondantes sont également présentées dans le cas d'un réseau source à maille triangulaire sur la figure 5.2. La période du réseau a été adaptée à cette maille, et l'expérience a été réalisée sous les mêmes conditions d'illumination. Un triple faisceau est observé, un léger défaut d'alignement entre l'illumination et la structure affaiblissant un des faisceaux en comparaison de la simulation dans le cas idéal.

2. *Near Field Optics*

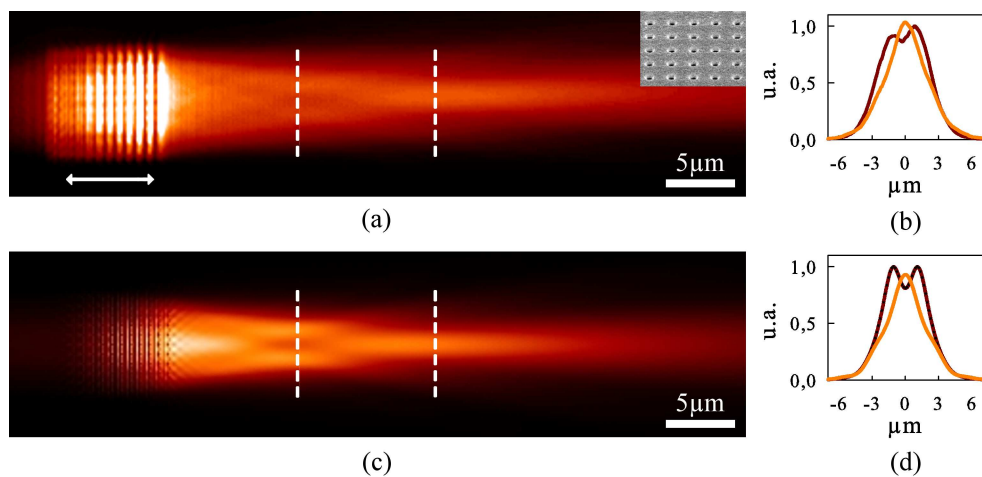


FIGURE 5.1 – (a) Image NFO du faisceau plasmon lancé par un réseau source de 11×11 trous. Incrustation : image MEB d’une partie de la structure (tiltée de 52° ; Période 760 nm et diamètre des trous 220 nm). L’illumination est faite à 800 nm sous une incidence de 47° . La double flèche indique la direction de polarisation de l’illumination. (b) Coupes transverses du faisceau prises à $10 \mu\text{m}$ (marron) et $20 \mu\text{m}$ (orange) de distance du bord de la source, comme indiqué par les tirets sur l’image NFO. (c), (d) Simulation correspondante.

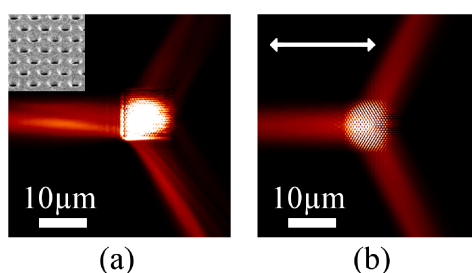


FIGURE 5.2 – (a) Image NFO des faisceaux plasmons lancés par un réseau source à maille triangulaire. Incrustation : image MEB d’une partie de la structure (tiltée de 52° ; période 530 nm). L’illumination est faite à 800 nm sous une incidence de 47° . La double flèche indique la direction de polarisation de l’illumination. (b) Simulation correspondante.

5.3 Angle d'incidence et faisceau unique

Un réseau source produit un nombre de faisceaux fonction de la maille de la structure, comme nous venons de voir, ainsi que des caractéristiques optiques de l'illumination. Les expériences réalisées sur des réseaux de maille carrée ont montré l'émission de deux faisceaux symétriques sous incidence normale, en couplant simultanément dans les modes $(\pm 1, 0)$ [25]. De tels configurations à faisceaux multiples peuvent être utiles dans le contexte de circuits photoniques intégrés pour dupliquer le signal et l'adresser simultanément à plusieurs éléments du circuit. Toutefois, il est souvent critique de pouvoir générer un faisceau unique, par exemple pour éviter de perturber des composants voisins au sein d'un circuit fortement intégré. En matière de réseaux périodiques, de tels faisceaux uniques ne peuvent s'obtenir en jouant sur l'angle d'incidence de l'illumination afin de briser la symétrie.

Avec cette idée en tête, nous avons étudié l'illumination sous incidence oblique en parallèle avec le choix approprié de la période du réseau source, dans l'espoir que ces conditions permettent de favoriser un faisceau plasmon unique au détriment des autres. Des simulations ont été réalisées à différents angle d'incidence pour une réseau périodique à maille carrée, et l'intensité des faisceaux plasmons a été intégrée de part et d'autre de la structure. Les résultats de ces calculs sont présentés sur la figure 5.3. Une résonance apparaît à chaque fois qu'une condition de type Bragg est remplie. Ces situations correspondent à celles prédites par l'argument classique sur les vecteurs d'onde et peuvent être indexées suivant les modes de surface (i, j) excités. Pour une période de 760 nm, deux résonances distinctes apparaissent à 43° et 47° , correspondant respectivement à l'excitation du mode $(0, 0)$ se propageant suivant la même direction que l'illumination, et à l'excitation du mode $(-2, 0)$ contra-propagatif en comparaison de la direction de l'illumination. En illuminant la structure sous une incidence de 47° et de manière peu focalisée, il est possible d'exciter le mode $(-2, 0)$ exclusivement, donnant ainsi lieu à un faisceau plasmon unique contra-propagatif, comme illustré sur les figures 5.3 et 5.1. C'est ce même argument qui explique le nombre de faisceaux observés sur la figure 5.2, et qui se trouve être en sous-nombre en comparaison du

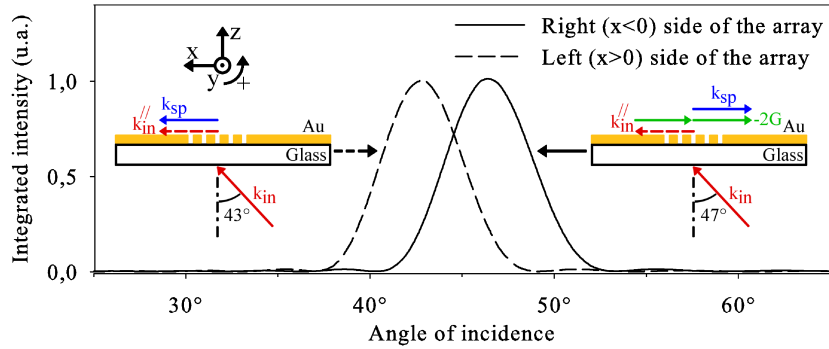


FIGURE 5.3 – Intensité des plasmons de surface simulée puis intégrée de part et d’autre d’un réseau à maille carrée (11×11 points sources, période 760 nm, excitation à 800 nm) en fonction de l’angle d’incidence de l’illumination. Des résonances apparaissent à 43° pour le mode (0,0) et à 47° pour le mode (-2,0), et correspondent à des faisceaux plasmons se propageant en sens opposés.

nombre maximum de faisceaux que l’on pourrait attendre (et observer en incidence normale) des différents modes possibles d’une maille triangulaire.

De manière analogue au calcul effectué pour l’incidence oblique, on peut évaluer le spectre angulaire de l’intensité des plasmons de surface lancés de chaque côté du réseau source pour des valeurs de l’angle d’incidence proches de l’incidence normale. Le résultat obtenu est présenté sur la figure 5.4(b). On constate à nouveau un décalage angulaire, cette fois entre les résonances (1,0) et (-1,0), associées aux plasmons de surface se propageant en sens opposé de chaque côté de la source. Que ce soit en incidence normale ou oblique, les décalages observés proviennent du fait que nous travaillons en réalité légèrement hors résonance, en d’autres termes que l’illumination utilisée ne correspond pas exactement à la fréquence de résonance de la structure en incidence normale. En effet, en incidence normale, la résonance s’observe en réalité à une longueur d’onde d’environ 780 nm pour un réseau de période 760 nm pratiqué dans de l’or. Les deux approches étant équivalentes, on peut l’observer en raisonnant soit dans l’espace réciproque des vecteurs d’onde et en se servant de la relation (5.1), soit dans l’espace direct en effectuant la simulation à différentes longueurs d’onde, cette seconde approche permettant

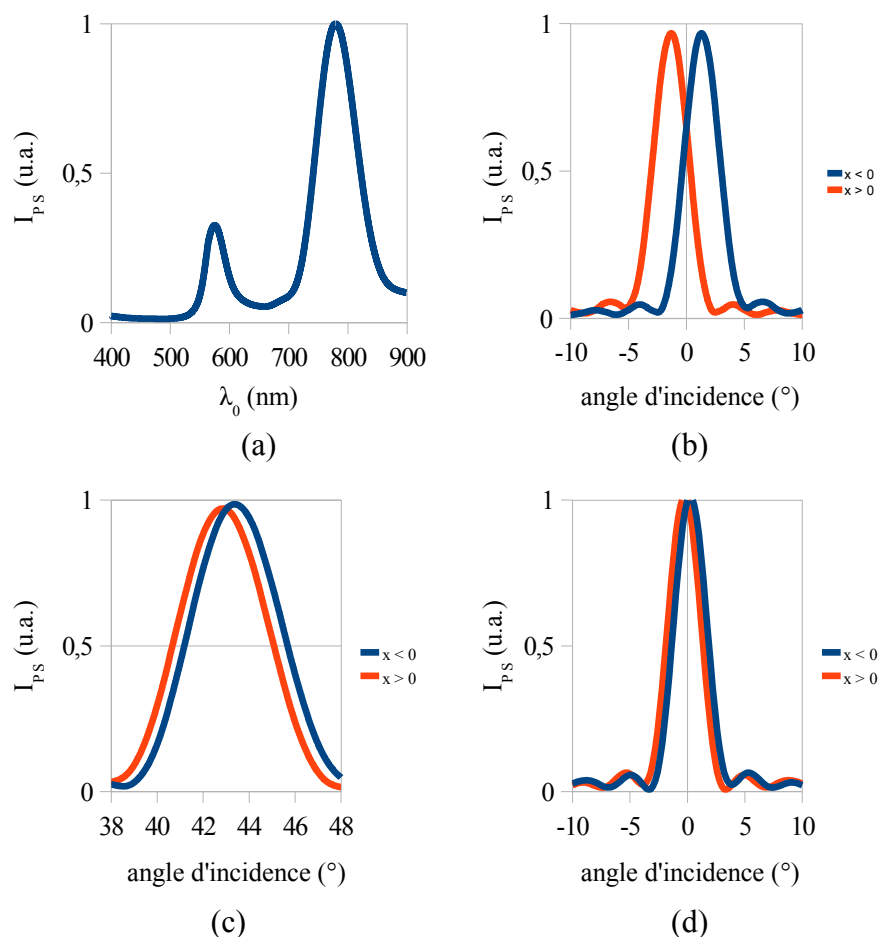


FIGURE 5.4 – Calculs de distributions d'intensité du faisceau de plasmons de surface à l'interface air/or pour une maille carrée de période 760 nm. (a) Distribution spectrale (excitation en incidence normale, longueur d'onde variable). Distributions angulaires (angle d'incidence de l'illumination variable) pour une illumination à 800 nm (b) et à 780 nm (c et d), en distinguant les deux faisceaux qui se propagent de part et d'autre de la structure.

d'obtenir le spectre en longueurs d'onde de l'intensité des plasmons de surface excité par la structure source, comme le montre la figure 5.4(a).

Précisons que ce spectre est uniquement un reflet de la contribution plasmon au niveau d'une maille périodique constituée de points sources sans dimensions. L'étude des plasmons de surface sur les réseaux de trous sublongueur d'onde s'est historiquement faite de manière indirecte par la mesure en champ lointain des spectres de transmission optique de ces structures, notamment dans le cadre de l'étude du phénomène de transmission exaltée. Les différences que l'on observe entre ces deux types de spectres s'expliquent naturellement par les conditions propres à chaque expérience. Ainsi, pour reproduire plus fidèlement les spectres de transmission des structures observés en champ lointain, il faut ajouter au modèle un terme tenant compte de la transmission directe du champ incident, diffracté par la structure : cette opération provoque l'apparition de pics asymétriques, décalés vers le rouge et présentant un minimum local aux courtes longueurs d'onde et une décroissance exponentielle vers les hautes longueurs d'onde, résultant de l'interférence entre la contribution directe du champ incident diffracté par la structure et la contribution indirecte des plasmons de surface [92]. Cette interférence de type Fano correspond bien à ce qui est observé expérimentalement en champ lointain sur les spectres de transmission exaltée, et on pourra également se référer au chapitre 6 pour en avoir une autre illustration. Par ailleurs, d'autres approximations proviennent de l'absence de prise en compte des diffusions multiples au sein de la structure et, d'une façon complémentaire, de la définition du vecteur d'onde k_{ps} des plasmons de surface utilisée dans le modèle aussi bien que dans la relation (5.1), qui provient généralement de la relation de dispersion standard pour une interface plane donnée par (2.34). Ces deux arguments permettent d'expliquer que les fréquences de résonance que l'on peut évaluer d'après (5.1), ou de manière équivalente à l'aide de modèles type Huygens-Fresnel, correspondent généralement à un minimum de transmission sur les spectres de transmission exaltée, ce qui a un temps laissé penser que les plasmons de surface jouaient un rôle défavorable dans le phénomène de transmission exalté. Dernière source d'erreur, se baser sur des points sources ne tient pas compte de la réponse propre des trous qui

est liée à leurs dimensions. Dans ce contexte, nous verrons dans le chapitre 6 que l'efficacité de génération des plasmons de surface par un défaut local est, à fréquence donnée, fonction des dimensions du défaut local. Inversement, un défaut de dimensions données va donc voir son efficacité de lancement des plasmons de surface dépendre de la fréquence d'excitation. Pour un calcul plus rigoureux du spectre en longueurs d'onde de l'intensité du champ plasmon de surface généré par une structure donnée, tel que celui présenté sur la figure 5.4(a), il conviendrait donc d'introduire un tel terme tenant compte de l'efficacité relative du processus en fonction des dimensions des défauts de la structure et de la longueur d'onde incidente.

Eu égard à tous ces points d'approximation, le modèle simple basé sur le principe d'Huygens-Fresnel permet néanmoins de faire quelques considérations physiques intéressantes. Ainsi, en effectuant les calculs précédents de spectre angulaire de l'intensité des plasmons de surface lancés de chaque côté de la structure source, et en considérant cette fois l'illumination à 780 nm correspondant à la résonance en incidence normale, on constate cette fois que certes les résonances se superposent en incidence normale (qui a bien lieu à 0°), mais également en incidence oblique, comme on le constate sur les figures 5.4(b) et (c). C'est donc le choix rigoureux des paramètres de la structure ou de l'illumination qui permet d'obtenir des configurations de faisceaux uniques en séparant angulairement les résonances associées. Précisons à ce titre que dans le cas de notre expérience, réalisée avec une illumination à 800 nm, il n'a pas été possible d'exploiter le décalage angulaire entre les résonances $(1,0)$ et $(-1,0)$ pour obtenir des configurations de faisceau unique. En effet, le décalage angulaire est trop faible, de l'ordre de 2° , pour être résolu par l'illumination, même en travaillant avec un objectif de faible ouverture numérique (celle-ci correspondait à un angle de 8° dans notre expérience). On pourrait choisir une incidence légèrement plus oblique, par exemple autour de $\pm 5^\circ$, afin d'exclure une des résonances du cône de focalisation de l'objectif, mais cela se traduirait également par une diminution notable de l'efficacité d'excitation de la résonance visée, et de plus il subsisterait encore un résidu de la résonance que l'on cherche à éviter en raison de la proximité angulaire de ces résonances. Mais lorsque les paramètres de la structure et les

conditions d'illumination sont bien choisies, comme c'était le cas en incidence oblique, il est alors possible d'obtenir naturellement un faisceau unique, ce sans avoir recours à une autre structure, telle qu'un miroir de Bragg, pour réfléchir et éliminer les faisceaux non désirés [95].

5.4 Optimisation du faisceau plasmon

Tout en conservant l'angle d'incidence de l'illumination à 47° , l'étape suivante de cette étude visa à concevoir un modèle de réseau source optimisé, capable de générer un faisceau plasmon uniforme et collimaté. La réalisation de composants diffractifs tels que des miroirs sphériques ou des lentilles a été proposée en positionnant géométriquement des défauts de surface individuels de sorte qu'une interférence constructive se produise dans le plan focal de ces composants [43]. En nous inspirant de cette idée, nous avons étudié dans quelle mesure le faisceau plasmon pouvait être modifié en ajoutant ou en enlevant des trous dans le respect de la maille initialement choisie. La figure 5.5 montre des exemples de réseaux source présentant un bord convexe ou concave. Le modèle concave résulte en un faisceau légèrement plus uniforme avec une section transverse plus large, toutefois dans les deux cas le faisceau reste toujours entaché d'interférences et convergent. Remarquons que ces structures sont plus étendues que le réseau carré 11×11 initial et à ce titre elles ne sont plus uniformément couvertes par l'illumination. Ceci a été pris en compte dans les simulations en donnant, dans le plan des trous, un profil gaussien de taille finie au champ incident qui correspond à la taille expérimentale du spot d'excitation sur l'échantillon. Les figure 5.5(c) et 5.5(d) en illustrent clairement les effets, la première étant plus proche de l'expérience que la seconde. Bien que les structures concave et convexe n'ont pas conduit à un comportement diffractif similaire aux structures suggérées dans la référence [43], ces résultats permettent de mieux comprendre la relation entre le nombre de trous, leur position, et les propriétés optiques des faisceaux plasmons générés. Il apparaît clairement que lorsque chaque source élémentaire apporte une contribution égale au faisceau plasmon, ce dernier présentera une figure d'interférence avec un contraste maximum. On

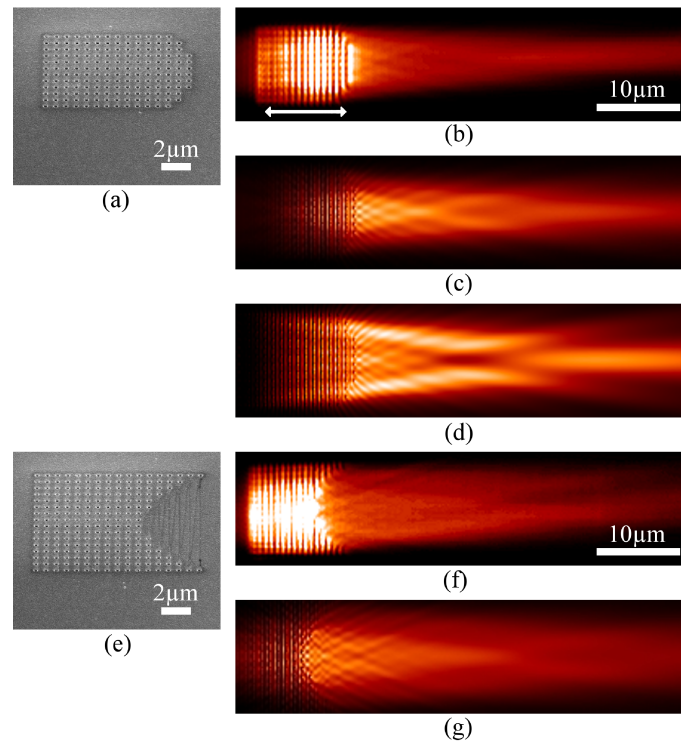


FIGURE 5.5 – (a) Image MEB (tiltée de 52°) d'une structure source convexe, (b) image NFO correspondante, (c) simulation correspondante en tenant compte de la taille finie du spot d'illumination et (d) simulation pour une illumination uniforme. (e) Image MEB (tiltée de 52°) d'une structure source concave, (f) image NFO et (g) simulation correspondantes. Les images simulées sont à la même échelle que les images NFO.

peut particulièrement bien l'observer sur la figure 5.5(d) pour laquelle les points sources apportent tous la même contribution. Le fait d'ajouter des trous permet ainsi de coupler plus de lumière aux plasmons de surface par le biais d'une structure résonante, mais les trous localisés en dehors de l'axe optique défini par le faisceau plasmon entraînent également une figure d'interférence plus complexe ainsi que la convergence du faisceau. Avec un spot d'illumination de taille finie en revanche, comme sur la figure 5.5(c), un plus faible contraste des franges d'interférence est observé. Ceci s'explique par la diminution progressive des contributions hors-axe.

En suivant cette idée, nous avons tenté de réduire ce type de contributions : à partir du réseau carré initial, nous avons supprimé des trous au fur et à mesure que nous nous éloignons de l'axe optique, ce qui conduit à un réseau en forme de diamant. Les simulations ont montré que le faisceau le plus collimaté et uniforme était en effet obtenu avec cette source diamant. Encore une fois, simulation et expérience sont en très bon accord, comme on peut l'observer sur la figure 5.6. Le profil le long de la direction de propagation de l'intensité intégrée sur la largeur du faisceau plasmon ainsi que des coupes sont également présentées. Une différence notable entre les profils d'intensité simulé et expérimental peut être observée à proximité de la source. Comme évoqué plus haut, ni les contributions de la diffusion multiple ni des interférences entre les ondes de surface et les ondes propagatives ne sont prises en compte dans notre approche de diffusion simple. De plus, le calcul du champ à proximité immédiate de la structure en utilisant un front d'onde sphérique n'est généralement pas suffisamment précis, dans la mesure où la relation (5.2) repose sur la condition $k_{ps}r_n \gg 1$. Enfin, la pointe NFO utilisée est très sensible à l'illumination directe par les trous : il en résulte en effet une plus grande intensité collectée à proximité de la structure. En revanche, lorsque l'on s'éloigne du réseau, cette différence diminue jusqu'à rejoindre la courbe simulée. La distance de propagation en intensité des plasmons de surface, mesurée à bonne distance du bord de la source, donne une valeur de $42 \pm 2 \mu\text{m}$, ce qui est en très bon agrément avec la valeur calculée $1/2\mathfrak{S}(k_{ps}) \approx 45 \mu\text{m}$, basée sur la constante diélectrique de l'or à 800 nm. Ce résultat signifie que les pertes par diffusion radiative due à la rugosité de sur-

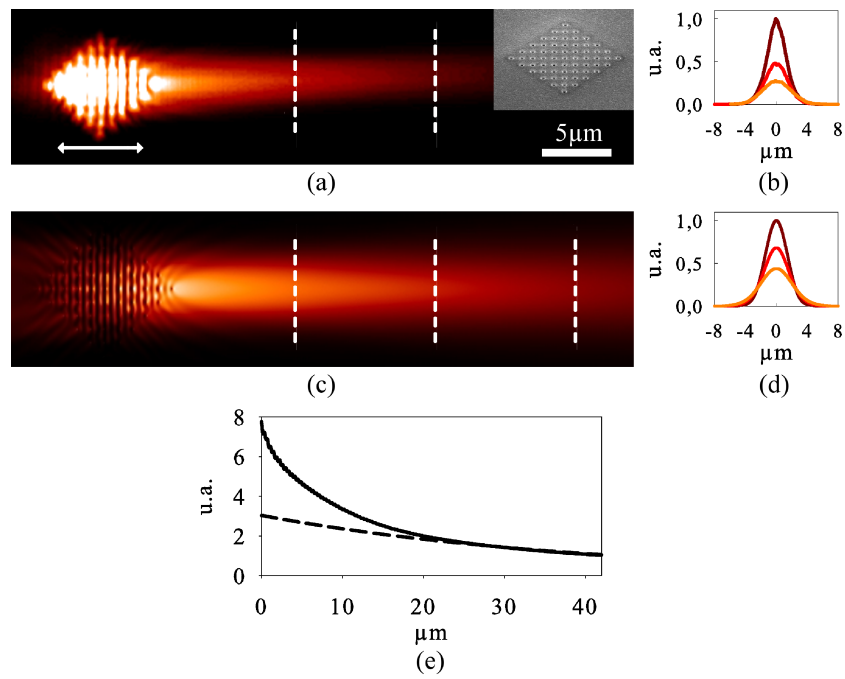


FIGURE 5.6 – (a) Image NFO de la source diamant. Insertion : image MEB (tiltée de 52°) de la structure (période 760 nm). (b) coupes transverses réalisées à $10 \mu\text{m}$ (marron), $20 \mu\text{m}$ (rouge) et $30 \mu\text{m}$ (orange) de distance du bord de la structure. (c) simulation (même échelle que (a)) et (d) coupes correspondantes. (e) Intensité plasmon de surface, intégrée sur la largeur du faisceau, en fonction de la distance au bord de la source (la ligne continue correspond à l'expérience et les tirets à la simulation).

face ne semble pas représenter une grande contribution dans ces expériences.

Les raisons qui conduisent au bon fonctionnement de la source diamant peuvent également s'appréhender de manière simple et didactique par le biais de deux cas de figure extrêmes : lorsque la source est constituée d'une unique ligne ou d'une unique colonne de points sources. Les simulations correspondantes sont présentées sur la figure 5.7 et permettent de faire les observations suivantes :

- lorsque les trous sont situés le long de l'axe optique défini par le faisceau plasmon, c'est-à-dire suivant un axe appartenant au plan d'incidence de l'illumination, les plasmons de surface émis par chaque trou source sont en phase le long de cet axe. La polarisation de l'illumination étant choisie suivant cet axe, le dipôle d'émission de chaque trou source est également aligné suivant cet axe. Cet axe correspond donc à la direction d'émission maximale des trous sources, ceux-ci étant en phase : la somme de ces contributions donne une émission intense, le faisceau obtenu est très uniforme mais également très divergent ;
- lorsque les trous sont situés perpendiculairement à l'axe optique défini par le faisceau plasmon, c'est-à-dire suivant un axe orthogonal au plan d'incidence de l'illumination, les plasmons de surface sont tous émis avec la même phase initiale (d'où la réapparition de deux faisceaux). En revanche, lorsque l'on se situe le long de l'axe optique, on voit désormais les trous sources sous différents angles, fonctions de leur éloignement à l'axe optique. Le long de l'axe optique, les champs élémentaires provenant des différents trous sources présentent donc des phases variables, d'où l'apparition d'une figure d'interférence prononcée. Les différences de phase sont d'autant plus importante que l'on se situe à proximité de la structure ou que la structure est grande (la distribution d'angles sous lesquels sont vus les trous source est plus grande), et tendent à diminuer en s'éloignant de la structure. Ceci explique le motif d'interférence très contrasté observé à proximité de la structure alors que le faisceau gagne en uniformité en s'éloignant de celle-ci. Dans cette configuration, la somme des contributions donne

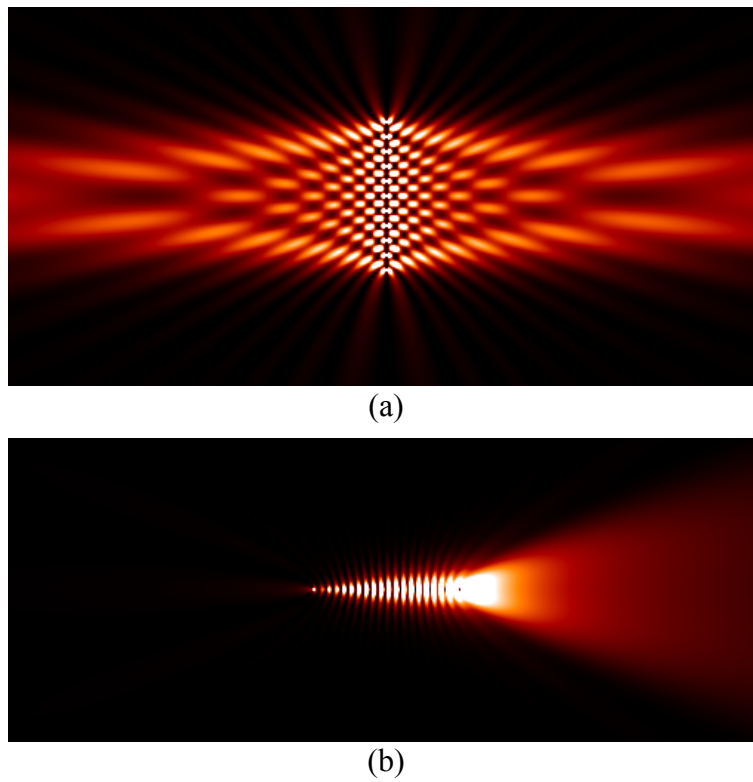


FIGURE 5.7 – Distribution spatiale de l'intensité des plasmons de surface simulée pour (a) une colonne de trous (b) une ligne de trous (11 trous, période 760 nm, illumination 800 nm, angle d'incidence 47° , polarisation horizontale)

un faisceau convergent qui présente une figure d'interférence complexe et contrastée.

La source diamant se situe à mi-chemin entre ces deux configurations extrêmes : on se sert des contributions hors-axe de manière à diminuer la divergence observée avec la ligne de trous sources, mais on veille à progressivement diminuer les contributions hors-axe afin d'éviter l'apparition du motif d'interférence contrasté observé avec la colonne de trous.³

5.5 Effets de tailles

Dans ce paragraphe, nous allons déterminer l'influence de la taille du réseau source sur l'intensité du faisceau plasmon de surface lancé par celui-ci. La question de l'efficacité du couplage de la lumière incidente aux plasmons de surface au niveau élémentaire du défaut unique sera elle abordée en détails dans le chapitre suivant : il est ici question de voir s'il est possible d'obtenir un faisceau plasmon de surface plus intense uniquement en augmentant le nombre de défauts de la structure périodique, autrement dit en augmentant le nombre n de contributions élémentaires dans la somme cohérente de la relation 5.2. Nous avons déjà vu qu'il serait maladroit d'augmenter le nombre des contributions hors-axe si l'on tient à conserver un faisceau présentant de bonnes qualités optiques. Il apparaît en revanche *a priori* possible d'augmenter le nombre de trous sources à proximité directe de l'axe optique défini par la propagation des plasmons de surface, mais les bénéfices potentiels de cette approche se voient néanmoins limités par la question de la distance de propagation des plasmons de surface au sein même de la structure source.

De façon triviale, les expériences réalisées sur les réseaux sources présentant un bord convexe ou concave ont tout d'abord montré qu'une structure dont la taille dépasse la zone d'illumination présente des trous non éclairés qui deviennent inutiles, ce qui est confirmé dans la simulation par la nécessité de pondérer les contributions des points sources par l'amplitude précise du champ incident. Néanmoins, le fait de travailler dans ces conditions a été mis

3. Il est de notoriété publique que les diamants permettent d'obtenir bien des compromis, notamment dans des disciplines qui sortent totalement du cadre de cette thèse.

à profit pour sonder localement la contribution des trous sources en fonction de leur position au sein de la structure : ainsi, on distingue clairement sur la figure 5.5(b) que le spot d'illumination a été décentré vers le côté de la structure à partir duquel sont lancés les plasmons de surface. Inversement, nous avons aussi décentré le spot d'illumination vers le côté opposé de la structure, et nous avons pu remarquer que cette dernière configuration fait fortement baisser l'intensité du faisceau plasmon de surface. Ces deux observations montrent qu'il existe des pertes non négligeables lorsqu'un plasmon de surface ne se propage pas sur une interface plane. Ces pertes sont dues à la diffusion par les trous voisins et sont d'autant plus importantes que la période de la structure est précisément ajustée pour permettre le couplage de la lumière aux plasmons de surface, et par conséquent leur découplage. Dans ces conditions, il apparaît donc clairement que la longueur de propagation des plasmons de surface dans la structure source ne peut être évaluée à partir de la relation de dispersion standard pour l'interface plane, et qu'il est malgré cela crucial d'en obtenir la valeur, celle-ci déterminant de fait la taille maximale de la structure source au-delà de laquelle il devient totalement inutile de rajouter des défauts sources, même en éclairant uniformément toute la structure.

Pour évaluer la distance de propagation des plasmons de surface au sein de la structure source, nous avons étudié leur amortissement lorsque ceux-ci se propagent sur un réseau sonde présentant toutes les caractéristiques géométriques du réseau source (même période, même diamètre et profondeur de trous). Les plasmons sont lancés à distance par une structure source isolée, se propagent sur une interface plane, puis rencontrent la structure sonde, comme le montre la figure 5.8(a). Précisons que bien évidemment, seule la structure source est éclairée. Au niveau de l'interface plane, on observe des franges d'interférences rectilignes et parallèles dues à la réflexion du faisceau par la structure sonde : l'interfrange mesurée correspond à $\lambda_{ps}/2$. On ne manquera par ailleurs pas de remarquer sur cette mesure la figure d'interférence particulièrement contrastée présentée par le faisceau à proximité de la structure source : celle-ci s'explique par une illumination particulièrement uniforme de la source qui donne autant de poids aux contributions hors-axe

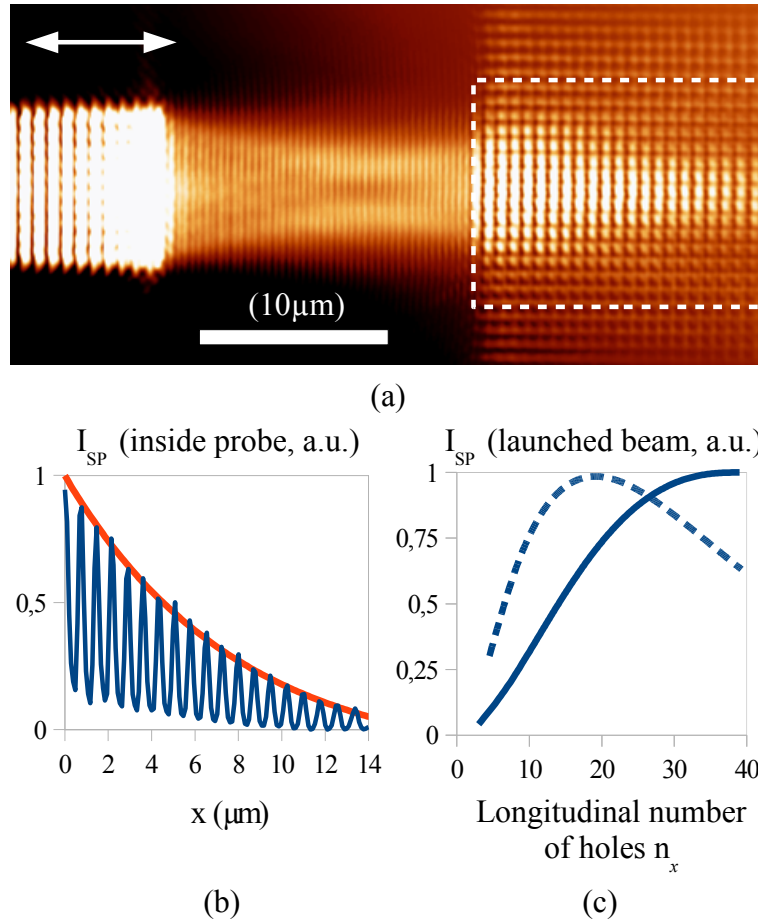


FIGURE 5.8 – (a) Mesure NFO du dispositif source-sonde : la source est le petit réseau situé à gauche, la sonde est le réseau étendu situé à droite. (b) Distribution d'intensité des plasmons de surface se propageant dans la sonde (intégrée sur la largeur du faisceau, voir l'encadré en tirets blancs sur (a)) et ajustement d'une exponentielle décroissante. (c) Calcul de la distribution d'intensité en fonction du nombre de points source composant le réseau source, en remplaçant le k''_{ps} théorique d'une interface plane par la valeur ajustée d'après (b). Résultat brut (trait continu) et normalisé par la taille de la structure (tirets).

qu'à celles situées à proximité de l'axe optique.

En ajustant une exponentielle décroissante à la distribution d'intensité du signal dans la sonde (figure 5.8(b)), nous y mesurons une distance de propagation typique de $7.8 \mu\text{m}$ pour des trous de diamètre 220 nm, largement inférieure à la distance de propagation mesurée expérimentalement pour l'interface plane plus haut. Cette donnée permet de fixer, pour une période et un diamètre de trous donnés, la taille limite de la structure source au-delà de laquelle des défauts sources supplémentaires verront fortement diminuer (à $1/e$ ou plus en amplitude) leur contribution effective aux plasmons de surface lancés. Dans le cas présent, cette taille limite représente une dizaine de périodes, ce qui correspond bien à l'extension du réseau source carré de départ ainsi qu'à celle du réseau source diamant. Pour évaluer la taille maximale au-delà de laquelle des défauts sources supplémentaires n'apporteront cette fois plus la moindre contribution (atténuation non plus à $1/e$ mais totale), nous avons introduit dans notre simulation une valeur de k''_{ps} déduite de la longueur de propagation mesurée dans la sonde et nous avons calculé la distribution d'intensité des plasmons de surface lorsque le nombre de trous sources est augmenté. Le résultat obtenu est présenté sur la figure 5.8(c) et montre une saturation à partir de quelques dizaines de trous sources le long de l'axe optique, contre plusieurs centaines si la valeur initiale de k''_{ps} d'une interface plane est utilisée. Lorsque ce résultat est normalisé par la taille de la structure, la courbe présente un maximum : cette valeur optimale correspond à la structure source qui, pour les paramètres géométriques considérés, offre le meilleur compromis entre la compacité de la structure et l'intensité du faisceau plasmon lancé.

Outre la taille de la structure source, on peut également se poser la question de l'optimisation du diamètre des trous qui la compose. L'ajustement de la partie imaginaire du vecteur d'onde des plasmons de surface réalisé précédemment permet de tenir compte de leur diffusion par les trous de la structure. Lorsque leur diamètre est diminué, la perturbation devient naturellement plus faible : la valeur de k''_{ps} ajusté est proportionnelle au diamètre des trous. On pourrait donc être tenté de travailler avec des trous de très

petits diamètres afin de minimiser la diffusion, ce qui permettrait *a priori* d'améliorer l'efficacité du dispositif et rendrait alors pertinente l'utilisation d'une source de taille étendue. Il ne faut toutefois pas oublier la question de l'efficacité du couplage de la lumière aux plasmons de surface au niveau élémentaire de chaque trou de la structure. Celle-ci sera abordée en détail dans le chapitre suivant, mais on peut d'ores et déjà souligner que cette efficacité au niveau élémentaire montre un optimum pour des défauts de dimensions certes très petites, mais décroît très rapidement pour les valeurs inférieures. Le diamètre des trous sources utilisés ici, 220 nm, se situe dans l'intervalle de dimensions correspondant à l'efficacité de couplage maximale pour le défaut unique [96, 97]. Travailler avec des trous de diamètre inférieur rendrait même *nécessaire* l'utilisation d'une source de taille étendue afin de compenser la perte en efficacité de couplage au niveau du trou unique.

On notera que ces observations sont tout à fait cohérentes avec les travaux portant sur les effets de la taille finie et du diamètre des trous des réseaux sur le phénomène de transmission exaltée [98], et permettent d'améliorer notre compréhension des liens qui unissent champ proche et champ lointain. Enfin, de façon très générale, la diffusion des plasmons de surface par les défauts locaux constituant une structure peut se faire, par conservation de l'impulsion, soit de manière radiative, soit de manière non radiative dans le plan de l'interface. Il est important de chercher à quantifier chacun de ces deux processus, notamment lorsque l'on fait varier la géométrie des défauts (diminution de la profondeur des trous, substitution par des plots, etc.). En effet, il convient de privilégier la diffusion non radiative des plasmons de surface pour le développement de composants et d'optiques destinés à guider et contrôler la propagation des plasmons de surface dans le plan de l'interface, tandis que l'on privilégiera la diffusion radiative pour des applications de couplage et de découplage des plasmons de surface aux modes propagatifs.

Conclusion

Nous avons présenté une approche dans l'espace réel qui permet une compréhension physique simple de la génération et de l'allure des faisceaux plas-

mons obtenus à partir de réseaux sources. On remarquera que ces faisceaux apparaissent de manière naturelle dans la simulation quand, pour un ensemble donné de paramètres tels que la maille et la période de la structure, les matériaux de l'échantillon et les conditions d'illumination, une interférence positive se construit dans une direction et à une pulsation données, donnant lieu à une résonance plasmon de surface et formant un faisceau. Bien qu'aucun argument de l'espace réciproque ne soit considéré dans le modèle, ces résonances apparaissent pour le même ensemble de paramètres à chaque fois qu'une condition de type Bragg est satisfaite.

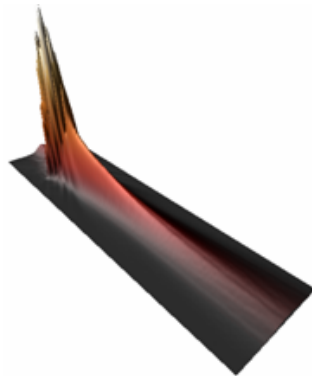
Il apparaît clairement d'après les résultats présentés que les conditions d'illumination et les paramètres de la structure source doivent tous être rigoureusement pris en compte afin d'optimiser l'allure du faisceau plasmon, et que sous les bonnes conditions il est possible d'obtenir des faisceaux de grande qualité optique. Les configurations de faisceaux uniques et le phénomène de saturation de l'efficacité du lancement avec la taille de la source s'observent de façon similaire avec d'autres configurations de structures sources, telles que des réseaux de fentes [99], et renforcent également notre compréhension du comportement de ce type de structures en champ lointain [98].

Notre modèle peut encore être étendu pour prendre en compte la diffusion des ondes de surface dans la structure ainsi que la contribution directe des ondes propagatives diffractées par la structure. Il va de soi que seules des méthodes numériques ou analytiques rigoureuses sont capables d'appréhender le problème du champ proche (calcul pour $k_{ps}r \ll 1$) ainsi que de la transmission du champ incident par la structure [100, 101], mais ce modèle simple permet toutefois de prévoir facilement et rapidement, pour des conditions expérimentales arbitraires, l'allure générale de l'intensité du champ plasmon de surface qui serait mesurée dans le champ proche. Cette approche peut ainsi être appliquée dans des configurations très diverses pour un prototypage rapide de structures destinées à remplir un ensemble tout aussi varié de fonctionnalités [41, 48, 50, 102].

Plus globalement, le concept d'ajuster sa structure par l'introduction ou la suppression de défauts dans le but de créer une zone précise d'intensité maximale ou au contraire de créer une zone locale d'intensité nulle débouche

sur la réalisation de fonctionnalités prometteuses telles que du piégeage plasmonique, de la microscopie de surface ou encore de l'exaltation d'effets non linéaires ou de fluorescence au sein de cavités plasmoniques.

Les applications potentielles évoquées nécessitent deux choses : un profil du flux plasmonique bien précis d'une part, ce qui demande l'optimisation des propriétés optiques du faisceau plasmon de surface et dont nous venons de voir une approche possible, et d'autre part la possibilité d'obtenir des intensités suffisantes, ce qui repose cette fois sur l'optimisation de l'efficacité de couplage des dispositifs sources. C'est précisément ce dernier point que nous allons à présent aborder au niveau élémentaire du défaut unique.



Chapitre 6

Fentes sources

*Génération de plasmons de surface par des fentes uniques
sublongueurs d'onde :
du mode de fente au mode d'arête*

Introduction

L'étude de défauts locaux uniques est cruciale pour améliorer notre compréhension des mécanismes de base de génération des plasmons de surface par des nanostructures : le défaut local constitue en effet le niveau élémentaire d'une structure périodique telle que les réseaux sources étudiés précédemment. Se concentrer sur des défauts uniques présentant une dimension inférieure à la limite de diffraction optique revêt un intérêt fondamental mais aussi pratique, notamment pour l'élaboration de fonctionnalités plasmoniques nécessitant des composants les plus compacts et efficaces possible.

La génération de plasmons de surface par des fentes uniques a été étudiée avec un microscope de champ proche optique et dans le cas de largeurs de fente allant de dimensions sublongueurs d'onde jusqu'à plusieurs microns [103]. Toutefois, par analogie avec ce que l'on peut constater dans le cas des antennes lorsque les dimensions du système sont variées, on s'attend à observer deux régimes différents suivant que la largeur de fente est inférieure

ou supérieure à la moitié de la longueur d'onde d'illumination. En d'autres termes, on peut se demander à juste titre si le mécanisme de lancement des plasmons de surface est déterminé par l'allure globale de la fente, celle-ci agissant comme un tout dans le cas de dimensions faibles devant la longueur d'onde, ou par les arêtes des bords de la fente, celles-ci agissant individuellement dans le cas contraire. Pour répondre à cette question, nous allons ici considérer plus particulièrement des fentes de largeurs inférieures ou égales à la longueur d'onde d'illumination. De plus, cette gamme de largeurs revêt un intérêt pratique dans le contexte de circuit photoniques fortement intégrés qui nécessitent des composants aux dimensions compactes. Dans ce chapitre, les mesures sont réalisées en champ lointain, en utilisant un microscope optique à champ de fuite développé à cette occasion dans le cadre de la thèse, et qui permet notamment d'imager dans l'espace réciproque la figure d'émission de la fente source et des plasmons de surface excités. Cette méthode est similaire à celle utilisée pour la caractérisation de l'efficacité de couplage de trous sublongueurs d'onde uniques [96].

6.1 Expérience

Les fentes sources ont été réalisées par FIB dans des films d'or épais de 60 nm préparés sur des substrats de verre BK7 par pulvérisation cathodique. La longueur des fentes est fixée à 20 μm tandis que leur largeur est variée de 70 nm à 1 μm (figure 6.1). L'illumination est réalisée du côté de l'interface air-métal en utilisant un objectif de focalisation d'ouverture numérique égale à 0.40 et en travaillant à une longueur d'onde de 785 nm. Le spot obtenu possède une largeur à mi-hauteur de 1 μm , une condition acceptable pour faire l'hypothèse d'une illumination uniforme de la fente sur tout l'intervalle de largeur considéré. La polarisation incidente est orientée perpendiculairement aux fentes. Le système de collection de l'onde propagative de fuite à laquelle se couplent les plasmons de surface correspond au montage décrit dans le chapitre 4. Afin d'imager la distribution de vecteurs d'onde de la lumière transmise par les structures et d'en déduire l'efficacité de couplage de la lumière aux plasmons de surface, nous avons enregistré la distribution d'in-

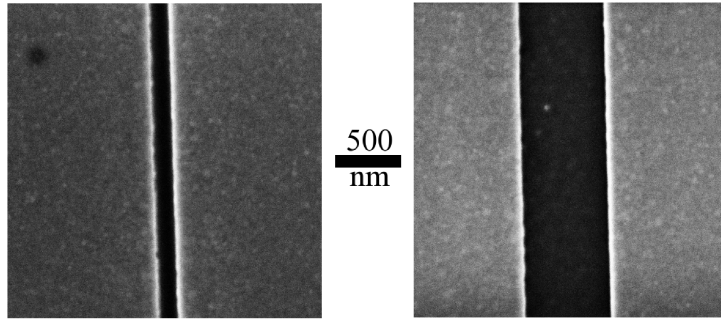


FIGURE 6.1 – Images SEM donnant un aperçu d’une fente de largeur 110 nm (à gauche) et d’une fente de largeur 660 nm (à droite). Dans les expériences, la longueur des fentes est de $20\ \mu\text{m}$ et leur largeur est variée de 70 nm à $1\ \mu\text{m}$.

tensité observée dans le plan Fourier du système de collection. Le dispositif de collection et d’illumination est schématisé sur la figure 6.2(a).

6.2 Observations dans l’espace réciproque

Une mesure typique de la distribution d’intensité observée dans le plan Fourier du microscope à champ de fuite est présentée sur la figure 6.2(b). Les lignes circulaires brillantes observées en bord de champ constituent la signature de la résonance plasmon de surface et leur distance au centre correspond à $\Re(k_{ps})$. Le reste du signal est une convolution entre une fonction *disque*, qui correspond à la transformée de Fourier du spot d’Airy de l’excitation, et d’une fonction *sinus cardinal*, transformée de Fourier de l’ouverture rectangulaire.

Le profil angulaire de l’intensité des plasmons de surface le long de l’anneau brillant est représenté sur la figure 6.3. Il s’agit d’une mesure directe de la divergence angulaire du faisceau plasmon de surface lancé par la fente source le long de la surface métallique. On remarque que la divergence du faisceau est limitée par l’ouverture numérique de l’objectif d’illumination. Ceci est en accord avec de précédentes observations [104, 105] et peut se comprendre facilement en raisonnant dans l’espace réel : la divergence du

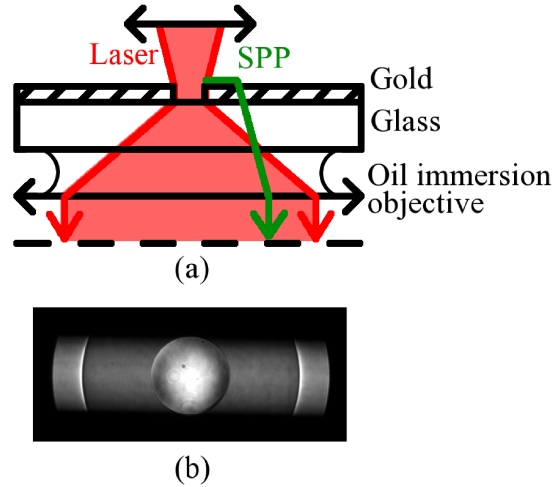


FIGURE 6.2 – (a) Vue schématique du dispositif de mesure, qui illustre la collection simultanée de la lumière diffractée par la fente et de l’onde radiative dans laquelle se découplent les plasmons de surface de l’interface supérieure. (b) Une image optique typique de la distribution d’intensité correspondante, observée dans le plan Fourier du système de collection.

faisceau plasmon dépend de la portion de la fente qui intercepte le champ incident, autrement dit de la taille du spot d’illumination qui est reliée à l’ouverture numérique de l’objectif utilisé. Plus la partie illuminée de la fente est petite, plus on se rapproche de la figure d’émission en \cos^2 typique d’un point source. Inversement, un objectif d’illumination de faible ouverture numérique éclaire une partie étendue de la fente source. Les interférences entre les plasmons de surface émis tout du long de la partie illuminée de la fente provoquent une diminution de la divergence de l’émission des plasmons de surface [106].

Pour étudier l’influence de la largeur de fente sur l’intensité de la résonance plasmon de surface, nous avons enregistré l’intensité observée dans le plan Fourier du microscope à champ de fuite dans les mêmes conditions d’illumination pour toutes les structures, et nous y avons effectué des coupes radiales perpendiculairement à l’axe des fentes. La figure 6.4 présente les résultats obtenus. Fait important, on observe que l’intensité de la résonance plasmon de surface ne suit pas une évolution monotone en fonction de la largeur de fente, ce qui s’associe à une modulation de l’efficacité de couplage de

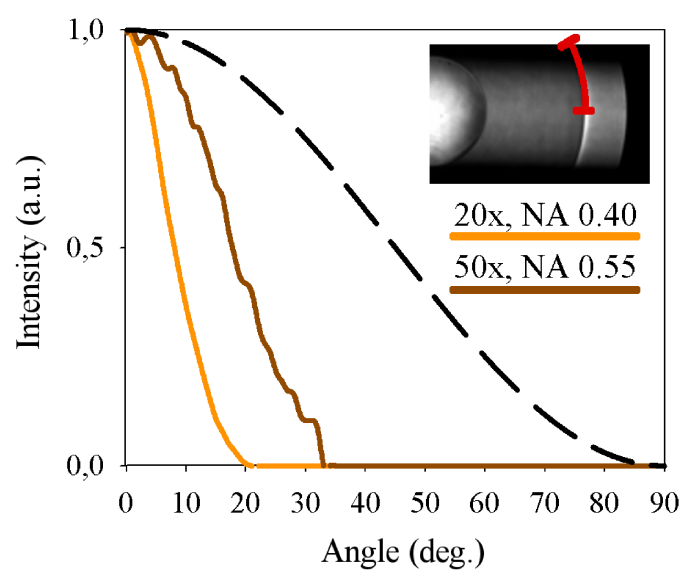


FIGURE 6.3 – Distribution angulaire de l'intensité des plasmons de surface : en pratiquant des coupes radiales sur la distribution d'intensité enregistrée dans le plan Fourier (incrustation), on relève l'intensité de la résonance associée aux plasmons de surface en fonction de leur angle d'émission par rapport à la normale à la fente. La mesure est faite pour deux objectifs d'illumination différents. La courbe orange (respectivement marron) est obtenue avec un objectif d'ouverture numérique 0.40 (0.55) correspondant à une acceptation angulaire de 23.6° (33.4°). À titre de comparaison, les tirets représentent le profil d'intensité typique d'un motif d'émission dipolaire en \cos^2 .

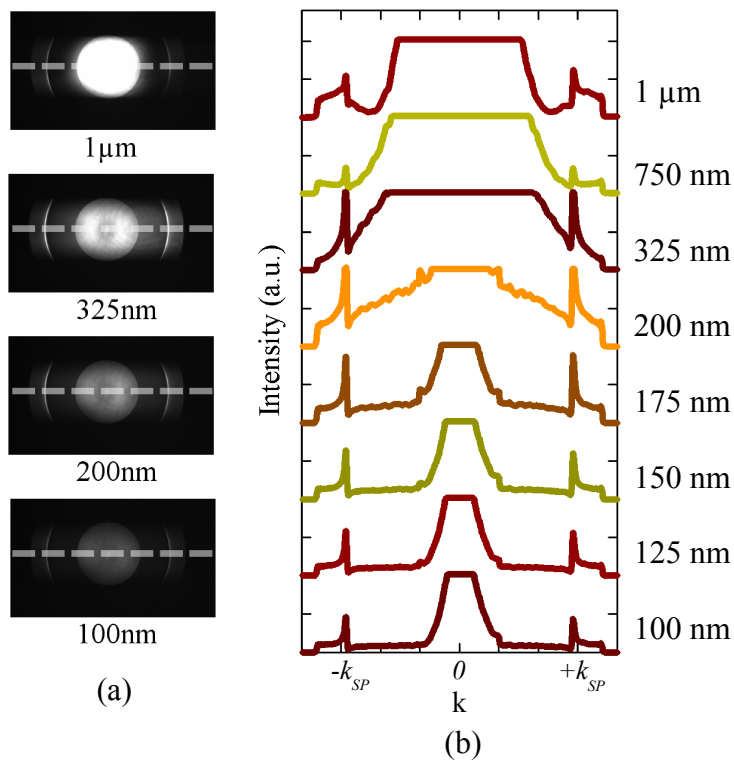


FIGURE 6.4 – (a) Distributions d'intensité observée dans le plan Fourier pour différentes largeurs de fentes. (b) Coupes radiales, effectuées perpendiculairement à l'axe des fentes. Les conditions d'illumination et le temps d'exposition sont les mêmes pour toutes les mesures.

la lumière aux plasmons de surface. Afin de quantifier cette efficacité, il est nécessaire de tenir compte de la contribution de la lumière diffractée par la fente dans la mesure où celle-ci interfère dans le champ lointain avec la contribution due au découplage radiatif des plasmons de surface dans le substrat. Si cette dernière contribution était la seule, sa distribution radiale d'intensité dans le plan Fourier suivrait un profil de lorentzienne centrée en $\Re(k_{ps})$ et de largeur à mi-hauteur égale à $2\Im(k_{ps})$. Les données expérimentales de la figure 6.4(b) montrent en revanche des profils d'intensité asymétriques présentant tous bien un maximum en $\Re(k_{ps})$, mais une décroissance exponentielle aux vecteurs d'onde supérieurs et un plongeon aux vecteurs d'onde inférieurs, ce qui résulte en une largeur à mi-hauteur très inférieure à la valeur $2\Im(k_{ps})$ attendue. Ces profils asymétriques s'expliquent par une interférence de type Fano entre une contribution directe, la lumière diffractée par la fente, et une contribution indirecte, le découplage radiatif dans le substrat des plasmons de surface se propageant à l'interface supérieure.

6.3 Modélisation

Il est possible de reproduire l'allure observée dans la figure 6.4 pour la distribution d'intensité dans le plan Fourier en utilisant un modèle simple qui prend en compte les deux contributions, directe et indirecte. L'amplitude du champ électrique total E_{total} dans le plan de sortie de l'ouverture diffractante peut s'écrire comme la somme de la transmission directe de la lumière E_{direct} et de la radiation de fuite $E_{leakage}$ provenant des plasmons de surface, telle que

$$E_{total} = E_{direct} + E_{leakage}. \quad (6.1)$$

On obtient E_{direct} à partir du champ incident E_{in} , modélisé par une tâche d'Airy reproduisant la réponse percussionnelle théorique (limitée par la diffraction) de l'objectif de focalisation et multiplié par la fonction pupille $\tau_{structure}$ de l'ouverture diffractante. Cette dernière a la forme d'une fonction rectangle, égale à l'unité au niveau de l'ouverture (élargie par la profondeur de pénétration du champ électrique dans le métal) et à une valeur complexe

au niveau du métal, évaluée d'après des valeurs expérimentales tabulées des constantes diélectriques du métal [93]¹. Pour chaque largeur de fente étudiée, l'amplitude du champ diffracté par la fente est ajustée sur les données expérimentales à l'aide d'un paramètre libre α . La contribution $E_{leakage}$ se déduit directement du champ E_{ps} associé aux plasmons de surface se propageant à l'interface supérieure, multipliée par le coefficient de transmission complexe τ_{film} , calculé d'après la relation de dispersion des plasmons de surface [105]. Pour un film d'or d'une épaisseur de 60 nm illuminé à 785 nm, nous trouvons $\tau_{film} = 0.076641 \exp(-i1.05052)$. Le champ E_{ps} est évalué à partir du champ E_{in} en utilisant le modèle de diffusion par des points sources secondaires dipolaires, basé sur le principe d'Huygens-Fresnel, introduit dans le paragraphe 5.1. Dans le cas présent, nous prenons en compte une différence de phase supplémentaire $\exp(-ik_{ps}w/2)$ due au déplacement de la position des bords de la fente par rapport à son centre lorsque la largeur de fente w évolue. Pour chaque largeur de fente, la dépendance du champ E_{ps} par rapport au champ E_{in} est ajustée sur les mesures expérimentales à l'aide d'un paramètre libre β . Le champ total E_{total} collecté par le microscope à champ de fuite est défini dans la relation (6.1) comme la somme cohérente des deux contributions précédemment décrites, et l'intensité $I_{Fourier}$ observée dans le plan Fourier s'écrit finalement

$$\begin{aligned} I_{Fourier} &= |\text{TF}(E_{direct} + E_{leakage})|^2 \\ &= |\text{TF}(\alpha\tau_{structure}E_{in} + \beta\tau_{film}E_{ps} \exp(-ik_{ps}w/2))|^2. \end{aligned} \quad (6.2)$$

On pourra éventuellement prendre en compte la réponse du système de collection en effectuant une convolution entre le champ E_{total} collecté et la réponse percussionnelle du système de collection. La figure 6.5 propose une illustration des calculs effectués et permet d'appréhender dans l'espace direct aussi bien que dans l'espace réciproque les différents phénomènes qui conduisent aux images observées dans cette expérience.

1. Bien entendu, la connaissance exacte du champ dans le plan de sortie de la structure diffractante est un problème beaucoup plus complexe (dimensions sublongueurs d'onde et profondeur de l'ouverture, propriétés de l'écran, etc.) qui doit impérativement être abordé avec des méthodes numériques ou analytiques rigoureuses.

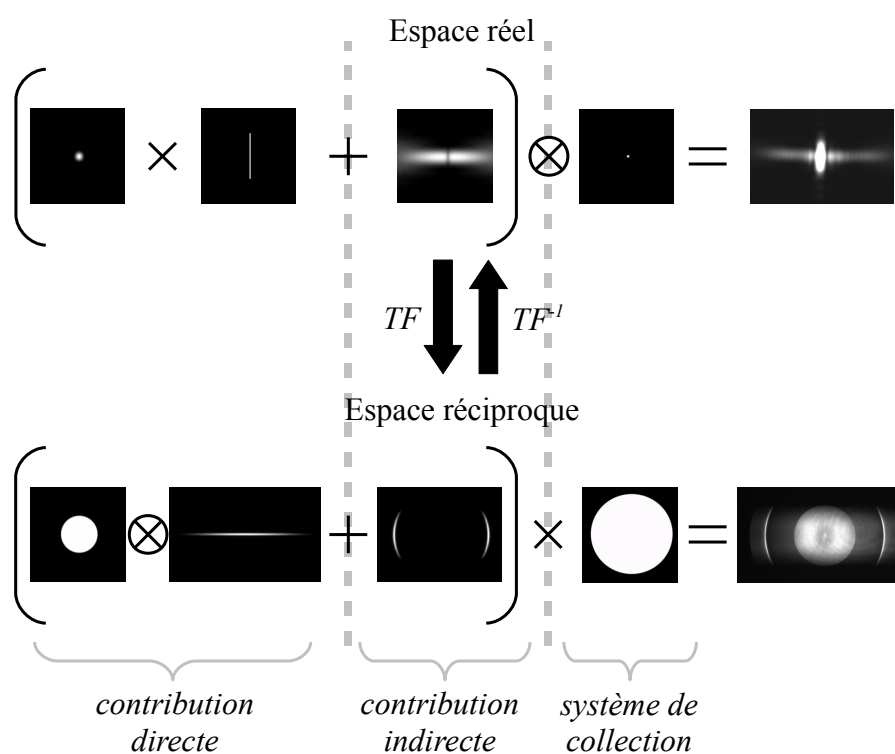


FIGURE 6.5 – Illustration de l’origine des images observées dans l’expérience. Les images à gauche des égalités sont calculées, les résultats sont expérimentaux. Sont représentées ici de façon didactique des distributions d’intensité, mais dans la pratique c’est bien la somme cohérente des champs des différentes contributions qui doit être considérée.

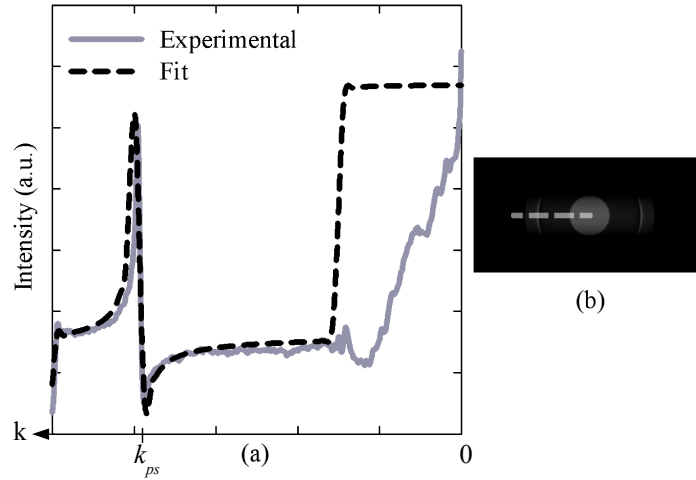


FIGURE 6.6 – Distribution d'intensité dans le plan Fourier calculée dans le cas d'une fente de largeur 100 nm et ajustée à la mesure expérimentale correspondante. (a) Comparaison des coupes radiales et (b) calcul réalisé dans tout le plan Fourier. La différence, observée dans la région centrale, entre l'expérience et le modèle provient des hypothèses du modèle concernant le champ directement diffracté par l'ouverture et d'effets d'interférences dans l'expérience. Toutefois, ceci n'a pas de conséquence dans notre analyse de la résonance plasmon de surface dans la mesure où notre approche théorique sépare les deux contributions.

Bien que différents modèles plus réalistes et rigoureux ont été proposés pour décrire la dynamique de diffusion des plasmons de surface à partir d'une fente sublongueur d'onde [95, 107], notre approche simple se révèle particulièrement bien adaptée pour reproduire les images optiques obtenues expérimentalement. Jouer sur les valeurs des paramètres d'ajustement α et β revient à balancer le poids de chacune des deux contributions qui leur est associée, en d'autres termes à jouer sur la visibilité de la résonance plasmon de surface par rapport au champ directement diffracté par l'ouverture. La figure 6.6 donne un exemple de résultat obtenu à partir de la relation (6.2) et ajusté à la mesure expérimentale obtenue pour la largeur de fente considérée. Comme indiqué précédemment, si la contribution indirecte des plasmons de surface était la seule présente, la largeur à mi-hauteur de la lorentzienne correspondante observée dans le plan Fourier serait donnée par la partie imaginaire de

leur relation de dispersion, comme en font état les références [23, 47, 105]. En raison de l'interférence entre cette contribution plasmons de surface et la contribution directe de la lumière diffractée par l'ouverture, nous obtenons un profil bien plus étroit et asymétrique, ce que le modèle parvient bien à reproduire. Le bon accord entre la relation (6.2) et l'expérience nous permet, pour chaque fente, d'extraire des mesures l'efficacité de couplage η qui est donnée par le rapport β/α .

6.4 Efficacité du couplage

Pour chaque largeur de fente, nous avons relevé sur la distribution d'intensité enregistrée dans le plan Fourier la valeur du pic correspondant à la résonance plasmon de surface. Parallèlement, nous avons ajusté les résultats de l'équation (6.2) aux mesures expérimentales afin d'en déduire η en fonction de la largeur de fente. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 6.7, qui montre clairement une valeur optimale de l'efficacité de couplage pour une largeur de fente de 300 nm, inférieure à la moitié de la longueur d'onde d'illumination. On peut remarquer que cette largeur de fente est consistante avec le maximum de la puissance diffractée à k_{ps} par une fente de largeur w variable ($|\text{TF}(\tau_{structure}(w)E_{in})|^2_{k=k_{ps}}$, comme le montre le calcul de la densité spectrale de puissance évaluée à k_{ps} en tenant compte des conditions d'illumination (courbe en tirets sur la figure 6.7(b)). Ces tracés permettent par la même occasion d'identifier deux régimes différents. Pour les largeurs inférieures à la moitié de la longueur d'onde d'illumination, η suit l'évolution de la puissance diffractée par la structure à k_{ps} . Dans le cas de fentes plus larges, l'efficacité de couplage de la lumière aux plasmons de surface dévie significativement de la courbe de puissance et tend vers une valeur constante. L'extension dans l'air du champ associé aux plasmons de surface se propageant à 785 nm sur une interface air-or est de l'ordre de 700 nm. Au-delà, on peut associer l'efficacité de couplage à celle d'un bord isolé de la fente, qui dans ce régime conserve la même valeur quelle que soit alors la largeur de la fente.

Ces observations peuvent apparaître relativement différentes des résultats

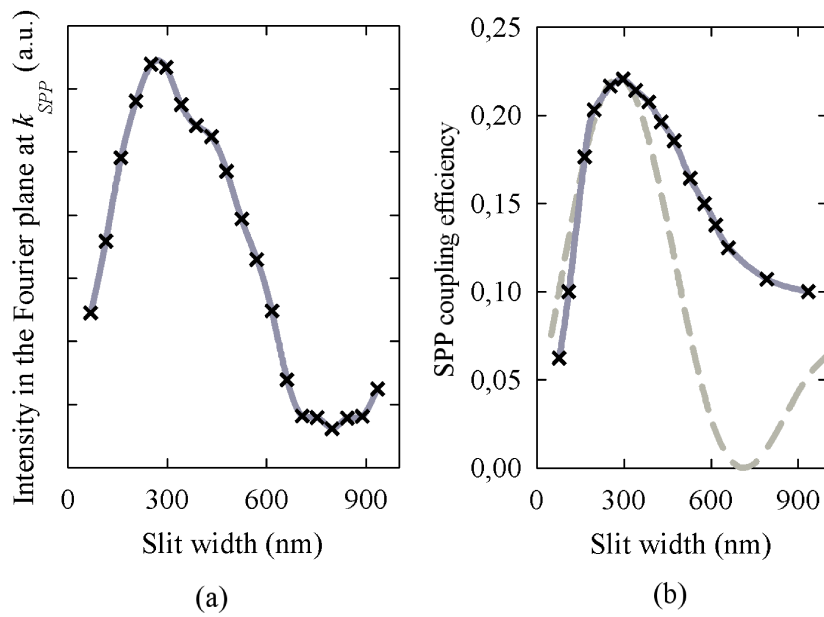


FIGURE 6.7 – (a) Intensité mesurée de la résonance plasmon de surface et (b) efficacité de couplage $\eta = \beta/\alpha$ de la lumière aux plasmons de surface en fonction de la largeur de fente. La ligne en tirets dans (b) est la valeur de la densité spectrale de puissance diffractée par la fente et évaluée à $k = \Re(k_{ps})$, en fonction de la largeur de fente et normalisée par le maximum de η .

expérimentaux présentés dans la référence [103], mais ces différences pourraient s'expliquer en raison des conditions d'illumination et de collection propres à ces expériences, réalisées en champ proche optique. L'efficacité de génération des plasmons de surface a également été étudiée théoriquement mais dans le cas de fentes profondes pour lesquelles entrent en jeu des résonances de type Fabry-Perot [107], rendant la comparaison difficile. De façon consistante avec nos résultats, néanmoins, on pourra remarquer que l'efficacité maximale s'obtient également pour des fentes de largeur sensiblement inférieure à la demi-longueur d'onde d'illumination. Enfin, l'efficacité maximale du couplage observée dans le cas de nos fentes sources, de l'ordre de 20 à 25%, est du même ordre de grandeur que les valeurs maximales observées dans le cas de trous sources uniques [96].

Pour terminer, il convient également de remarquer sur la figure 6.4(b) que dans le cas des fentes de largeur inférieure à la demi-longueur d'onde d'illumination, l'intensité de la résonance plasmon de surface reste très supérieure au signal de fond dû à la diffraction directe par l'ouverture (environ 5 fois supérieure pour une fente de 70 nm de largeur, à titre d'exemple). De plus, toujours pour ces fentes de largeur sublongueur d'onde, on constate que le premier zéro du *sinus cardinal* de la figure de diffraction est rejeté à de grandes valeurs de k situées loin du centre du plan Fourier et par conséquent totalement à l'extérieur de l'angle de collection de tout système optique classique opérant en champ lointain. Ces observations indiquent d'une part qu'il est possible d'obtenir une bonne efficacité de couplage aux plasmons de surface même avec des structures aux dimensions très compactes, et donnent d'autre part une illustration originale de l'argument qui prête aux plasmons de surface un pouvoir de résolution accru. Ainsi, lorsqu'il n'est plus possible de distinguer optiquement des fentes de différentes largeurs très inférieures à la longueur d'onde, on pourrait en revanche imaginer une comparaison de l'intensité des résonances plasmon de surface au niveau de ces structures.

6.5 Observations dans l'espace direct

Les propriétés optiques des faisceaux plasmons de surface lancés par des fentes sources ont été étudiées dans certaines configurations particulières d'illumination ou de géométrie de la fente [104, 105, 95]. Dans le paragraphe 6.2, nous avons eu l'occasion de déterminer de façon très précise la divergence du faisceau à partir de la distribution d'intensité dans le plan Fourier, puis de constater qu'elle était liée à l'ouverture numérique et donc à la taille du spot de l'illumination. Nous avons ainsi pu esquisser le lien direct qui existait avec l'idée développée dans le chapitre 5 suivant laquelle la divergence du faisceau était liée à l'extension géométrique de la structure source suivant la direction perpendiculaire à l'axe optique défini par la direction de propagation des plasmons de surface. Il est par conséquent intéressant de se pencher un peu plus en détails sur ces similitudes en observant dans l'espace réel l'allure du faisceau lancé par les fentes sources en la comparant au résultat du modèle (5.2) (qui correspond à la contribution indirecte des plasmons de surface dans (6.2)) basé sur le principe d'Huygens-Fresnel.

La figure 6.8(a) montre l'allure du faisceau plasmon observé et la simulation correspondante, dans les conditions expérimentales utilisées pour l'étude de l'efficacité de couplage (spot d'illumination de $1 \mu\text{m}$ de largeur à mi-hauteur). On constate un très bon accord entre le calcul et l'expérience, à l'exception bien sûr de la distribution d'intensité au niveau de la structure, la contribution directe n'étant plus prise en compte dans le calcul. La figure 6.8(b) montre cette fois un calcul réalisé en considérant une illumination uniforme de la structure : de façon consistante avec les observations précédentes, notamment du chapitre 5, on observe un faisceau à l'allure convergente présentant un motif d'interférence complexe et contrasté à proximité de la structure. Nous avons vérifié que ce motif d'interférence n'était pas un artefact du calcul dû à la discrétisation de la fente source par des points sources : nous avons tout d'abord effectué le calcul en montant en résolution et nous avons ainsi pu nous assurer qu'un échantillonnage de la fente à l'aide d'un plus grand nombre de points source ne modifiait plus le résultat obtenu, après quoi nous avons effectué une vérification expérimentale.

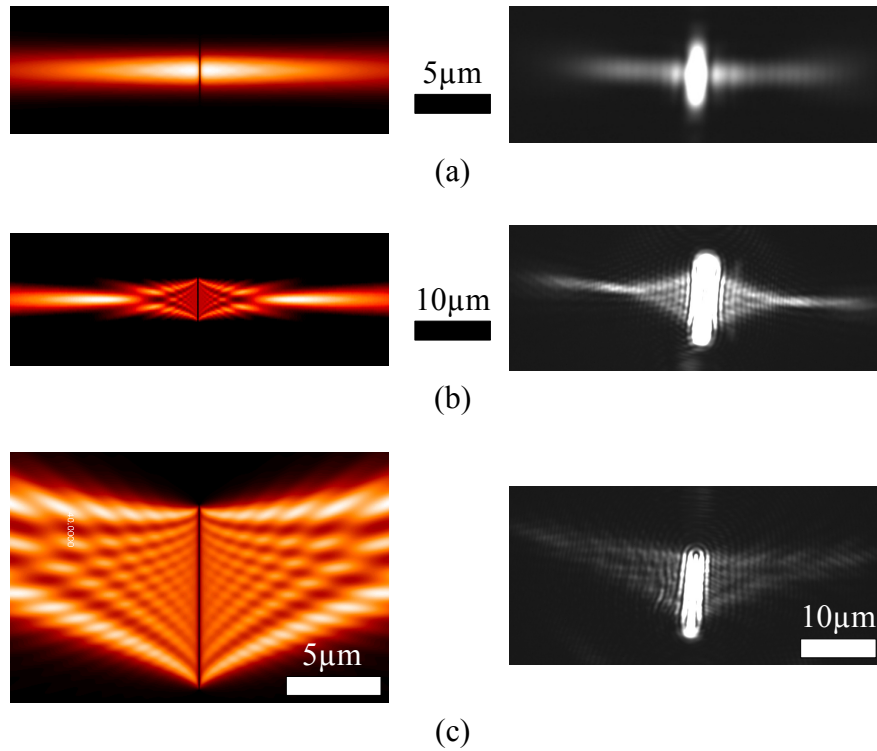


FIGURE 6.8 – Distributions d'intensité du faisceau plasmon dans l'espace réel. (a) Calcul et expérience (image en champ de fuite) pour une fente de $20 \mu\text{m}$ de longueur, éclairée par un spot d'illumination de $1 \mu\text{m}$ de largeur à mi-hauteur. (b) Calcul et expérience (image de fluorescence) pour une fente de $10 \mu\text{m}$ de longueur, éclairée uniformément en incidence normale. (c) Idem que (b) mais avec une illumination oblique à 10° , le plan d'incidence étant le long la fente.

tale de ce phénomène. Pour cela, nous avons utilisé une fente raccourcie de moitié (longueur $10 \mu\text{m}$) et un objectif de focalisation de très faible ouverture numérique afin d'être en mesure d'illuminer uniformément la fente sur toute sa longueur. Dans ces conditions d'illumination large, la contribution directe est telle qu'elle a tendance à totalement aveugler la détection lorsque le film métallique n'est pas opaque : nous sommes donc passé à un film d'or épais de 160 nm . Une telle épaisseur ne permet plus de collecter un signal de radiation de fuite des plasmons de surface suffisant, et il a également fallu adapter la détection à son tour : nous avons cette fois imagé la distribution d'intensité des plasmons de surface par l'utilisation d'une espèce fluorescente incluse dans une matrice polymère répandue uniformément sur la surface métallique par spin coat. Le résultat expérimental obtenu est présenté sur la figure 6.8(b) et montre bien l'existence de ce motif d'interférence à proximité de la structure. Par la suite, nous sommes également parvenus à le visualiser sur film mince et par microscopie en champ de fuite, en effectuant un filtrage des fréquences spatiale de manière à supprimer la forte contribution directe : on pourra consulter l'annexe C pour voir que le résultat obtenu par cette approche est similaire. La figure 6.8(c) montre par ailleurs qu'il est possible de faire varier la direction du faisceau en jouant sur l'angle d'incidence de la structure (ici, la fente est contenue dans le plan d'incidence de l'illumination). Autrement dit, le faisceau se construit par interférences dans une direction qui est fonction de la phase initiale des plasmons de surface.

Nous avons également comparé les résultats donné par le modèle (5.2) au modèle scalaire de la diffraction établi par Rayleigh et Sommerfeld

$$E(x, z_0+d) = TF^{-1}(TF(E(x, z_0))H(\nu)) \quad \text{avec} \quad H(\nu) = \exp(2i\pi\sqrt{1/\lambda^2 - \nu^2}) \quad (6.3)$$

La comparaison des résultats est présentée sur la figure 6.9 et montre un accord parfait des deux méthodes, même à proximité de l'ouverture. Précisons que l'utilisation de l'approximation de Fresnel pour décrire le propagateur H du modèle de Rayleigh et Sommerfeld d'une part, ou encore l'utilisation du modèle d'Huygens-Fresnel sans le terme d'efficacité de couplage de la polarisation incidente qui provoque le motif d'émission dipolaire d'autre part,

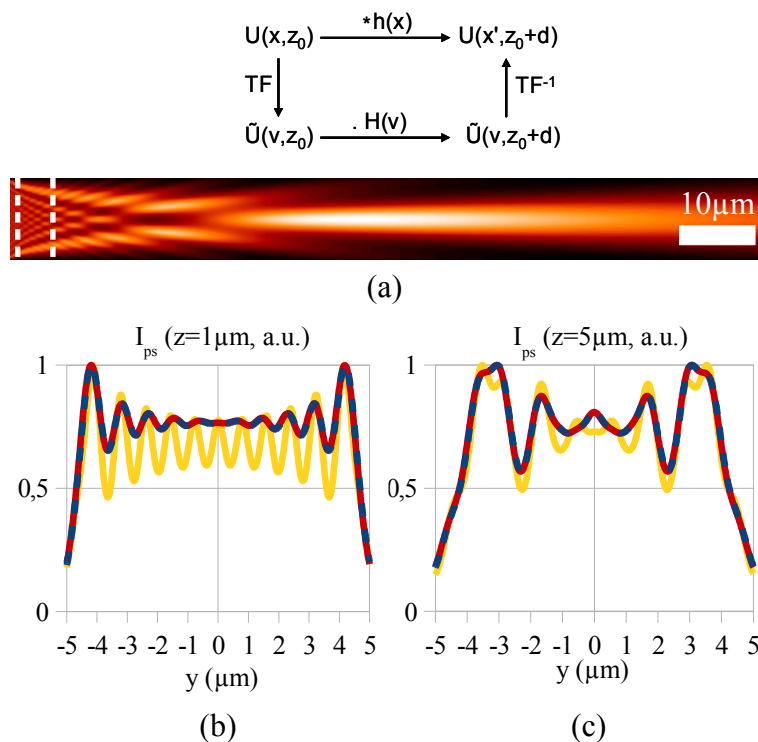


FIGURE 6.9 – (a) Résultat du calcul de la diffraction par une fente par le modèle de Rayleigh et Sommerfeld (terme propagateur H sans approximation). (b) et (c) Comparaisons du modèle Rayleigh-Sommerfeld (courbes rouges) et du modèle Huygens-Fresnel avec (courbes bleues) et sans terme dipolaire (courbes jaunes), respectivement à $1 \mu\text{m}$ et $5 \mu\text{m}$ de distance de la fente source.

mènent tous deux à des résultats présentant cette fois des différences à proximité de la source avec les résultats présentés dans la figure 6.9. La similitude des résultats observés semblent donc provenir de l'introduction de ce terme d'efficacité de couplage, qui joue le rôle d'un facteur d'obliquité et permet d'éviter l'erreur de phase qui apparaît aux grands angles dans le cadre de l'approximation de Fresnel.

Conclusion

Ce chapitre nous a permis de nous pencher sur le mécanisme de lancement de plasmons de surface propre à une structure composée non plus de défauts périodiques comme dans le cas des réseaux sources, mais d'un défaut local unique. Deux régimes distincts ont pu être identifiés, le premier dépendant de la largeur de la structure lorsque celle-ci agit comme un tout, le second indépendant de la largeur de la structure lorsque ses bords sont suffisamment éloignés pour être découplés, et la transition entre ces deux régimes s'est située à une valeur de la largeur de fente égale à la demi-longueur d'onde d'illumination. La réalisation de cette étude a nécessité la mise au point d'un système de microscopie à champ de fuite qui a révélé la puissance et l'élégance de cette technique de mesure. Elle a également demandé de compléter le modèle Huygens-Fresnel, initialement développé dans le cadre de l'étude des réseaux sources, par la prise en compte de la contribution directe de la lumière diffractée par la structure, ce qui a permis de faire apparaître la résonance de type Fano qui en découle et qui s'observe dans bien d'autres situations expérimentales.

Chapitre 7

Optiques réfractives

*Micro-optiques 2D pour focaliser et dévier le flux plasmonique :
des composants classiques vers les métamatériaux*

Introduction

Après avoir étudié et optimisé l'émission de plasmons de surface par différentes structures sources, l'étape suivante consiste logiquement à contrôler la propagation des plasmons de surface lancés le long de la surface métallique. Plusieurs approches ont été proposées et réalisées dans ce contexte, par le biais par exemple de structures à bande interdite ou de composants diffractifs tels que des réseaux zonés de Fresnel ou des miroirs de Bragg [52, 108, 45, 46]. Le contrôle exercé par les structures diffractives sur la distribution d'intensité du faisceau plasmon de surface s'effectue dans le même esprit que dans le cas des réseaux sources étudiés au chapitre 5, c'est-à-dire au moyen d'une interférence contrôlée entre les plasmons de surface diffractés par les défauts locaux de la structure. C'est ainsi qu'un miroir de Bragg va, pour une période, une longueur d'onde et un angle d'incidence donnés, permettre d'accorder les phases des plasmons de surface diffractés en différents points de la structure, donnant lieu à une interférence positive qui reconstruit le faisceau plasmon de surface dans une direction particulière. Dans ce chapitre, nous nous intéresserons à des structure réfractives dont le principe de fonctionnement est

autre. L'idée de base est ici d'exploiter le phénomène de réfraction observé à l'interface entre deux milieux d'indices optiques n et n' différents, suivant la loi de Snell-Descartes bien connue $n \sin(\theta) = n' \sin(\theta')$ qui donne l'angle d'émergence θ' du faisceau réfracté en fonction de l'angle d'incidence θ sur le dioptre. La forme de ce dioptre permet alors de jouer sur le comportement de la structure : un dioptre sphérique permet ainsi de focaliser un faisceau incident, tandis qu'un dioptre plan tilté permet de le dévier. Par analogie avec l'optique classique, nous pouvons définir l'indice perçu par les plasmons de surface au niveau d'une interface métal-diélectrique donnée, à partir de leur relation de dispersion. Dans le cas de deux milieux semi-infinis, celle-ci est donnée par l'équation (2.34), ce qui conduit à écrire

$$(n_{ps})_{d-m} = \sqrt{\frac{\varepsilon_d \varepsilon_m}{\varepsilon_d + \varepsilon_m}}. \quad (7.1)$$

Cette relation montre que si l'on dispose d'un moyen de faire varier localement la constante diélectrique d'au moins un des deux milieux, cette variation se répercutera au niveau de la valeur de l'indice perçu par les plasmons de surface et permettra de donner lieu à un contraste d'indice propice aux effets réfractifs que l'on souhaite observer.

7.1 Optiques métalliques

Par le terme d'*optique métallique* nous entendons une optique qui tire son pouvoir réfractif d'une variation locale de la constante diélectrique du milieu métallique. L'approche la plus directe à laquelle on peut penser consisterait à remplacer localement le milieu métallique par un autre métal de constante diélectrique différente, dans l'esprit de ce qui sera réalisé dans la suite avec les optiques diélectrique. Dans la pratique néanmoins, cette approche se heurte à des difficultés techniques du point de vue de la réalisation de telles optiques : même en ayant recours à des procédés de lithographie électronique et de lift-off bien rodés, il sera difficile d'obtenir une planéité parfaite de la surface accessible à la mesure au niveau des dioptres de l'optique métallique, ceux-ci risquant de présenter une marche prononcée qui occasionnerait de ce fait une

forte diffraction des plasmons de surface, ce que l'on cherche à éviter. Une autre approche possible consiste à structurer localement le métal initial non pas pour provoquer un effet diffractif mais pour induire un indice effectif différent de celui du métal non structuré [109, 110]. Suivant cette idée, nous avons étudié dans quelle mesure l'introduction d'air, de constante diélectrique beaucoup plus faible en valeur absolue que celle du métal, par le biais d'ablations très localisées de la surface métallique, permet d'obtenir un milieu métallique effectif présentant une diminution de la constante diélectrique par rapport au métal non structuré. Deux conditions sur la structuration à réaliser s'imposent immédiatement : contrairement au cas des composants diffractifs, la perturbation apportée par les ablations pratiquées doit être suffisamment faible pour ne pas induire une diffusion des plasmons de surface d'une part, et d'autre part les fréquences spatiales de la structure doivent être grandes devant celle du plasmon de surface de sorte que celui-ci ne parvienne pas à résoudre les motifs de la structure. En d'autres termes, les variations de la constante diélectrique doivent idéalement être suffisamment locales et rapides pour ne pas être résolues par l'onde de surface qui se propage dans ce milieu mais au contraire moyennées : l'onde perçoit ainsi la structure comme un milieu homogène que l'on peut caractériser dans son ensemble par le biais d'une constante diélectrique effective.

Pour étudier les effets de la structuration du métal sur la propagation des plasmons de surface, nous avons commencé par considérer des défauts de taille et de périodicité comparable à la longueur d'onde associée aux plasmons de surface avant de les réduire au maximum. Comme illustré sur la figure 7.1, nous avons utilisé le dispositif source-sonde, introduit dans le chapitre 5, afin de caractériser deux structures périodiques de trous sublongueur d'onde. Le métal utilisé est un film d'or de 160 nm d'épaisseur. Ces premières structures ont toutes deux une grande période : 500 nm pour la première, valeur que nous avons voulue inférieure à la période typique de 760 nm utilisée au niveau des structures source-sonde et qui provoquerait le découplage radiatif des plasmons de surface lancés à 800 nm, mais toutefois supérieure à la période de Bragg typique qui provoquerait leur réflexion, et 300 nm

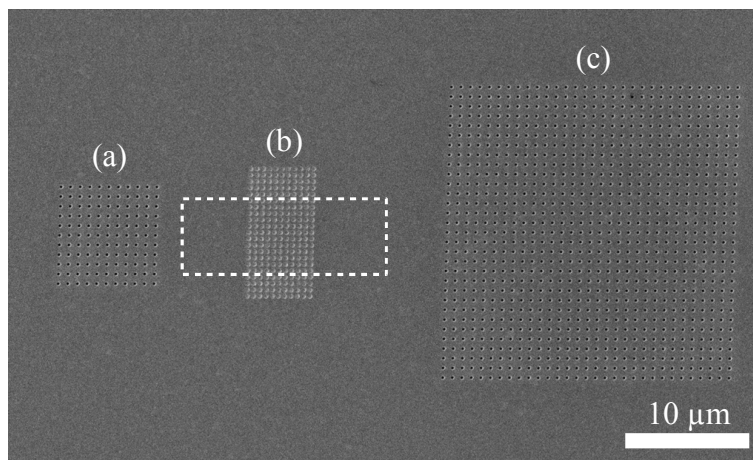


FIGURE 7.1 – Image SEM du dispositif expérimental mis en place sur l'échantillon. Le métal utilisé est un film d'or, épaisseur 160 nm. (a) Réseau source, 11×11 trous percés, période 760 nm, diamètre 250 nm, localement illuminé à 800 nm. (b) Structure à étudier, 21×11 trous, période et diamètre variables (500 nm de période pour un diamètre de 300 nm d'une part, et 300 nm de période pour un diamètre de 200 nm d'autre part), profondeur 100 nm. (c) Réseau sonde, 31×31 trous percés, période 760 nm, diamètre 250 nm. Les pointillés blancs correspondent à la zone où sont effectuées les mesures en champ proche optique présentées sur la figure 7.2.

pour la seconde, valeur qui se situe cette fois en-dessous de la période de Bragg. Les trous associés à ces deux structures font respectivement 300 nm et 200 nm de diamètre pour une profondeur commune de 100 nm. Le laser d'excitation à 800 nm est focalisé sur la structure source uniquement, à partir de laquelle sont lancés des plasmons de surface qui vont se propager vers la structure sonde en passant par la structure à étudier. Les mesures sont réalisées par microscopie en champ proche optique : la zone de l'échantillon qui est caractérisée est mise en évidence sur la figure 7.1, et les mesures obtenues avec chacune des deux structures étudiées sont présentées sur la figure 7.2. Lorsque les plasmons de surface rencontrent la sonde, une partie du flux est réfléchi, ce qui donne naissance à un motif d'interférence typique de deux faisceaux contra-propagatifs : on observe des franges parallèles dont l'interfrange est égale à la moitié de la longueur d'onde associée aux plasmons de surface. Dans la mesure où une variation d'indice optique se traduit par une variation de la longueur d'onde perçue dans le milieu, nous avons regardé comment évoluait cette interfrange à l'intérieur des structures réalisées. Dans les deux mesures réalisées, l'interfrange n'évolue pas de manière triviale mais on observe bien quelques modulations, notamment au niveau de l'intensité des franges d'interférences. Ainsi, dans le cas de la structure de plus grande période, le spectre de Fourier de la mesure met en évidence trois fréquences spatiales bien distinctes :

- la plus grande fréquence spatiale correspond à une période égale à la moitié de la longueur d'onde associée aux plasmons de surface excités, et que l'on s'attendait bien à observer. Lorsque l'on effectue un filtrage en ne gardant que cette fréquence spatiale, on remarque que ce signal s'observe sur toute la mesure, y compris dans la structure à étudier, ce qui indique que cette structure, comme on pouvait s'y attendre étant donné ses paramètres structurels, ne se comporte pas comme un milieu à indice effectif ;
- la fréquence spatiale intermédiaire correspond à une période égale à la période du réseau. Le signal associé est uniquement détectable à l'intérieur de la structure lorsque la mesure est filtrée en ne conservant que cette fréquence spatiale. C'est en outre le pic le plus intense du

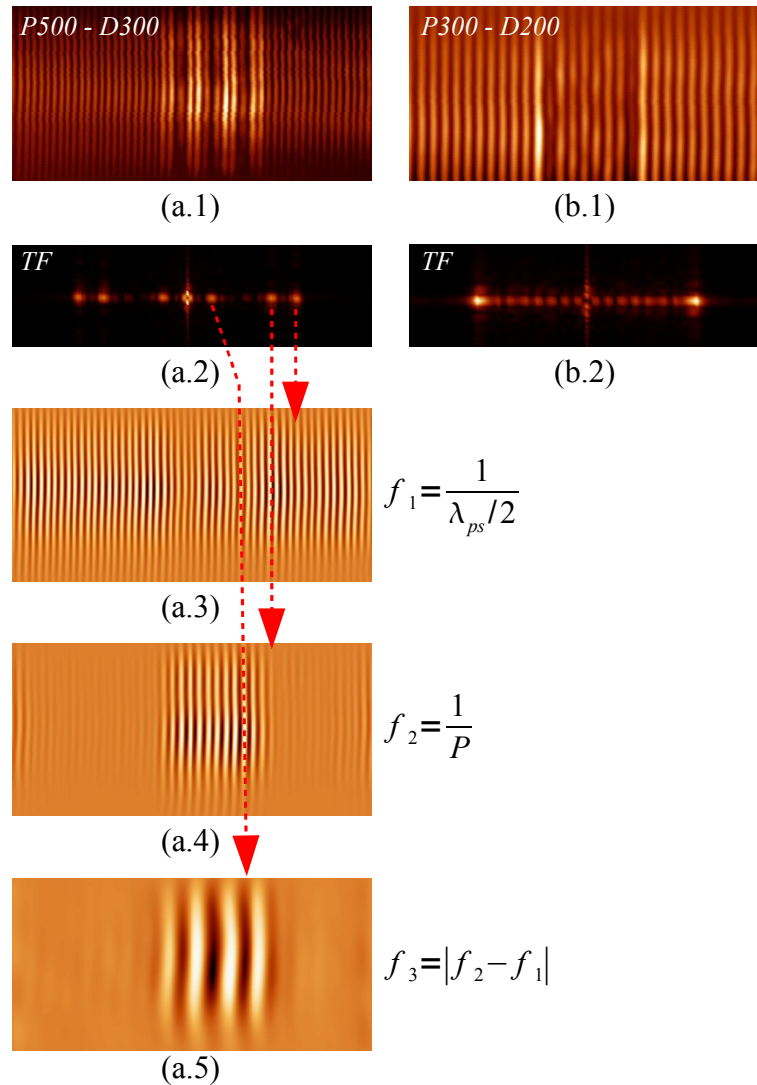


FIGURE 7.2 – Résultats des mesures de microscopie en champ proche optique pour les deux premières structures métalliques étudiées : (a.1) trous de période 500 nm, diamètre 300 nm, profondeur 100 nm et (b.1) trous de période 300 nm, diamètre 200 nm, profondeur 100 nm. (a.2), (b.2) Transformées de Fourier respectives. (a.3-4-5) Décomposition de (a.1) suivant les 3 composantes spectrales identifiées sur (a.2).

spectre de Fourier, et comme cette structure n'est pas illuminée par le laser d'excitation, on peut raisonnablement faire l'hypothèse que ce signal provient du découplage radiatif des plasmons de surface par les défauts de cette structure, qui sont suffisamment grands pour induire une perturbation non négligeable. Malgré cela, les plasmons de surface se propagent encore bien : la structure compte 10 périodes le long de la direction de propagation des plasmons de surface, or rappelons-nous que, toute proportion gardée quant à l'efficacité de découplage des trous, une dizaine de périodes suffisent sur le réseau sonde pour obtenir l'atténuation à $1/e^2$ en intensité du faisceau plasmonique. Les pertes radiatives causées par les trous sont donc ici relativement faibles, et il convient de plus de se rappeler que la période de la structure, qui n'est pas résonante pour le plasmon de surface lancé à 800 nm, n'est par conséquent pas favorable à leur découplage cohérent ;

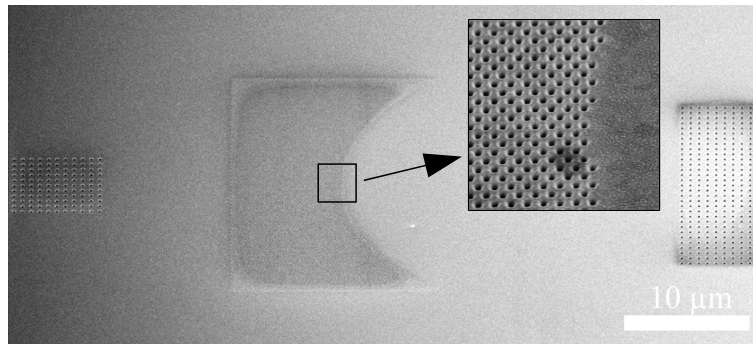
- la fréquence spatiale la plus basse correspond à un battement entre les deux signaux précédemment évoqués. Ce battement provoque un signal de fréquence égale à la différence¹ des fréquences des deux signaux impliqués. En ne conservant que cette fréquence spatiale, on observe bien que le battement est localisé au niveau de la structure, seul endroit où les deux signaux précédemment étudiés se recouvrent.

Cette première mesure ne montre aucune variation de la longueur d'onde associée aux plasmons de surface : les modulations observées sont dues à la diffusion de l'onde de surface sur les trous de la structure, ceux-ci agissant de manière isolée de sorte que l'approximation d'un milieu effectif est proscrite, ce qui est tout à fait consistant étant donnés les paramètres structurels utilisés. De façon analogue, la seconde structure, de période 300 nm, ne montre pas non plus une quelconque variation de la longueur d'onde associée aux plasmons de surface, comme en témoigne l'unique fréquence spatiale détectable sur le spectre Fourier de la mesure. Hormis au niveau des bords de la structure uniquement, on ne détecte plus de modulation d'intensité des franges d'interférence au sein de la structure : ceci peut s'expliquer

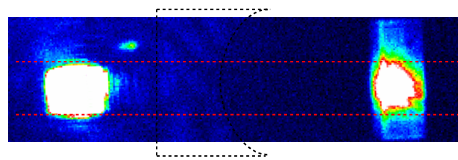
1. la mesure donne accès à l'intensité (les battements sont à $|f_1 - f_2|/2$ en amplitude et à $|f_1 - f_2|$ en intensité)

par les dimensions très sublongueur d'onde des trous utilisés qui, ne pouvant supporter de mode propre, ne se comportent pas comme des découpleurs efficaces [25, 111].

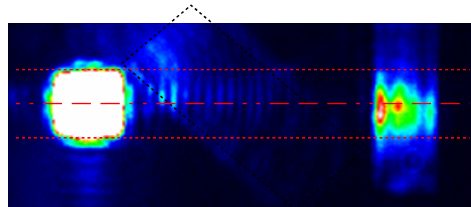
Cette dernière observation constitue malgré tout un point très intéressant : il apparaît donc possible, à l'aide de trous de dimensions suffisamment faibles, d'introduire de l'air dans le milieu métallique sans pour autant le transformer en découpleur. Reste alors à introduire suffisamment d'air pour parvenir à observer une variation d'indice par rapport au métal non structuré. En d'autres termes, nous allons à présent nous intéresser à une structure composée de trous de très faible diamètre mais avec un taux de remplissage maximum, ce dernier point étant synonyme de période très faible, condition précisément requise pour l'approximation d'un milieu effectif. Les structures réalisées pour cette seconde série de mesure sont constituées de trous de 50 nm de diamètre, percés dans toute l'épaisseur du film d'or et arrangé en maille triangulaire de 100 nm de période (figure 7.3(a)). Soulignons que, contrairement aux cas des optiques diffractives, les symétries du type de maille utilisée n'importent pas dans le cadre de la réalisation d'un matériau d'indice effectif : le choix effectué ici repose exclusivement sur la maximisation du taux de remplissage. Par ailleurs, il aurait été possible de diminuer encore la période de la structure, par exemple jusqu'à atteindre $\lambda_{ps}/10$, mais nous sommes limités à cette valeur afin de garder une interface bien plane entre les trous et d'éviter ainsi d'introduire une rugosité de surface supplémentaire. L'expérience est toujours réalisée à l'aide du dispositif source-sonde et dans les mêmes conditions d'illumination du réseau source, mais la mesure est cette fois effectuée en champ lointain à l'aide d'un microscope optique NIKON ECLIPSE TE200 équipé d'un détecteur à couplage de charges ultrasensible PRINCETON INSTRUMENT VERSARRAY 1300B. Nous n'avons donc plus accès au champ proche, en revanche on peut voir la structure sonde s'illuminer là où le faisceau plasmon de surface rencontre cette structure (figure 7.3(b) et (c)). Dès lors, si une structure qui permet par exemple de dévier le flux plasmonique est réalisée entre la source et la sonde, on obtient la signature de cette déviation par le biais du déplacement de la zone qui s'illumine au niveau de la structure sonde. Nous avons ainsi étudié une lame à face parallèle



(a)



(b)



(c)

FIGURE 7.3 – (a) Image SEM du dispositif expérimental mis en place sur l'échantillon. Les réseaux source et sonde ont les mêmes paramètres que sur la figure 7.1, la structure à étudier étant maintenant composée d'une maille triangulaire de trous percés, diamètre 50 nm, période 100 nm. Image en champ lointain optique (objectif 40x) de l'expérience avec une lentille plan-concave de rayon de courbure $30\ \mu\text{m}$ (b) et avec une lame à faces parallèles de $15\ \mu\text{m}$ d'épaisseur inclinée de 45° (c).

épaisse de $15 \mu\text{m}$ et tiltée de 45° par rapport à la direction de propagation des plasmons de surface (figure 7.3(c)). Une déviation de l'ordre de $1 \mu\text{m}$ a pu être observée, ce qui permet de remonter, à partir de la loi de Snell-Descartes, à un contraste d'indice entre la zone structurée et le reste du film métallique de

$$(n_{sp})_{air-structure}/(n_{sp})_{air-metal} = 0,96 \pm 0.02. \quad (7.2)$$

On constate que l'introduction d'air, d'indice diélectrique très inférieur à celui du métal en valeur absolue, a ici permis d'abaisser de quelques pour cent l'indice perçu par les plasmons de surface. On remarque en effet, en se basant sur le sens du déplacement de la zone d'illumination de la sonde et l'orientation de la lame à faces parallèles, que lorsque le faisceau plasmon pénètre dans la lame il s'écarte de la normale au dioptre, ce qui est caractéristique d'un milieu moins réfringent. Nous avons, de façon analogue, testé une structure en forme de lentille 2D plan-concave (figure 7.3(b)), cette géométrie étant sensée se comporter comme une lentille convergente dans le cas d'un matériau moins réfringent. Nous n'avons en revanche pas pu constater une diminution notable de l'étendue de la zone qui s'illumine sur la sonde en fonction de sa distance à la structure, ce qui aurait permis dans le cas contraire d'identifier un front d'onde convergent. Cette observation est néanmoins consistante avec le contraste d'indice évalué dans la lame à face parallèle : le rayon de courbure du dioptre concave est en effet de $30 \mu\text{m}$, ce qui conduit à un foyer situé à plus de $750 \mu\text{m}$ du sommet du dioptre². La structure est donc très peu convergente, et si l'on voulait positionner le foyer à une distance inférieure à la distance de propagation des plasmons de surface (une quarantaine de microns pour un plasmon de surface à 800 nm le long d'une interface air-métal), il faudrait par conséquent choisir un rayon de courbure inférieur à $\approx 2 \mu\text{m}$: la lentille diaphragmerait alors considérablement le faisceau plasmon de surface incident. Cette limitation provient du très faible contraste d'indice offert par ces optiques métalliques. Pour la surmonter, on pourrait songer à augmenter le taux de remplissage de la structure, mais cette approche se heurte à

2. $\overline{SF}_{air-metal} = n_{air-metal} \overline{SC} / (n_{air-metal} - n_{air-structure})$ pour un dioptre sphérique de centre C , de sommet S et de foyer F

la limite de résolution actuelle de la fabrication FIB. Une autre approche serait de remplir les trous par un milieu d'indice supérieur à celui de l'air, mais là encore il reste à trouver une méthode de fabrication fiable pour une telle structure. De façon générale, la mise au point d'un milieu d'indice effectif très différent se révèle complexe dans la mesure où la partie réelle de la constante diélectrique est très grande en valeur absolue, et nécessite donc l'introduction très contrôlée, en quantité suffisante et à très faible échelle, d'un matériau présentant une constante diélectrique conséquente pour réussir à faire le poids devant la constante diélectrique du métal. En quittant à présent l'idée de matériau effectif, une approche originale et élégante pourrait consister à pomper optiquement le métal : la mise en forme du faisceau de pompe déterminerait la géométrie de l'optique 2D, tandis que la puissance de pompe déterminerait la variation de la constante diélectrique du métal. Cette approche permettrait d'émuler des fonctionnalités analogues à celles des optiques métalliques que l'on a cherché à développer ici, à la différence près que ces optiques combindraient les avantages d'être actives et de ne nécessiter aucune structuration du métal, moyennant naturellement la mise au point d'un système de pompage optique adapté. Il faut néanmoins nuancer en précisant que cette approche demanderait beaucoup de puissance laser pour donner lieu à un contraste d'indice notable. Il faudrait de préférence travailler au niveau d'une interbande du matériau, et il reste bien sûr à vérifier qu'un effet puisse avoir lieu sous le seuil de dommage du métal.

7.2 Optiques diélectriques basiques

Après avoir cherché non sans mal à induire une variation de la constante diélectrique ϵ_m dans le métal, c'est logiquement sur le milieu diélectrique que nous allons nous pencher à présent. Les optiques seront désormais composées de PMMA, un polymère d'indice optique proche de celui du verre ($\epsilon_{PMMA} = 1.536$ à 800 nm [112]), et réalisées sur la surface du film d'or par lithographie électronique³. Avant même de se lancer dans l'expérience,

3. On pourra trouver les détails techniques relatifs à leur fabrication dans l'annexe B.2

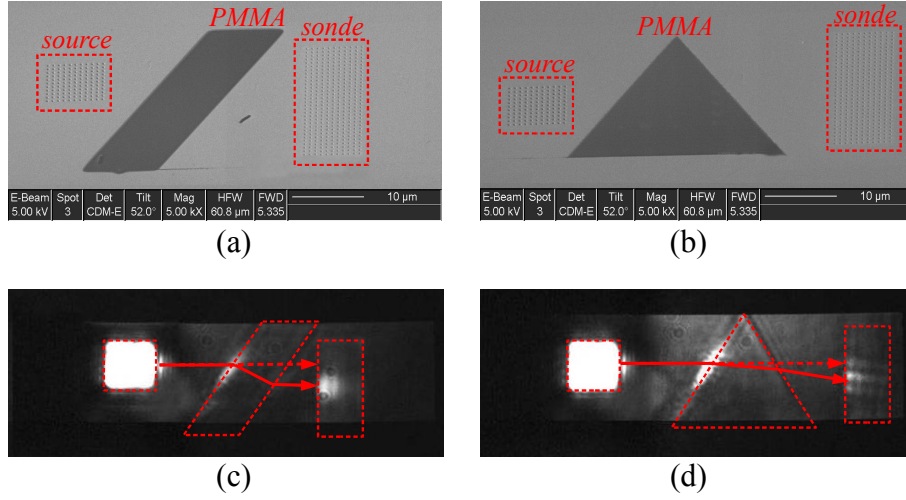


FIGURE 7.4 – Caractérisation en champ lointain optique des structures diélectriques pour plasmons de surface, à l’aide du dispositif source–sonde (période 760 nm, diamètre des trous 250 nm, illumination à 785 nm focalisée sur la source). Deux géométries sont testées : une lame à faces parallèles tiltée et un prisme. La structure source est formée par le petit réseau situé à gauche de l’optique, la structure sonde est elle formée par le grand réseau situé à droite. (a) et (b) Images SEM du dispositif. (c) et (d) Images optiques correspondantes (objectif 40x).

la première observation que l’on peut immédiatement faire est la suivante : entre une interface air-or et une interface PMMA-or, on peut d’après la relation (7.1) s’attendre à obtenir un contraste d’indice de

$$\frac{(n_{ps})_{PMMA-or}}{(n_{ps})_{air-or}} \approx \frac{1.61}{1.02} \approx 1.58, \quad (7.3)$$

ce qui constitue désormais une variation suffisamment importante pour pouvoir *a priori* observer confortablement des effets réfractifs.

Les premières optiques diélectriques réalisées consistent en une lame à faces parallèles ainsi qu’un prisme, et sont caractérisées en champ lointain à l’aide du dispositif source-sonde, comme l’illustre la figure 7.4. Les mesures mettent effectivement en évidence une nette déviation du faisceau plasmon de surface.

En quantifiant cette déviation et en appliquant la loi de Snell-Descartes, ce premier jeu d'optiques se voit attribuer un indice de

$$\frac{(n_{ps})_{PMMA-or}}{(n_{ps})_{air-or}} = 1.50 \pm 0.02 \quad (7.4)$$

dans l'expérience. Cette valeur est légèrement inférieure à celle prédite par la relation (7.3). Cette différence trouve son explication dans l'épaisseur finie des optiques diélectriques. En effet, celle-ci est de 250 nm (dimension des optiques suivant la normale à l'interface) alors que l'extension spatiale du champ électrique associé à un plasmon de surface à 800 nm dans le PMMA est $\delta_{PMMA} \approx 300$ nm, d'après la relation (2.42). Au niveau de l'optique, l'onde de surface n'est donc pas totalement confinée dans le PMMA, mais perçoit encore l'air. Dans la mesure où $n_{air} < n_{PMMA}$, l'indice effectif de cet empilement PMMA-air est donc inférieur à l'indice du PMMA, mais la différence est ici faible en raison de la décroissance exponentielle du champ électrique associé à l'onde de surface : celle-ci est donc principalement confinée dans le PMMA, étant donné l'épaisseur des présentes optiques. Notons également que la direction de la déviation apportée par cette lame est telle que le faisceau se rapproche de la normale au dioptre lorsqu'il pénètre dans la lame, ce qui est bien caractéristique d'un milieu plus réfringent que son environnement.

Un autre point intéressant que l'on peut remarquer sur les mesures réside dans le signal détecté au niveau du dioptre d'entrée des optiques. Celui-ci s'illumine localement, là où le faisceau plasmon de surface passe, témoignant d'une reconversion radiative de l'onde de surface. Le fort contraste d'indice entre l'interface libre et les optiques provoque d'une part la réflexion d'une partie du signal, à la manière de l'optique classique. D'autre part, et de manière plus propre à l'onde de surface, il constitue une perturbation qui va provoquer le découplage radiatif d'une autre partie du signal. Néanmoins, l'expérience montre que le signal est également transmis : la sonde s'illumine avec la même intensité que le bord d'entrée de la lame à faces parallèles, et avec un peu moins d'intensité que le bord d'entrée du prisme. Précisons que les distances entre les structures source et sonde dans ces deux expériences

sont respectivement de $30 \mu\text{m}$ et de $40 \mu\text{m}$, or nous avons vu au chapitre 5 que la longueur de propagation des plasmons de surface est d'une quarantaine de microns pour une interface air-or (bien moins pour une interface PMMA-or comme c'est le cas dans les optiques). En corrigeant l'intensité enregistrée au niveau des réseaux sondes par les pertes liées au métal, on peut de façon qualitative attribuer une assez bonne transmission aux optiques.

Des mesures par microscopie en champ proche optique ont également été réalisées afin d'offrir des observations plus détaillées du phénomène de réfraction. La hauteur des optiques diélectriques a été ramenée à 60 nm afin d'écartier tout risque de collision avec la pointe qui balaye l'échantillon à une distance de 100 nm de la surface métallique. Par ailleurs, la structure sonde n'est pas présente car cette mesure en champ proche ne nécessite plus la reconversion radiative des plasmons de surface, ni même leur réflexion car nous ne rechercherons pas ici à détecter une variation d'indice par le biais d'une variation de l'interfrange provenant de l'interférence de deux faisceaux contra-propagatifs. Les mesures sont présentées sur la figure 7.5. Dans le cas de la lame à faces parallèles, elles montrent une déviation plus faible du faisceau plasmon de surface, ce qui indique une diminution du contraste d'indice par rapport aux optiques précédentes. La mesure de cette déviation aboutit, d'après la loi de Snell-Descartes, à une variation d'indice expérimentale de

$$\frac{(n_{ps})_{PMMA-or}}{(n_{ps})_{air-or}} = 1,15 \pm 0,03. \quad (7.5)$$

Cette observation était attendue dans la mesure où la hauteur des optiques est nettement plus faible : au niveau de ces optiques, le champ associé à l'onde de surface s'étend désormais bien au-delà du PMMA, et on peut donc logiquement s'attendre à une diminution de l'indice effectif perçu par l'onde dans ce milieu. En procédant de manière analogue au développement présenté dans le chapitre 3, qui avait permis d'établir une expression analytique de la relation de dispersion des plasmons de surface dans le cas d'un film mince de métal, mais en prenant cette fois en compte la hauteur finie du polymère, il est possible d'obtenir une expression analytique de la relation de

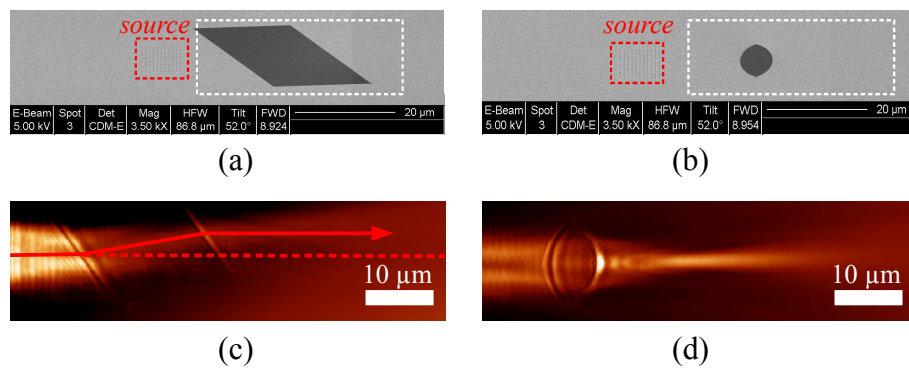


FIGURE 7.5 – Caractérisation en champ proche optique d’une lame à faces parallèles tiltée et d’une lentille biconvexe. (a) et (b) Image SEM du dispositif : la structure source (période 760 nm, diamètre des trous 250 nm) est située à gauche des optiques (il n’y a plus de structure sonde ici). (c) et (d) Mesures en champ proche optique correspondantes (illumination à 800 nm). Les mesures sont centrées sur les optiques et sur les faisceaux en sortie d’optiques (zones mises en évidence par les tirets blancs sur (a) et (b)), les structures sources ne sont donc pas visibles sur les mesures (elles sont situées à quelques microns au-delà du bord gauche).

dispersion de l'onde de surface au niveau des optiques. Celle-ci donne alors, dans les conditions de l'expérience, un contraste d'indice de 1,16 qui est en bon accord avec la valeur mesurée expérimentalement. Toujours dans l'idée de ce contraste d'indice plus faible, on remarquera également que, contrairement aux cas des optiques de 250 nm de hauteur, on ne détecte plus de découplage radiatif au niveau du bord d'entrée de la lame à faces parallèles. En revanche, on détecte bien une réflexion des plasmons de surface par les dioptrés, comme en témoignent les franges d'interférences à 45°, parallèles aux faces de la lame, et dont l'interfrange est caractéristique de la superposition de deux faisceaux à λ_{ps} se propageant perpendiculairement.

Comme nous l'avons vu avec les optiques métalliques, une variation d'indice de quelques pour cent complique la réalisation de lentille fortement convergente. Dans le but de réaliser une lentille suffisamment convergente pour que son plan focal soit situé à portée de distance de propagation des plasmons de surface, mais sans pour autant faire appel à un dioptré sphérique de rayon de courbure tel que le faisceau serait diaphragmé, nous avons utilisé une lentille biconvexe. Le pouvoir convergent d'une lentille est non seulement fixé par son indice mais également par sa forme. Dans le cas d'une optique avec un indice supérieur à son environnement, comme c'est le cas ici, la forme biconvexe permet d'augmenter le pouvoir convergent de la lentille et donc d'obtenir une focale significativement plus courte par rapport à la forme plan-convexe. La lentille réalisée est composée de deux dioptrés sphériques de 5 μm rayon de courbure et de 5 μm d'épaisseur optique (dimension suivant la direction de propagation de l'onde de surface). D'après la formule classique pour une lentille d'épaisseur e , de rayons de courbure R_1 et R_2 , d'indice n_2 , plongée dans un milieu d'indice n_1 ,

$$\frac{1}{f} = (n_2 - n_1) \left(\frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2} \right) \left(1 + \frac{n_2 - n_1}{n_2} \frac{e}{R_2 - R_1} \right), \quad (7.6)$$

et en considérant le contraste d'indice évalué expérimentalement à l'aide de la lame à face parallèle précédemment étudiée, les paramètres géométriques de la lentille permettent d'en estimer la focale : on trouve une valeur de 15 μm , ce qui est en très bon accord avec la mesure expérimentale, présentée sur la

figure 7.5(d).

À ce stade, il est important de garder à l'esprit les conditions expérimentales telles que l'allure de référence du faisceau plasmon de surface lancé par le réseau source utilisé ainsi que les propriétés physiques telles que la cohérence de ce faisceau afin d'éviter certaines erreurs dans l'interprétation des mesures champ proche.

Faisceau de référence Comme nous l'avons vu au chapitre 5, l'allure naturelle du faisceau plasmon de surface lancé par un réseau source au contour carré montre une section transverse relativement large avec deux maxima à proximité de la structure, qui se resserre ensuite pour ne présenter plus qu'un maximum et une section transverse plus fine (voir figure 5.1 du chapitre 5). Il est par conséquent impératif de s'assurer que l'effet de focalisation observé est bien dû à la réfraction du faisceau par la lentille diélectrique, et non à l'allure du faisceau de référence. Pour tester cela, nous avons réalisé une coupe transverse de la distribution d'intensité mesurée au niveau du plan focal de la lentille que nous avons comparée à des coupes réalisées en l'absence de l'optique, c'est-à-dire sur le faisceau de référence, ainsi qu'en présence d'une optique diélectrique comparable mais non convergente, en l'occurrence une lame à faces parallèles de même épaisseur optique que la lentille, placée en incidence normale. Les résultats sont présentés sur la figure 7.6, et la comparaison des coupes montrent sans équivoque le rôle joué par la lentille : elle permet d'obtenir, dans son plan focal, un spot plasmonique de largeur à mi-hauteur égale à $1 \mu\text{m}$, soit environ trois fois inférieure à celle mesurée en l'absence d'optique ou en présence de l'optique afocale. La légère diminution d'intensité du faisceau que l'on peut observer avec la lame à faces parallèles par rapport au faisceau de référence peut être attribuée à des pertes plus prononcées dans la structure diélectrique comparée à l'interface libre : du point de vue optique, l'indice de ce milieu induit une augmentation du chemin optique ne où n est l'indice du milieu et e l'épaisseur optique de la structure réfractive, et tout se passe donc comme si le faisceau devait parcourir une distance 1,16 fois plus importante dans la lame comparée à l'interface libre,

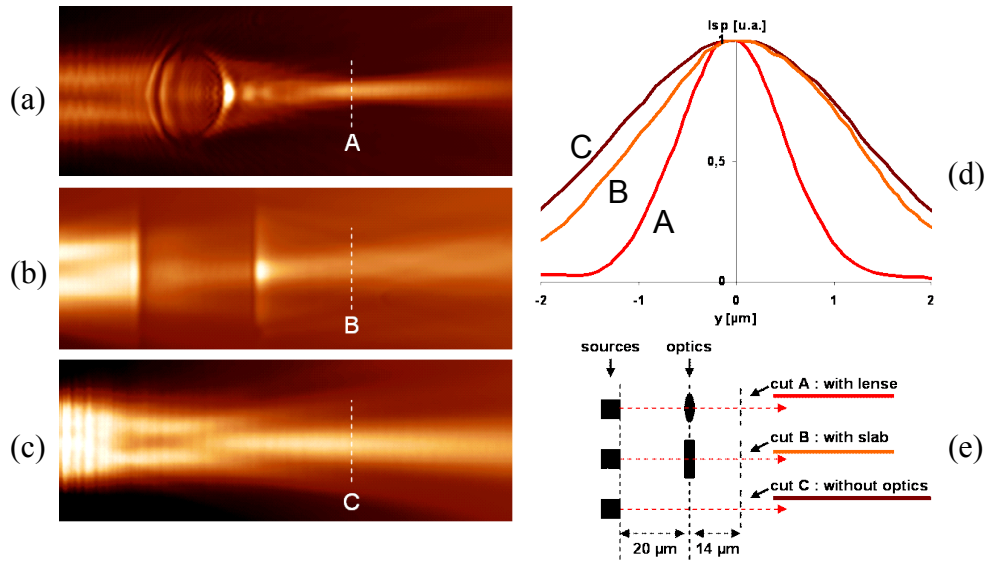


FIGURE 7.6 – Mise en évidence de l’effet de focalisation attribué à la lentille diélectrique. Mesures en champ proche optique effectuées (a) sur la lentille convergente, (b) sur une structure diélectrique de même épaisseur optique mais afocale, en l’occurrence une lame à faces parallèles en incidence normale, et (c) sur le faisceau plasmon de surface de référence, sans optique. Les structures sources sont situées hors-champ, à quelques microns au-delà du bord gauche des mesures. (d) Comparaison des coupes réalisées sur les mesures en champ proche optique : la coupe A (courbe rouge) donne le profil du faisceau ayant sondé la lentille, la coupe B (courbe orange) le profil du faisceau ayant sondé la lame à faces parallèles, et la coupe C (courbe marron) le profil du faisceau de référence. Le dispositif expérimental est schématisé sur (e).

d'où des pertes plus importantes. Par ailleurs, on constate également que le point chaud observé au niveau de la face de sortie de la lentille n'est pas dû à la forme de la structure : celui-ci s'observe également sur la lame à faces parallèles. Outre de l'effet de la variation d'indice, il semble tirer son origine de l'allure naturelle du faisceau : en l'absence de structure diélectrique, on constate que son emplacement correspond à la zone de forte intensité située immédiatement après la réunion des deux modes transverses du faisceau plasmon de surface en un mode unique. Enfin, on peut comparer le rayon du spot obtenu dans le plan focal de la lentille à celui la tache d'Airy produit par une lentille limitée par la diffraction, soit $1,22\lambda_{ps}f/D$ où f et D sont respectivement la focale et le diamètre de la lentille, et qui donne une valeur théorique de $\approx 1,63 \mu\text{m}$: celle-ci est en très bon accord avec l'expérience, bien qu'aucun travail particulier d'optimisation visant à corriger les aberrations de la lentille n'ait été réalisé.

Effets de cohérence Il est également important de prendre certaines précautions lorsque l'on travaille avec des faisceaux cohérents. Si la taille de l'optique dans la direction transverse à l'axe optique est proche de la largeur du faisceau plasmon de surface, des effets de bords peuvent apparaître : ceux-ci peuvent diffracter le faisceau incident ou agir comme des interfaces semi-réfléchissantes, contribuant ainsi à l'apparition d'une figure d'interférence qui complique l'étude du comportement purement réfractif de la structure diélectrique. Pour illustrer ce point, la figure 7.7 montre une mesure réalisée sur une lame à faces parallèles réalisée avec une faible dimension transverse, de sorte que les bords de la structure intercepte les rayons du faisceau plasmon de surface se propageant en bord de champ. En sortie d'optique, on constate l'apparition d'un motif qui pourrait laisser croire à un effet de focalisation, or la structure est bien afocale et ce motif n'est en aucun cas dû à un effet réfractif, mais correspond à l'interférence entre les rayons se propageant normalement et les rayons déviés par les bords de la lame. Pour s'en convaincre, il suffit de tailler en biseau les bords de la structure, ce qui a pour effet de faire disparaître le motif d'interférence. C'est en raison de ce constat, relatif à l'importance de ne pas diaphragmer le faisceau cohérent

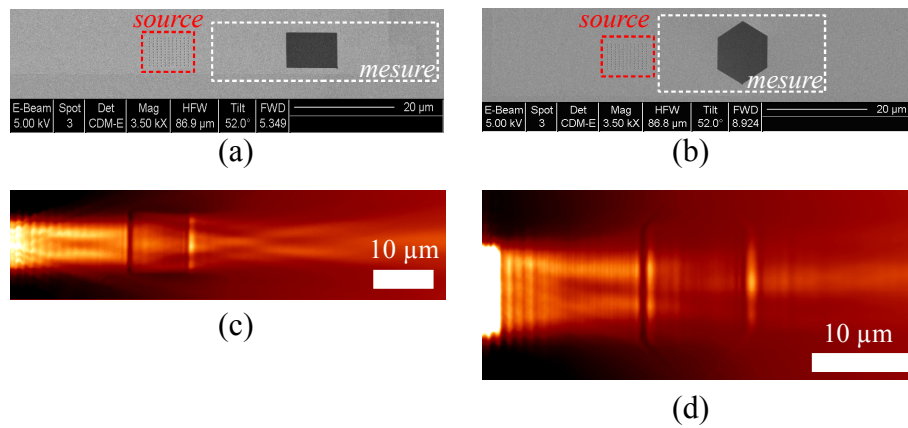


FIGURE 7.7 – Mise en évidence des effets de bords. (a) et (b) Images SEM du dispositif, comprenant un réseau source et une lame à faces parallèles en incidence normale. Sur (a), la structure diélectrique est dimensionnée de sorte que ses bords interceptent le faisceau plasmon de surface. À partir de ces dimensions, les bords de la lame sont ensuite biseautés vers l’extérieur, ce qui donne la géométrie présentée sur (b). (c) et (d) Mesures correspondantes, par microscopie en champ proche optique.

pour une étude claire du phénomène de réfraction, que nous insistions par exemple sur l’importance de fixer une limite inférieure au rayon de courbure des dioptrés sphériques.

Soulignons enfin que si les mesures ont été réalisées avec le réseau source à contour carré et non la source diamant développée dans le chapitre 5, c’est parce que chronologiquement nous n’avions pas encore effectué l’optimisation de la structure source. C’est justement forts des observations livrées dans ces deux derniers paragraphes que nous avons cherché à obtenir un faisceau plasmon de surface étroit, uniforme et collimaté.

7.3 Gradients d’indice

Nous avons vu que lorsque la hauteur d’une optique diélectrique est telle que l’onde de surface n’est pas totalement confinée dans le polymère, il est né-

cessaire de prendre en compte la hauteur finie de l'optique ainsi que le milieu situé au-dessus de l'optique pour en déduire l'indice effectif perçu par l'onde de surface. Ceci peut être mis à profit pour varier continuellement l'indice effectif des optiques en faisant simplement varier leur épaisseur. Expérimentalement, cette épaisseur peut être choisie très précisément (voir annexe B.2), ce qui autorise donc l'obtention d'une valeur très précise de l'indice effectif. Les propriétés optiques des structures, telles que la focale d'une lentille ou la déviation introduite par une lame à faces parallèles, dépendent non seulement de la forme mais aussi de l'indice : il est par conséquent possible, même à géométrie fixée, d'exercer un contrôle sur ces propriétés optiques simplement en variant l'épaisseur de la couche de polymère destinée à être irradiée. Imaginons qu'un système optique complexe de plusieurs lentilles pour plasmons de surface soit mis au point, et que l'on veuille par la suite changer la longueur d'onde d'illumination, par exemple pour travailler à une plus grande longueur d'onde afin de gagner en longueur de propagation du signal. En raison de la dispersion chromatique des optiques, le choix d'une nouvelle longueur d'onde de travail va conduire à déplacer les plans focaux du système optique et résultera en une dégradation des qualités optiques du montage (principe des aberrations chromatiques). Pour corriger ce défaut, on pourra donc simplement, plutôt que de recalculer une nouvelle combinaison optique adaptée, conserver son masque de lithographie électronique initiale mais adapter dans les bonnes proportions la hauteur des optiques. Cette approche peut se révéler intéressante du point de vue de la fabrication industrielle. En revanche, si cette approche permet de faire varier l'indice d'une optique à l'autre, il n'est pas encore possible d'obtenir une variation d'indice au sein même d'une optique donnée. En restant dans l'idée d'un indice effectif dépendant de la hauteur de l'optique, on peut logiquement songer à faire varier la hauteur du polymère au sein de la structure. Contrairement à l'ablation ionique, la lithographie électronique du PMMA ne permet pas de faire varier la hauteur de la structure réalisée. Une solution serait par exemple de réaliser une structure en polymère de hauteur donnée, puis de procéder à l'ablation ionique de la quantité de polymère souhaitée. C'est ce que nous avons tenté de faire sur la figure 7.8. Si nous sommes bien parvenu à réaliser une rampe et un

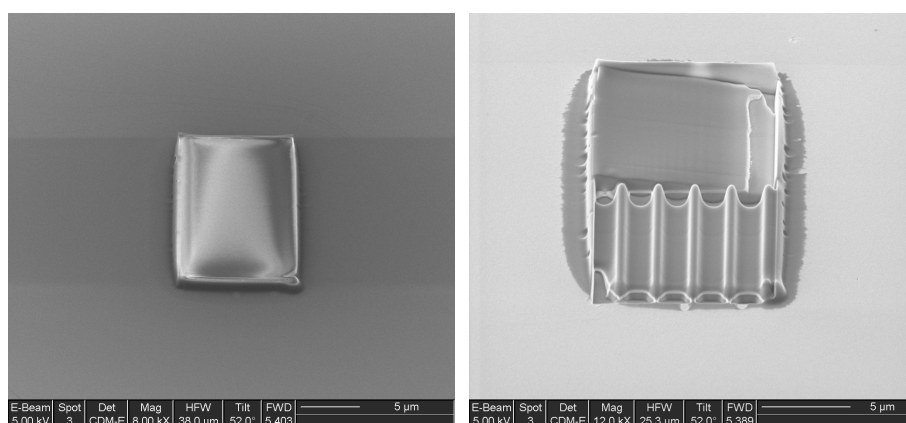


FIGURE 7.8 – Images SEM d’un pavé de PMMA (épaisseur 1 μ m) obtenu par lithographie électronique avant structuration (gauche) et après structuration (droite) par ablation ionique. Une rampe linéaire et un motif sinusoïdal ont été testés. On peut voir qu’à l’extérieur de la structure diélectrique, près des bords, le métal a également été attaqué.

motif périodique dans la hauteur du bloc de polymère, il est en revanche très difficile de bien gérer ce processus au niveau des raccords avec l’interface libre, si bien que les faces d’entrée ou de sortie de l’optique présenteront des défauts incompatible avec la bonne propagation de l’onde de surface.

Une autre solution doit être envisagée, en particulier en travaillant avec une hauteur d’optique constante. L’approche présentée ici vise ainsi à obtenir toute une gamme d’indices effectifs en jouant non pas sur la hauteur des optiques mais sur le taux de remplissage de la structure en matériau diélectrique. Pour cela, nous avons effectué la lithographie électronique du PMMA avec un échantillonnage relativement faible du balayage par le faisceau électronique, ce qui a pour effet de discrétiser les optiques en un ensemble de plots de polymère distincts (voir annexe B.2 pour les détails techniques relatifs à la fabrication, et les figures 7.10(a) et 7.11(b) pour les résultats obtenus). Le diamètre des plots que nous avons obtenu est de 60 nm, ce qui correspond à la résolution maximale offerte par le PMMA réticulé, 50 nm, augmenté par la taille du spot électronique. En variant la résolution du balayage par le faisceau électronique, il est expérimentalement possible de régler très fine-

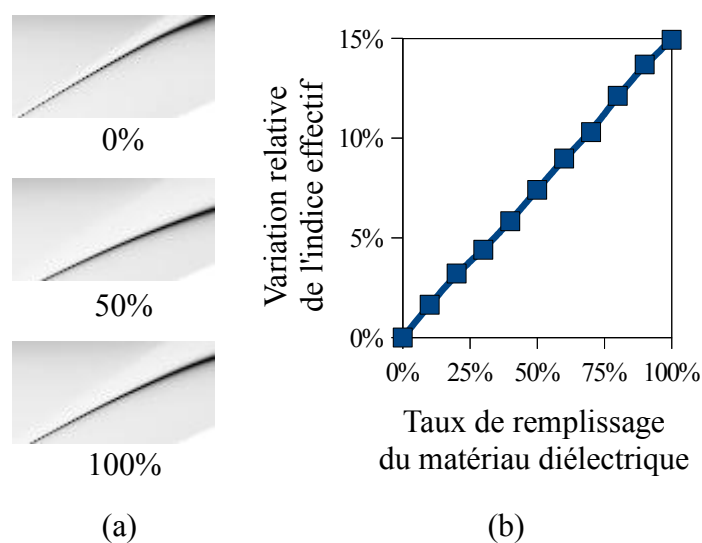


FIGURE 7.9 – (a) Simulations par méthode différentielle de la relation de dispersion des plasmons de surface se propageant le long d’une interface air-or lorsque la surface métallique est recouverte de plots discrets d’un matériau d’indice 1,5. Les plots diélectriques font une hauteur de 60 nm, et les calculs sont répétés en fonction du taux de remplissage de la surface en matériau diélectrique (k en abscisse, ω en ordonnée). (b) Variation relative de l’indice effectif perçu par le plasmon de surface à 800 nm en fonction du taux de remplissage.

ment le taux de remplissage en PMMA. Les résultats d’une simulation basée sur la méthode différentielle présentés sur la figure 7.9 montrent que cette approche permet d’obtenir un milieu d’indice effectif dont la valeur est liée au taux de remplissage de la surface en plots de matériau diélectrique. Le code utilisé pour ces calculs a été développé par le Pr. Jean-Claude Weeber de l’Université de Bourgogne [113, 114]. Nous avons ainsi réalisé différentes structures à gradient d’indice, en commençant par une structure présentant une évolution parabolique de l’indice effectif centrée sur la direction de propagation des plasmons de surface, comme présenté sur la figure 7.10. Même si le choix des paramètres de la structure n’est pas idéal, la mesure de microscopie en champ proche optique montre une évolution de la distribution d’intensité typique de la trajectoire sinusoïdale des faisceaux dans un milieu

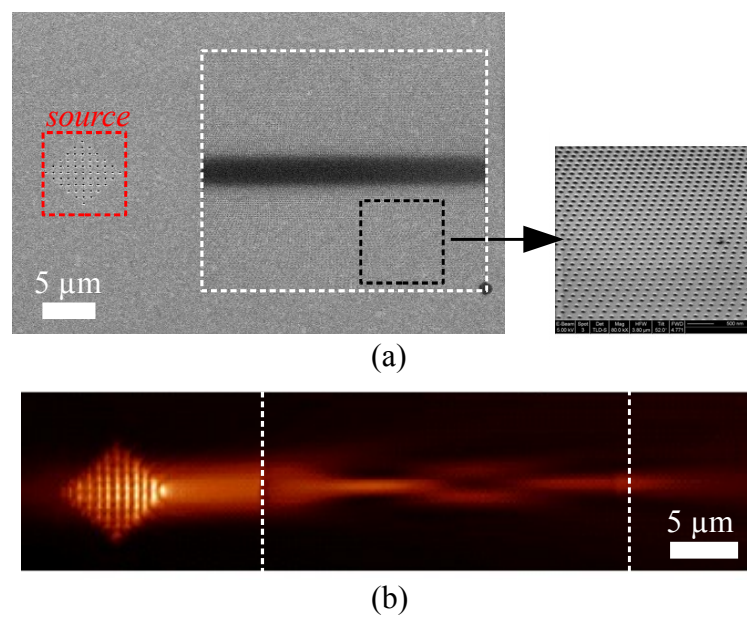


FIGURE 7.10 – Gradient d'indice parabolique. (a) Image SEM du réseau source (tirets rouges) et de la structure diélectrique (tirets blancs). Le gradient d'indice est constitué par la diminution, du centre aux bords de la structure diélectrique, du taux de remplissage en plots de PMMA. (b) Mesure par microscopie en champ proche correspondante.

présentant ce type de profil d'indice [115, 116, 117]. En optimisant l'épaisseur optique ainsi que l'évolution du gradient d'indice de ce type de structure, il est possible d'aboutir à des lentilles à faces parallèles permettant toutes sortes de conjugaisons : collimation d'un faisceau divergent, focalisation d'un faisceau collimaté, etc. Enfin, la figure 7.11 montre la mesure par microscopie en radiation de fuite d'un gradient d'indice monotone : lorsque le faisceau plasmon de surface pénètre dans le milieu, il se voit réfracté de sorte que le rayon de courbure de sa trajectoire pointe en direction de la zone de plus fort indice.

Une limitation claire de la présente approche réside dans le choix que nous avons fait de fixer la taille des plots de PMMA à la valeur la plus faible qu'il était possible d'atteindre expérimentalement, et de varier la période de ces plots pour obtenir la variation d'indice effectif recherchée. Ce choix se justifie par les contraintes expérimentales liées à la fabrication, et se traduit par l'apparition d'effets diffractifs lorsque la période des plots approche $\lambda_{ps}/2$ [117]. En procédant avec un polymère de meilleure résolution (par exemple en utilisant le PMMA sans le réticuler, qui se comporte alors en résine positive dont la résolution tombe à 10 nm), il serait cette fois possible de fixer la période de la structure à une valeur très faible, par exemple $\lambda_{ps}/10$, puis de jouer sur la taille des points irradiés, ce qui éviterait les effets diffractifs et assurerait au contraire l'obtention d'un milieu d'indice effectif -mais localement variable- en tout point de la structure [116, 117]. La réalisation d'optiques à gradient d'indice efficaces ouvre la voie à des applications riches et variées. Le problème du découplage radiatif des plasmons de surface au niveau d'un dioptre entre deux milieux présentant un fort contraste d'indice, comme nous l'avons observé dans le cas des optiques diélectriques épaisses, peut ainsi être résolu en réalisant une adaptation d'indice par le biais d'un gradient. Les guides diélectriques pour plasmons de surface [54, 55, 56, 57, 58], analogues plasmoniques des fibres optiques à saut d'indice, pourraient voir leur famille complétée par des guides à gradient d'indice. Enfin, leur utilisation a également été suggérée dans le cadre du phénomène de réfraction négative [118].

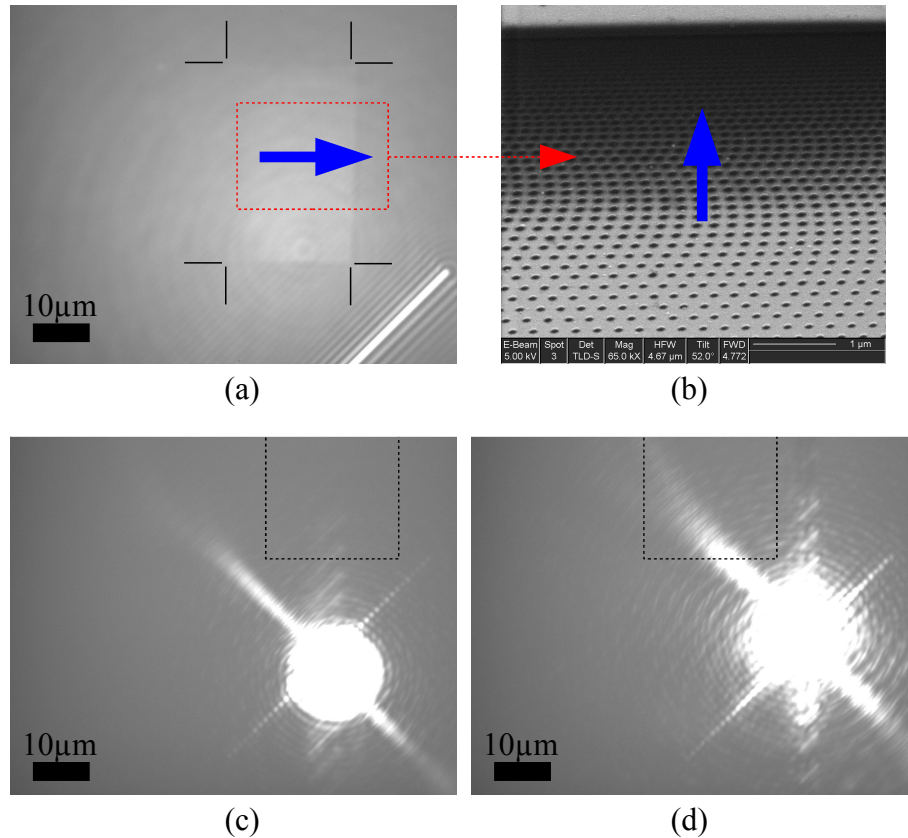


FIGURE 7.11 – Mesure par microscopie en champ de fuite d'un gradient d'indice constant. (a) Image optique du dispositif (illumination large). L'emplacement de la structure diélectrique et marqué par les taquets noirs. La flèche bleue pointe vers la zone de plus fort indice. On distingue également une partie de la fente source qui va être utilisée pour lancer les plasmons de surface. (b) Image SEM : détail du gradient d'indice réalisé. L'image est prise en perspective pour mettre en évidence les plots de PMMA. La flèche bleue pointe vers la zone de plus fort indice (ici, il y a une rotation de 90° de cette image SEM par rapport aux images optiques). (c) et (d) Images optiques en champ de fuite de la propagation du faisceau plasmon de surface à l'extérieur de la structure (c) et dans la structure (d) (illumination à 785 nm, collection avec un objectif à immersion 100x).

Conclusion

La comparaison des performances des optiques métalliques et diélectriques montre que si l'on cherche à obtenir une variation locale d'indice optique propice à des effets réfractifs satisfaisants, il est nettement plus facile de travailler à modifier la constante diélectrique du milieu diélectrique que de chercher à modifier celle du métal. Dans ce contexte, nous avons été en mesure de développer des optiques diélectriques analogues aux composants optiques classiques et nous avons pu vérifier à cette occasion que les lois classiques de la réfraction s'appliquaient bien aux composants plasmoniques. Toutefois, une différence importante est à souligner : la nature de l'onde de surface fait en sorte que la conception géométrique des optiques se résume à un problème 2D dans le plan de l'interface, tandis que la dimension normale à l'interface peut être mise à profit pour contrôler de manière extrêmement précise l'indice des optiques. Ce constat, associé à des techniques de micro-fabrication aujourd'hui bien maîtrisées, rend très aisée la fabrication et le contrôle des propriétés optiques de composants réfractifs simples pour plasmons de surface.

Naturellement, les essais de structurations très fines du métal ou du polymère, avec des périodes inférieures à longueur d'onde des plasmons de surface, ne sont pas sans faire penser à l'approche *métamatériaux*. Les périodes de ces structures sont encore trop grandes pour pouvoir parler de métamatériaux au sens strict, et il faudrait de plus établir avec certitude que le champ est uniforme dans ces milieux, mais on peut toutefois y voir une première tentative d'approche. Les gradients d'indice permettent ainsi de goûter à la grande flexibilité que pourrait apporter un matériau synthétique dont les caractéristiques sont contrôlées avec une très haute résolution.

Conclusion et perspectives

Les travaux rapportés dans cette thèse ont couvert divers aspects de l'émission, de la propagation et de la détection des plasmons de surface sur les films métalliques plans. Les mécanismes de lancement des plasmons de surface au niveau de structures périodiques et de défauts uniques ont été étudiés, et une optimisation a été proposée tant au niveau de la qualité optique du faisceau plasmon de surface que de point de vue de l'efficacité du couplage. Il a ainsi été montré que, sous les bonnes conditions, il est possible de générer efficacement des plasmons de surface dont le flux peut être contrôlé avec une grande précision, ce qui constitue un élément clé pour l'implémentation de fonctionnalités qui entendent tirer partie du confinement et de l'intensité des champs électromagnétiques associés aux ondes de surface. Dans le même ordre d'idée, des micro-optiques 2D pour plasmons de surface, capables d'en dévier ou d'en concentrer le flux, ont également été développées. Le choix du polymère utilisé pour réaliser ces optiques n'est pas anodin : il est en effet prêt à être dopé par des espèces susceptibles d'induire une variation d'indice et donc une modification des propriétés optiques du composant de façon contrôlée, ce qui conduit à la réalisation d'optiques actives et constitue la prochaine évolution logique.

Au-delà d'un contexte purement applicatif et orienté vers les circuits photoniques, les travaux expérimentaux rapportés dans cette thèse ont, à la base, aussi permis d'apporter un certain éclairage sur le comportement des électrons libres du métal ainsi que sur leur interaction avec la lumière. Les modèles simples mis en place dans le cadre de cette thèse ne prétendent en aucun cas livrer une simulation rigoureuse des phénomènes dans le champ proche, celle-ci nécessitant évidemment des modèles analytiques ou numériques per-

fectionnés [100, 101], cependant ils nous ont permis d'obtenir une interprétation physique claire des résultats expérimentaux. Les enseignements que l'on a pu en retirer nous ont ensuite été d'une grande utilité non seulement pour dimensionner nos structures orientées vers les circuits photoniques, mais également pour l'optimisation de structures plasmoniques individuelles. Dans ce contexte précis, la transmission élevée des structures plasmoniques ainsi que leur capacité inédite à agir sur la polarisation, le spectre et la collimation de la lumière transmise fait de ces structures des candidats de choix pour la définition de nouveaux composants optiques.

Forts de ce voyage en terre plasmonique, il faut aussi savoir faire preuve de modestie : le rêve de circuits tout plasmoniques se heurte, tout du moins dans le domaine visible, à des pertes importantes. À ce sujet, signalons que le cadre de cette thèse s'en est tenu aux cas des surfaces métalliques planes, mais en quittant cette géométrie précise il est possible de déboucher sur des configurations de structures présentant des modes aux propriétés inédites : c'est le cas des modes de sillon, qui parviennent à dépasser l'antagonisme apparent entre le confinement et la distance de propagation de l'onde de surface. Ce type de structures dépasse le cadre de cette thèse, mais on pourra néanmoins trouver dans l'annexe D des informations relatives à ces structures.

Malgré les pertes, l'approche plasmonique garde clairement toute sa compétitivité pour effectuer bien des opérations de manipulation du signal localement. Qui plus est, une structure métallique permet d'envisager de traiter simultanément des signaux électriques et photoniques. Ainsi, il y a fort à parier que les applications qui perceront dans le futur seront celles qui auront su faire la meilleure synthèse possible entre les différents candidats disponibles, de l'optique guidée aux plasmons de surface en passant par les semi-conducteurs et bien d'autres encore. En un mot, l'avenir sera aux composants *hybrides*.

La multiplication et la diversification des structures et fonctionnalités plasmoniques mises au point témoignent de l'engouement que connaît la discipline, y compris chez les industriels, et constituent progressivement pour l'optique de demain une vaste trousse à outils, à laquelle les travaux présen-

tés ici espèrent avoir apporté une modeste contribution. Opto-électronique, biologie, chimie ou encore médecine : les champs d'applications possibles des composants basés sur les plasmons de surface sont si vastes que les futures applications proviendront peut-être d'horizons que l'on ne soupçonne pas encore.

Troisième partie

Annexes

Annexe A

Dépôts métalliques

A.1 Rugosité de la surface

Les mesures de rugosité présentées ici ont été réalisées par Eloïse Devaux. Elles ont été obtenues par microscopie à force atomique.

Substrats La table A.1 présente les valeurs de la rugosité de surface mesurée après nettoyage sur les différents types de substrats utilisés. Dans la suite, nous allons pouvoir constater que cette donnée ainsi que la technique de métallisation employée sont les deux paramètres qui déterminent la rugosité finale de la surface métallique.

Évaporateur thermique La machine dont nous disposons est un évaporateur PLASSYS ME300 dont le porte-substrat peut être équipé d'un système de refroidissement. La valeur typique de la vitesse de déposition des films d'or que nous avons réalisés est de l'ordre d'un ångström par seconde. Dans ces conditions, la table A.2 présente les valeurs de la rugosité de surface mesurées en fonction du substrat utilisé, de l'utilisation du refroidissement, et de l'épaisseur de métal déposé.

Pulvérisation cathodique magnétron L'appareil utilisé est un pulvérisateur EMITECH K575X. Nous disposons de deux versions différentes de ce

SUBSTRAT	Valeur moyenne (nm)	Valeur RMS (nm)	Valeur P-V (nm)
Lamelle porte-objet	0.59	0.79	9
Lamelle couvre-objet	0.25	0.46	13
ITO (épaisseur 200 nm)	3.05	3.81	35

TABLE A.1 – Valeurs de la rugosité de surface de différents substrats après nettoyage.

modèle dont une équipée d'un système de refroidissement du porte-échantillon. Le courant entre les électrodes est typiquement de l'ordre de quelques dizaines de milliampères et le gaz utilisé pour la déposition est de l'argon ultrapur sous une pression d'environ un pascal : dans ces conditions, la vitesse de déposition est alors de l'ordre du nanomètre par seconde et la table A.3 présente les valeurs de la rugosité de surface mesurées en fonction du substrat métallisé, de la présence du système de refroidissement, et de la durée du cycle de déposition, autrement dit de l'épaisseur de métal déposé.

Comparaison des performances Les mesures présentées dans les tables permettent de faire les observations suivantes quant à la rugosité de surface des couches d'or déposées :

- la rugosité augmente avec la rugosité initiale du substrat utilisé et de l'épaisseur de métal déposée : ceci s'observe particulièrement pour les films fins (quelques dizaines à centaines de nanomètres), en revanche d'autres essais ont montré qu'au-delà d'une certaine épaisseur on tend vers une valeur constante indépendante du substrat et uniquement fonction des conditions de déposition ;
- l'utilisation d'un système de refroidissement ne modifie pas de manière évidente la rugosité dans le cas de l'évaporateur mais permet de gagner un ordre de grandeur dans le cas des pulvérisateurs (le simple fait de bien refroidir l'échantillon avant de réaliser la déposition permet également de l'observer sur le modèle ne disposant pas du système de refroidissement). Précisons à ce sujet que le refroidissement, basé dans les deux cas sur la circulation d'eau dans un serpentin intégré au

SUBSTRAT	Refroidissement	Épaisseur déposée (nm)	Valeur moyenne (nm)	Valeur RMS (nm)	Valeur P-V (nm)
Couvre-objet	non	82	0.69	0.89	9.6
Porte-objet	non	82	1.06	1.33	12.1
Porte-objet	non	137	1.66	2.08	15.2
Porte-objet	oui	79	1.08	1.39	18.9
ITO	oui	62	2.02	2.56	21.8

TABLE A.2 – Valeurs de la rugosité de surface de différents films d’or obtenus par évaporation thermique pour une vitesse de déposition de 0.1 nm/s.

Substrat	Durée du cycle	Système de refroidissement	Valeur moyenne (nm)	Valeur RMS (nm)
Porte-objet	1’00’’	non	2.76	3.31
Couvre-objet	1’00’’	non	1.03	1.26
Couvre-objet froid	1’00’’	non	0.26	
Couvre-objet	1’20’’	oui		0.4
Couvre-objet	2’40’’	oui		0.7

TABLE A.3 – Valeurs de la rugosité de surface de différents films d’or obtenus par pulvérisation cathodique pour un courant de 60 mA et une pression d’argon de 0.9 Pa.

porte-échantillon, se fait par simple transfert conducto-convectif pour l'évaporateur alors qu'il est amplifié par effet thermoélectrique à l'aide d'un composant Peltier dans le cas du modèle refroidi de pulvérisateur : on peut donc se poser la question de l'efficacité du dispositif de refroidissement de l'évaporateur.

D'un point de vue pratique, c'est le pulvérisateur qui a été le plus largement utilisé dans le cadre de nos expériences. Le pulvérisateur se distingue par sa rapidité, que ce soit au niveau du pompage (notamment en raison d'un volume de chambre à vide réduit) comme au niveau de la vitesse de déposition (un nanomètre contre un ångström par seconde), ceci tout en offrant des films métalliques de grande qualité lorsqu'il est rigoureusement utilisé.

Il est à ce stade nécessaire de préciser que les mesures présentées ont été obtenues en choisissant des paramètres bien précis de déposition (vitesse de déposition, réglages propres à chaque appareil, etc.). Leur optimisation a fait l'objet de nombreux essais dont on pourra trouver une illustration dans le paragraphe suivant.

A.2 Optimisation des paramètres de déposition

Les différents équipements utilisés proposent un choix de paramètres propres à la technique de métallisation employée : on pourra principalement citer le courant entre les électrodes et la pression d'argon dans le cas de la pulvérisation cathodique d'une part, le vide atteint dans la chambre et le courant traversant le creuset dans le cas de l'évaporation thermique d'autre part. Les mesures de rugosité présentées dans le paragraphe précédent ont ainsi été obtenues en choisissant des paramètres bien précis dont l'optimisation a préalablement fait l'objet de nombreux essais. Pour illustrer ce point, la figure A.1 montre l'évolution de la vitesse de déposition par pulvérisation cathodique en fonction de la pression d'argon introduit dans la chambre. On constate que, dans la gamme de pressions testées, la vitesse de déposition diminue avec la pression d'argon. Travailler à plus haute pression augmente la densité du plasma : on pourrait donc s'attendre donc à une plus grande

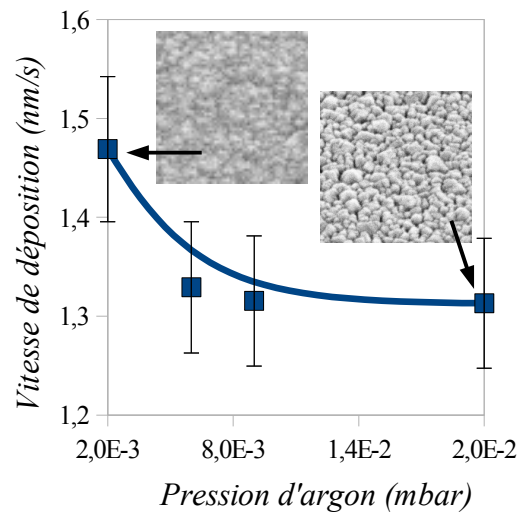


FIGURE A.1 – Vitesses de déposition d'or par pulvérisation cathodique obtenues pour différentes pressions d'argon. On donne dans les cas extrêmes un aperçu de la surface correspondante (images réalisées au microscope à balayage électronique sous incidence oblique, correspondant à une zone de $500 \times 800 \text{ nm}^2$)

probabilité de collisions sur la cible métallique et donc une déposition de métal plus rapide. On observe pourtant l'évolution inverse, ce qui peut s'expliquer par un régime dans lequel la densité du plasma est telle que le libre parcours moyen chute de façon drastique, ce qui pénalise au final la déposition. On observe également une sévère dégradation de la rugosité de surface lorsque la pression d'argon augmente. On ne peut pour autant en conclure qu'il convient de travailler à très faible pression : une pression minimum en argon est néanmoins nécessaire pour obtenir le plasma et pour que celui-ci s'autoentretienne correctement, sans interruption. La mesure obtenue pour la pression la plus faible correspond ainsi à la limite observée sur notre machine, et il est clairement stipulé par le fabricant que ce régime de fonctionnement est éprouvant pour certains composants. C'est finalement une pression de $9 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ en argon qui a été retenue pour effectuer les dépôts par pulvérisations cathodiques. L'autre paramètre majeur de cette technique de déposition, le courant entre les deux électrodes, dont l'influence sur la vitesse

de déposition et sur la qualité des dépôts a été caractérisée de façon analogue. Quelle que soit la technique de métallisation utilisée, il convient donc de réaliser de nombreux tests jusqu'à identifier les paramètres qui offrent le meilleur compromis en termes de vitesse et de qualité de la déposition, celles-ci évoluant souvent de manière antagoniste.

A.3 Homogénéité et contamination des films

La figure A.2 donne un exemple typique de dépôt métallique, en l'occurrence une couche d'or d'une épaisseur de 1 μm obtenue par pulvérisation cathodique, présentant des inhomogénéités qui empêchent une gravure uniforme des structures métalliques. On remarque tout d'abord la présence de nombreux défauts de surface semblables à des petits grains (figure A.2(b)). L'érosion ionique de cette couche métallique provoque ensuite l'apparition et l'extension de zones particulièrement dures à graver (figure A.2(c)). Nous avons réalisé une micro-analyse élémentaire SEM-EDS¹ avec l'aide de Jacques Faerber du groupe surface et interfaces de l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg, qui a permis de faire les observations suivantes :

- premièrement, sur la couche d'or, à l'écart des zones usinées, on ne trouve que de l'or et aucune trace de polluant. Les défauts de surface observés correspondent à des cristaux d'or facettés, en octaèdres ou tétraèdres, nettement plus grands que le grain normal de la surface (plus de 300 nm contre 80 nm) ;
- dans les zones érodées, on trouve des traces de gallium ainsi que de fer au niveau des zones dures, que l'on ne trouve en revanche pas dans les zones convenablement érodées ;
- en bordure des zones très érodées, là où il y a une plus légère érosion, on voit ces mêmes cristaux facettés d'or, qui semblent être l'amorce de zones dures. On peut constater que la densité de ces grains est sensiblement voisine de celle des points durs des zones érodées. Des tests

1. Energy Dispersive Spectroscopy

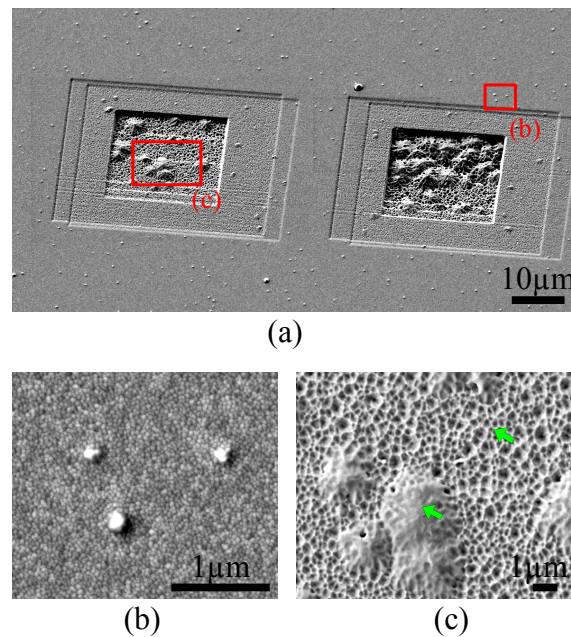


FIGURE A.2 – (a) Couche d'or, épaisseur $1 \mu\text{m}$, obtenue par pulvérisation cathodique, sur laquelle on a pratiqué des tests d'érosion par ablation ionique. (b) Zoom sur les grains présents à la surface du film. (c) Zoom sur la zone érodée; la flèche en haut à droite indique une zone où l'érosion se fait de manière uniforme, la flèche proche du centre indique une zone dure à éroder. La micro-analyse EDS est réalisée sur chacune de ces zones.

d'érosion lente avec prises d'images régulières ont permis de confirmer que c'est bien à ces endroits que démarrent les zones résistantes.

Il apparaît au final que les cristaux disséminés sur la surface, probablement monocristallins 3D et de dimensions nettement supérieures aux grains de la couche, eux-même extrémités d'une croissance probablement colonnaire, résistent au bombardement ionique. Au cours du processus d'érosion, les zones de résistance gagnent du terrain à partir de ces points de départ, de par la présence de gallium et un changement de structure, en provoquant finalement la formation d'un alliage Au-Ga. La question est alors de savoir ce qui provoque l'apparition de ces cristaux sur la couche d'or. Concernant ce point, nous nous sommes notamment intéressés à l'origine du Fe mis en évidence sur les comptages effectués au niveau des zones dures, pour voir si

celui-ci pouvait jouer un rôle. L'origine du Fer peut être liée soit au processus de gravure ionique (usure du canon), soit à celui de la déposition.

Le modèle de pulvérisateur cathodique dont nous disposons est initialement prévu pour la métallisation des échantillons pour le MEB, typiquement pour des épaisseurs de l'ordre de 5 à 50 nm. Pour faire des dépôts de l'ordre du micron, il faut le faire fonctionner dans des conditions bien plus intensives que celles initialement prévues. Dans ce cas, il n'est pas à exclure qu'il puisse y avoir une pollution provenant des pièces de l'évaporateur. Nous avons procédé au remplacement de toutes les pièces susceptibles de fournir une source de Fe (en l'occurrence la bague porte-cible et la bouteille d'argon ultrapur, tous deux en acier et présentant des signes d'usure), et nous avons eu le plaisir² de constater que cette seule opération a permis de renouer avec des dépôts métalliques de grande qualité, tant au niveau de leur surface que de leur homogénéité à la gravure.

Outre cet exemple précis de contamination provenant de l'usure de certaines pièces du pulvérisateur cathodique, précisons que nous utilisons la même machine pour déposer différents métaux, et il arrive parfois de devoir métalliser des espèces organiques susceptibles de dégazer dans la chambre. Ceci constitue autant de sources potentielles d'impuretés déjà présentes dans la chambre et susceptibles d'être redéposées lors des pulvérisations suivantes : il est donc indispensable de procéder à un entretien régulier de la machine. Enfin, une détérioration de la surface peut également survenir après la déposition, par exemple lors de traitements chimiques ultérieurs (développement de structures diélectriques réalisées par lithographie électronique), voire directement à la fin du cycle de déposition : l'utilisation d'un système de refroidissement du substrat, qui améliore en général la qualité du dépôt (voir paragraphe 4.1.2), peut en revanche provoquer une condensation de vapeur d'eau désastreuse pour l'échantillon lors de la remise à l'air, si bien que nous avons équipé la chambre du pulvérisateur cathodique d'une vanne manuelle qui permet d'éviter la remise à l'air effectuée automatiquement par la ma-

2. le remplacement du canon ionique représente en effet un tout autre budget, différent de plusieurs ordres de grandeur

chine et d'attendre l'équilibre thermique après avoir coupé le système de refroidissement.

En résumé, nous avons vu que les inhomogénéités et les défauts de surface des dépôts métalliques ont des origines qui dépassent amplement le simple problème d'un substrat mal nettoyé. Loin d'en faire la liste exhaustive, les quelques exemples particulièrement révélateurs cités ici montrent que les sources de contamination potentielles sont nombreuses et que leur identification se révèle parfois ardue.

Annexe B

Structures diélectriques

B.1 Déposition SiO_x assistée par FIB/SEM

Une des approches testées dans le cadre de la fabrication des optiques diélectriques pour plasmons de surface repose sur la déposition de SiO_x par bombardement d'un nuage de gaz TEOS injecté dans la chambre du FIB/SEM. En pilotant le trajet des faisceaux (électrons ou ions), il est possible de localiser précisément l'endroit de la surface de l'échantillon où se fait la déposition, et ainsi de délimiter une zone correspondant à la géométrie de l'optique 2D désirée. Les essais réalisés ont montré que cette technique, initialement développée pour permettre de localement isoler des portions de pistes de circuits électroniques, ne permet en revanche pas une fabrication aisée de micro-optiques de qualité sur des métaux nobles.

Lorsque la déposition est assistée par faisceau d'ions, les processus de déposition du matériau isolant et de gravure du substrat métallique entrent en concurrence. Les ions ne sont en effet pas absorbés en totalité par le nuage de TEOS, notamment en raison de leur forte accélération, et parviennent donc en partie à atteindre et par conséquent à éroder la surface de l'échantillon, ce qui doit naturellement être évité pour préserver la planéité de l'interface où se propage l'onde de surface. Lorsque la déposition est assistée par le faisceau d'électrons, il est cette fois possible de diminuer la tension d'accélération, mais le rendement de la déposition par électrons est relativement

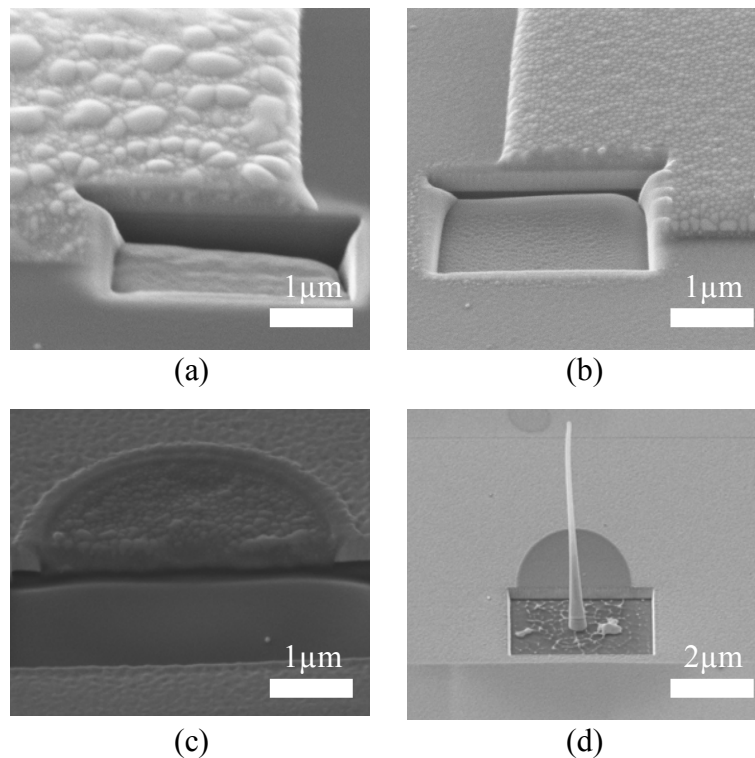


FIGURE B.1 – Essais de déposition SiO_x assistée par faisceau d'ions sur (a) du silicium (b) du cuivre (c) de l'or. (d) Essai de déposition assistée par faisceau d'électrons sur de l'or.

faible [119]. Par ailleurs, quel que soit le faisceau utilisé il faut de plus procéder à un bombardement lent pour conserver une densité suffisante de gaz au niveau de l'échantillon. Bien sûr, ce dernier point est d'autant plus critique avec les ions, pour ne pas favoriser la quantité d'ions atteignant l'échantillon, mais dans tous les cas on obtient des vitesses de déposition relativement lentes. Enfin, il est difficile de contrôler la qualité du dépôt, notamment son uniformité, ce qui n'est certes pas problématique lorsque le dépôt fait fonction d'isolant, mais le devient sérieusement si l'on s'intéresse à ses propriétés optiques.

Pour illustrer les différents points soulevés, la figure B.1 montre quelques exemple de dépôts réalisés dans différentes conditions. La déposition assistée par faisceau d'ions peut fonctionner efficacement lorsqu'elle est réalisée sur

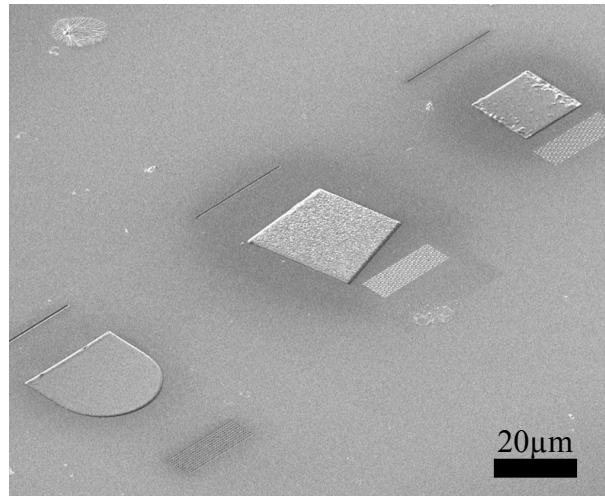


FIGURE B.2 – Dispositif expérimental type pour la caractérisation des optiques SiO_x par le biais du dispositif source-sonde. On a, de haut en bas : une lame à faces parallèles en incidence normale (pour référence), un prisme et une lentille plan-convexe. La source est une fente unique de largeur sublongueur d'onde et la sonde un réseau périodique de trous sublongueurs d'onde. Le métal utilisé est du cuivre.

un substrat dur à éroder tel que le silicium (figure B.1(a)). Pour un matériau intermédiaire, tel que le cuivre, il est possible d'éviter l'érosion grâce à un balayage très lent du faisceau d'ions. En revanche, toute la surface va se retrouver recouverte d'une fine pellicule de polluant en raison du temps prolongé d'exposition à l'atmosphère de TEOS (figure B.1(b)). Enfin pour un matériau très facile à éroder, tel que l'or, il n'a pas été possible d'éviter l'érosion du film métallique (figure B.1(c), le dépôt prend littéralement la place du matériau), ce malgré l'exploration de tous les réglages possibles (et accessibles) du canon à ions. Enfin, la (figure B.1(d)) montre un essai de déposition assistée par faisceau d'électrons. Curieusement, on voit l'apparition d'une pointe très haute (de façon analogue à [120]) mais l'épaisseur du dépôt *demandé* est en revanche ridicule devant la durée du bombardement. Précisons à ce sujet que la présence prolongée de gaz dans la chambre n'est pas souhaitable dans la mesure où elle constitue une source de contamination conséquente pour la machine.

Même si c'est finalement la technique de lithographie électronique qui a été retenue, la mise au point d'un système efficace de déposition assistée par FIB/SEM permettrait la réalisation successive de structures sources/sondes et d'optiques ou de guides diélectriques au cours d'une unique session de travail, et se révélerait donc extrêmement compétitif pour la fabrication de circuits plasmoniques complets. La figure B.2 en constitue une illustration ; certes les structures ont été réalisées sur du cuivre, qui minimise les effets d'érosion au niveau des optiques mais n'offre pas aux plasmons de surface la distance de propagation suffisante, mais le but est ici de proposer une démonstration de principe.

B.2 Spin coat et lithographie du PMMA

Cette partie revient sur quelques détails techniques relatifs à certains procédés expérimentaux abordés dans le chapitre 4 ainsi qu'à la réalisation des optiques diélectriques pour plasmons de surface étudiées dans le chapitre 7.

B.2.1 Calibration de l'épaisseur

L'épaisseur des optiques diélectriques réalisée par lithographie électronique correspond à l'épaisseur de la couche de polymère obtenue par la technique de spin coat. Celle-ci est déterminée par différents paramètres, principalement par la concentration en polymère dissous dans la solution qui est déposée sur l'échantillon juste avant la mise en rotation de la tournette, ainsi que par l'accélération et la vitesse de rotation de la tournette. Pour assurer une homogénéité et une reproductibilité maximale des couches polymères même très fines, nous avons préféré garder les paramètres de rotation de la tournette constants (accélération maximale et vitesse de rotation élevée) et jouer en revanche sur la concentration du polymère en solution. Différentes solutions ont ainsi été testées, et les mesures des épaisseurs obtenues ont été effectuées en imageant des coupes réalisées au FIB, comme le montre la figure B.3. On remarquera qu'une seconde couche de métal a été déposée au-dessus de la couche de PMMA obtenue, celle-ci ayant un but double :

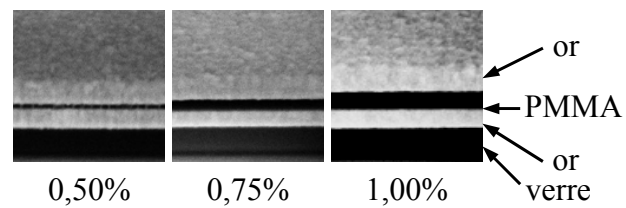


FIGURE B.3 – Coupes pratiquées sur des empilements métal-PMMA-métal suivant la concentration de la solution utilisée pour le spin coat de la couche polymère.

Concentration de la solution (% en masse)	Épaisseur du film (nm)
0.50	33
0.75	77
1.00	121
1.50	198

PMMA : 996K - solvant : CH₂Cl₂ - Spin coat : 2000 rpm

TABLE B.1 – Épaisseur du film polymère en fonction de la concentration de la solution initiale

- la coupe est réalisée au FIB puis mesurée à partir d’une image obtenue au MEB. Le film polymère est donc soumis à des flux de particules chargées, ce qui induit des champs électrostatiques non désirés. C’est d’autant plus le cas que le MEB est ici utilisé en mode imagerie, c’est-à-dire avec une faible tension d’accélération : les électrons n’atteignent donc pas le substrat conducteur comme c’est le cas en lithographie électronique lorsqu’ils sont fortement accélérés, mais chargent la surface du film polymère. En l’absence de la couche métallique supérieure, ces effets de charges sont susceptibles de décoller le film polymère de son substrat métallique, soit au moment de la coupe, soit au moment de l’imager, rendant la mesure de son épaisseur impossible ;
- les images MEB des coupes pratiquées sont obtenues par imagerie des électrons secondaires. Le rendement de la génération d’électrons secondaires est fonction du numéro atomique des atomes constitutifs du spécimen. Un matériau diélectrique apparaît très sombre et il est donc difficile de localiser précisément une interface polymère/vide sans faire une erreur importante. Au contraire, l’empilement métal-PMMA-métal réalisé offre un très bon contraste pour localiser les interfaces du film polymère et permet une mesure précise de son épaisseur. Pour nous assurer que la déposition du second film métallique n’influait pas les mesures, nous les avons par ailleurs comparées à quelques mesures AFM réalisées directement sur la couche de PMMA en l’absence du second film métallique.

Le résultat des mesures d’épaisseur du film polymère sont présentés dans la table B.1. Dans la gamme de concentrations testées, elle montre une évolution très linéaire, ce qui permet par la suite d’obtenir facilement l’épaisseur de film polymère souhaitée. On constate par ailleurs qu’il est possible d’obtenir de façon contrôlée une épaisseur même très fine. Enfin, les essais réalisés ont montré que cette approche, contrairement à celle qui consiste à faire varier l’accélération et la vitesse de rotation de la tournette, permettait effectivement une grande reproductibilité des couches de polymère.

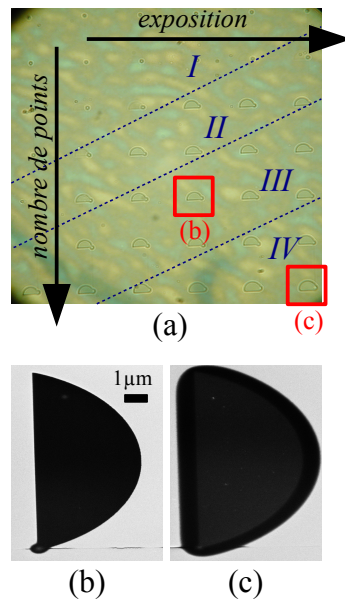


FIGURE B.4 – (a) Résultat de la lithographie électronique du PMMA en fonction de la durée d’exposition et de la résolution du balayage par le faisceau électronique. Les zones I à IV correspondent respectivement à des structures sous-exposées, correctement exposées mais discrétisées, correctement exposées et continues, sur-exposées. Ici, les optiques sont réalisées directement sur substrat d’ITO non métallisé, ce qui permet de les observer avec un microscope optique en transmission (objectif 40x). Images MEB d’optiques correctement irradiée (b) et sur-irradiée (c).

B.2.2 Calibration de la dose d’irradiation

La phase de lithographie électronique du film de PMMA nécessite d’ajuster les paramètres d’exposition au faisceau d’électrons de façon à atteindre la dose critique qui permet de réticuler la résine. Si la structure diélectrique à réaliser est sous-exposée, elle sera dissoute au même titre que la résine non exposée lors de l’étape de développement. Si elle est au contraire sur-exposée, elle présentera des bords mal définis qui s’étendent au-delà la géométrie de structure désirée. On utilise généralement un détecteur spécifique pour mesurer le courant d’électrons au niveau de l’échantillon, ce qui permet de régler les paramètres d’exposition tels que la tension d’accélération et la taille du spot du faisceau d’électrons de manière à atteindre la dose

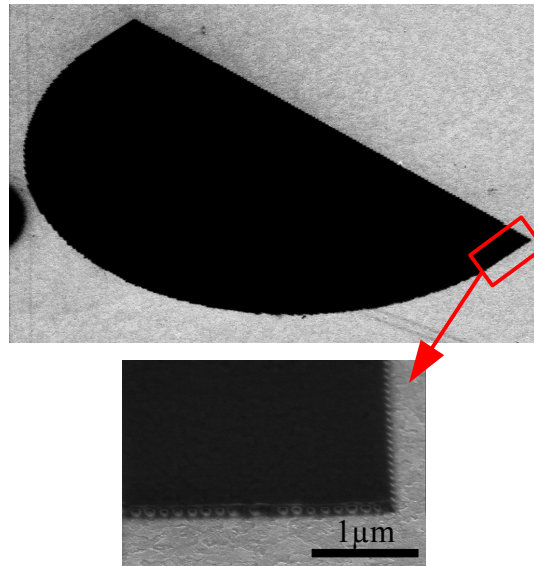


FIGURE B.5 – Structure de PMMA en limite de discrétisation : la durée d'exposition est bonne, mais le pas du balayage par le faisceau électronique est limité.

critique pour l'épaisseur et le type de résine à irradier. Ne disposant pas de ce détecteur, nous avons simplement répété un motif type en faisant varier la durée d'exposition. Par ailleurs, nous avons également fait varier la résolution du balayage par le faisceau électronique (c'est-à-dire le pas de l'échantillonnage réalisé sur le parcours que doit décrire le faisceau, voir annexe D). La figure B.4 montre les structures obtenues après développement et permet d'identifier différents espaces de paramètres (durée d'exposition ; résolution du balayage) aboutissant à des résultats bien distincts. Ainsi, les zones I et IV correspondent respectivement à la sous-exposition (structures absentes) et à la sur-exposition (figure B.4(c)) des structures. La zone III correspond quant à elle à une exposition correcte qui permet l'obtention de structures bien définies (figure B.4(b)). Enfin, la zone II correspond également à une exposition correcte, en revanche la résolution du balayage par le faisceau électronique est elle trop faible, ce qui aboutit non plus à des structures diélectriques homogènes et continues, mais à des structures discrétisées. La figure B.5 montre une structure en limite de discrétisation. On constate que

ses bords reproduisent la pixélisation due au mauvais échantillonnage pratiqué pour décrire la géométrie de la structure. En diminuant encore le pas du balayage par le faisceau électronique, on aboutit alors à des structures non continues constituées de plots discrets de polymère : c'est de cette manière qu'ont été réalisées les structures type gradients d'indice présentés dans le chapitre 7.

Naturellement, les observations quantitatives sur les paramètres (durée d'exposition ; résolution du balayage) que l'on peut faire ici ne sont valables que pour la tension d'accélération et la taille du spot du faisceau d'électrons qui ont été utilisés pour effectuer cette calibration. Comme on peut le voir d'après la table 4.2 du chapitre 4, leur modification va imposer de nouvelles conditions limites en termes de temps d'exposition, fonction du courant électronique, et de résolution du balayage, fonction de la taille physique du spot du faisceau d'électrons, ce qui demande alors d'effectuer une nouvelle calibration. L'approche développée ici permet néanmoins d'obtenir rapidement une calibration complète, par exemple en répétant le processus, sur un même échantillon-test, pour les différents paramètres d'intérêt de la colonne électronique.

Le dernier point à maîtriser fut l'absence d'obturateur mécanique sur la colonne à électrons. Dans ces conditions, le faisceau d'électrons n'est pas complètement éteint entre deux expositions successives, ce qui résulte en l'apparition d'un point dû à l'arrêt du faisceau d'électrons au niveau de chaque structure diélectrique réalisée puis d'une fine ligne lors du déplacement de l'échantillon, comme on peut notamment l'observer sur la figure B.4(b). Pour palier à ces problèmes, nous avons simplement fait en sorte que le faisceau d'électrons aille exposer un petit motif quelconque et distant après l'exposition de la structure d'intérêt, de sorte que le point d'arrêt se forme bien à l'écart de celle-ci. Les déplacements de la platine porte-échantillon sont ensuite pensés de manière à éviter toute intersection entre les lignes de polymère exposé et la zone de propagation des plasmons de surface prévue dans l'expérience.

Annexe C

Microscopie à radiation de fuite

C.1 Quelques grandeurs typiques

Nous allons considérer un film d'or mince déposé sur substrat de verre et exposé à l'air, ce qui correspond à la configuration classique utilisée pour imager les plasmons de surface par microscopie en champ de fuite. Pour que le découplage radiatif puisse avoir lieu, il faut pouvoir équilibrer les composantes parallèles à la surface des vecteurs d'onde, respectivement du plasmons de surface à l'interface air-métal et de l'onde propagative dans le substrat, soit

$$\frac{2\pi}{\lambda} n_{\text{substrat}} \sin(\theta_{\text{fuite}}) = \Re((k_{ps})_{\text{superstrat-metal}}), \quad (\text{C.1})$$

ce qui permet de déterminer l'angle d'incidence θ_{fuite} de la radiation de fuite correspondant au découplage radiatif des plasmons de surface dans le substrat. Cette équation permet de retrouver les conditions relatives aux indices des milieux diélectriques formulées dans le chapitre 3. En effet, la valeur de la composante parallèle à l'interface du vecteur d'onde des plasmons de surface étant toujours supérieure à la valeur du vecteur d'onde d'un mode propagatif à la même fréquence dans le milieu diélectrique, l'équation C.1 ne peut avoir de solution en θ_{fuite} lorsque les deux milieux diélectriques ont le même indice : il est bien nécessaire d'avoir un substrat d'indice supérieur à celui du superstrat. La figure C.1 donne l'évolution de θ_{fuite} en fonction de la longueur d'onde d'excitation dans la configuration verre-or-air usuelle. Concrètement,

ce calcul permet d'une part de s'assurer que l'ouverture numérique de l'objectif utilisé pour la détection est suffisante pour collecter la radiation de fuite, et montre d'autre part que θ_{fuite} est toujours légèrement supérieur à l'angle critique de la réflexion totale interne d'une interface verre-air, ce qui implique donc, pour éviter une réflexion totale interne de la radiation de fuite dans le substrat de verre, que l'objectif de collection soit à immersion. Soulignons que dans ce calcul, la valeur de $(k_{ps})_{superstrat-metal}$ est obtenue à partir de la relation de dispersion standard donnée par la relation (2.34) : en effet, cette relation de dispersion, initialement définie pour une interface entre deux milieux semi-infinis, n'est en réalité pas notablement modifiée dans le cas d'un film d'or épais d'une soixantaine de nanomètres [40], valeur qui correspond à tous les échantillons analysés par microscopie en radiation de fuite dans le cadre de cette thèse.

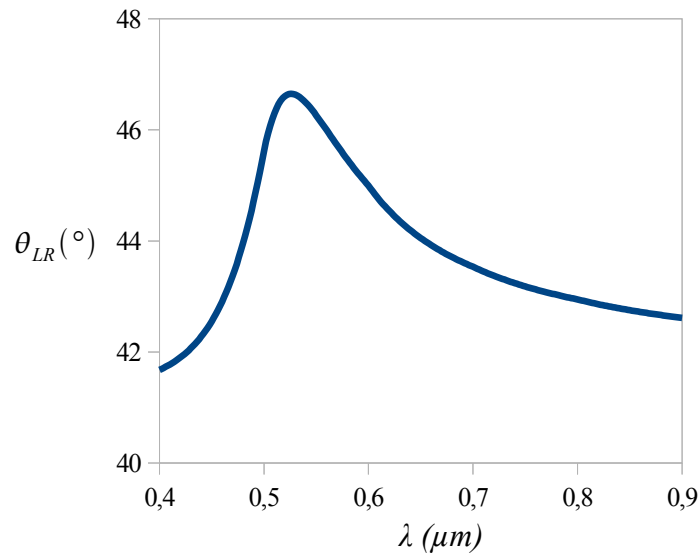


FIGURE C.1 – Angle d'incidence de la radiation de fuite en fonction de la longueur d'onde d'illumination. Le métal considéré est l'or, le substrat du verre et le superstrat de l'air.

La figure C.2(a) donne l'allure du champ plasmonique le long de la normale aux interfaces dans les conditions expérimentales usuelles des expériences réalisées. On constate bien un mode évanescent dans le milieu su-

périeur, correspondant à l'onde de surface, et un mode propagatif dans le milieu inférieur, correspondant à la radiation de fuite. Ce profil met bien en évidence le couplage qui existe entre ces deux modes et illustre ainsi parfaitement le mécanisme de base des dispositifs type Kretschmann-Raether pour l'excitation de l'onde de surface, et de la microscopie en radiation de fuite pour sa détection. Par le biais des coefficients de Fresnel des interfaces, il est également possible d'obtenir le coefficient de transmission complexe reliant l'amplitude de l'onde de surface à celle de l'onde radiative : son évolution en fonction de l'épaisseur de la couche métallique est donnée sur la figure C.2(b). C'est de ce calcul qu'est extrait le coefficient de transmission τ_{film} utilisé dans le cadre de l'étude du lancement des plasmons de surface par une fente sublongueur d'onde unique du chapitre 6.

À partir de la relation de dispersion (3.5) obtenue dans le cas d'un film métallique mince, il est intéressant d'étudier la longueur d'onde et la distance de propagation associées aux plasmons de surface se propageant à l'interface air-or, le film métallique reposant sur un substrat de verre, dans l'esprit de la configuration typique. La figure C.3(b) donne l'évolution de la longueur d'onde associée à un plasmon de surface excité à 785 nm en fonction de l'épaisseur du film métallique. On constate que celle-ci prend une valeur constante, consistante avec la valeur obtenue pour deux milieux air-or semi-infinis, pour les épaisseurs supérieures ou égales à une soixantaine de nanomètres. L'utilisation de la relation de dispersion (2.34) standard dans le calcul de θ_{fuite} est donc justifiée. Enfin, la figure C.3(b) donne l'évolution de la distance de propagation des plasmons de surface en fonction de l'épaisseur de métal. Celle-ci peut être mise en regard avec la figure C.2(b), qui montre que la partie réelle du coefficient de transmission du film métallique est inversement proportionnelle à l'épaisseur de métal. Ces figures apportent la démonstration concrète de l'idée introduite dans le chapitre 3, suivant laquelle une fine épaisseur de métal permet d'obtenir un très bon signal de fuite au détriment de plasmons de surface se propageant peu, cette configuration favorisant le découplage radiatif de l'onde de surface, tandis qu'inversement une épaisseur de métal plus conséquente résulte en un signal de fuite plus faible au profit d'une plus grande distance de propagation de l'onde de surface. La microscopie

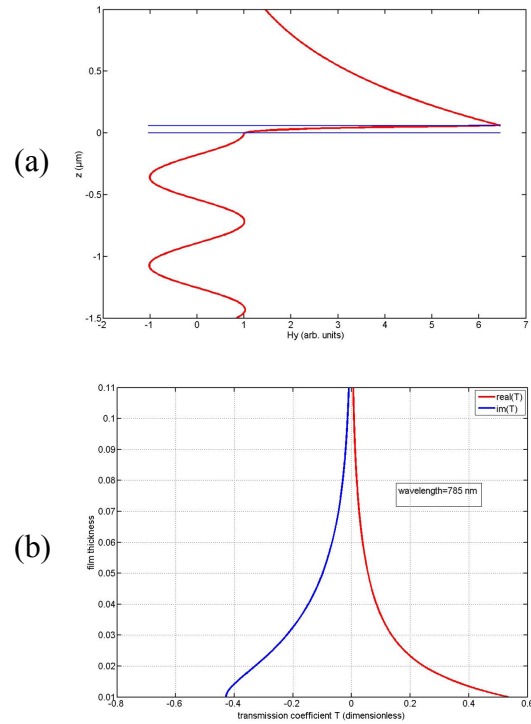


FIGURE C.2 – (a) Profil du champ plasmonique (partie réelle du champ magnétique) à 785 nm au sein d'un échantillon composé d'un film d'or de 60 nm d'épaisseur (délimité par les traits bleus) reposant sur un substrat de verre et ayant comme superstrat de l'air. (b) Évolution du coefficient de transmission complexe des plasmons de surface à 785 nm par une couche métallique d'or en fonction de l'épaisseur de celle-ci.

pie en radiation de fuite demande donc un compromis entre la luminosité des images formées et la distance de propagation de l'onde de surface observée, la balance s'effectuant par le choix de l'épaisseur du film métallique.

C.2 Quelques expériences supplémentaires

Les mesures réalisées par microscopie en radiation de fuite sur les fentes source et présentées dans le chapitre 6 ont mis en évidence une contribution importante de l'illumination diffractée par la structure. Nous avons étudié

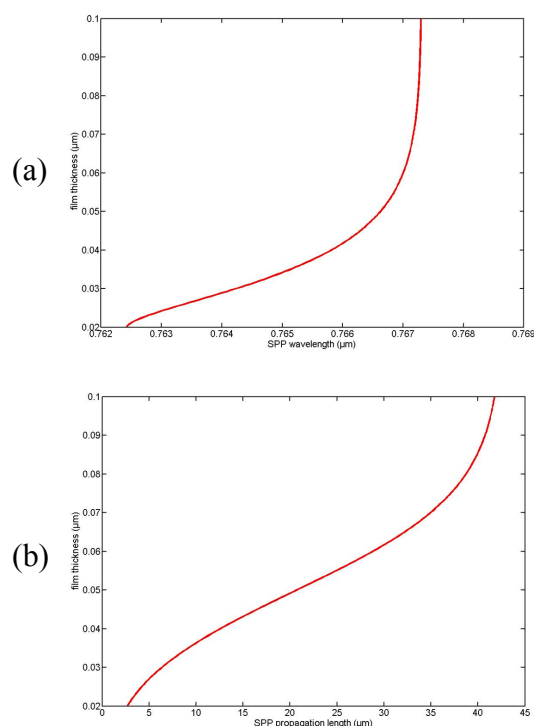


FIGURE C.3 – Évolution de la longueur d’onde (a) et de la distance de propagation (b) associées aux plasmons de surface à 785 nm se propageant à l’interface air-métal d’un film métallique déposé sur substrat de verre, en fonction de l’épaisseur du film métallique.

deux approches possibles visant à diminuer cette contribution directe pour améliorer la détection de la contribution plasmons de surface. La première intervient au niveau de la structure source directement, la seconde au niveau de la détection.

Lanceurs diélectriques Cette première approche consiste à coupler la lumière incidente aux plasmons de surface par le biais de défauts de surface qui ne demandent pas de pratiquer une ouverture dans le film métallique. Dans cet esprit, la figure C.4 montre une structure source analogue aux réseaux sources étudiés dans le chapitre 5, à la différence près que des plots de PMMA obtenus par lithographie électronique sont venus remplacer les trous

sublongueur d'onde. La transparence du film métallique reste certes importante, ce qui provoque un éblouissement au niveau de la structure source où est focalisée l'illumination (C.4(b)). En revanche, dans l'espace réciproque, la contribution directe se résume à un disque correspondant à la transformée de Fourier du spot d'Airy de l'illumination, tandis qu'elle revêt une distribution d'intensité beaucoup plus complexe et étendue dans le cas des trous percés. De façon tout à fait consistante avec les résultats du chapitre 5 relatif à l'optimisation de la qualité optique des réseaux sources, on observe que cette géométrie en losange confère exactement les mêmes propriétés de collimation et d'uniformité au faisceau plasmon lancé par cette structure diélectrique.

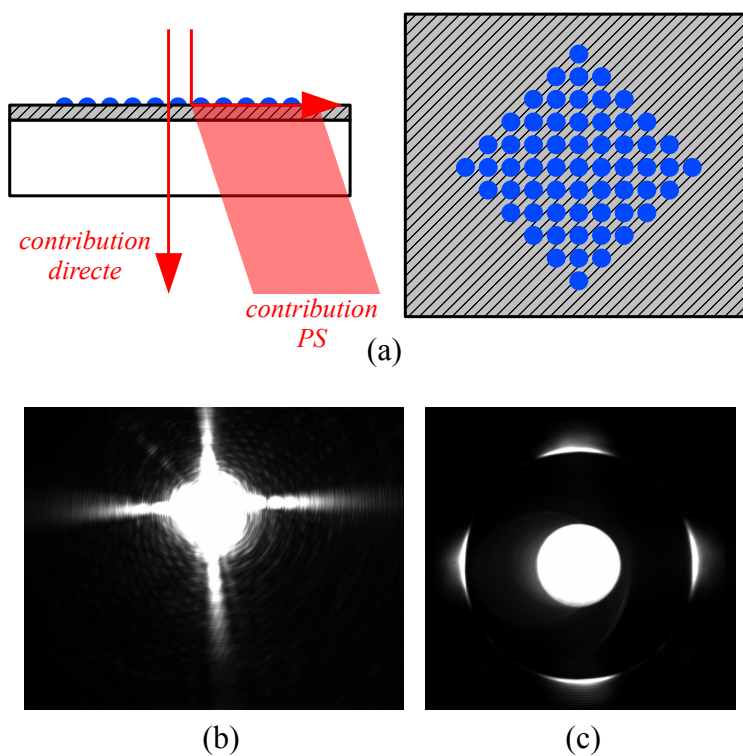


FIGURE C.4 – (a) Vue schématique d'une structure source ayant la même géométrie que le réseaux source optimisé étudié dans le chapitre 5, les trous sublongueur d'onde étant remplacés par des plots en diélectrique (diamètre 250 nm, hauteur 60 nm). Images obtenues par microscopie en radiation de fuite dans l'espace réel (b) et dans l'espace réciproque (c).

Filtrage des fréquences spatiales Cette seconde approche vise cette fois à améliorer les performances de la détection par la mise en place d'un dispositif de filtrage des fréquences spatiales. Cette méthode constitue un outil très puissant en optique, et qui trouve une application naturelle dans ce contexte de microscopie à radiation de fuite. Dans le plan Fourier du microscope à radiation de fuite, on place un masque destiné à obstruer les fréquences spatiales inférieures à celle correspondant aux plasmons de surface (C.5(b)). Une conjugaison $f - f$ permet ensuite d'effectuer la transformée de Fourier optique qui permet de revenir dans l'espace réel et aboutit ainsi à la formation de l'image filtrée. Les figures C.5(a) et (b) permettent de comparer l'effet du filtrage. Le spot d'illumination a été défocalisé afin de recouvrir la fente sur toute sa longueur et de donner lieu à faisceau plasmon de surface présentant un motif d'interférence complexe à proximité de la structure. Sur l'image non filtrée, on observe bien le spot d'illumination défocalisé, dont l'intensité transmise à travers le film d'or ne permet pas de distinguer la distribution d'intensité des plasmons de surface à proximité de la structure. Celle-ci apparaît en revanche clairement sur l'image filtrée. Malgré des distorsions qui sont dues à la mauvaise qualité du masque placé dans le plan Fourier, le motif d'interférence observé est semblable à celui observé par la technique d'imagerie par fluorescence : cette approche avait précisément été utilisée pour pouvoir travailler sur films épais dans le but de diminuer la contribution directe (voir la figure 6.8 du chapitre 6).

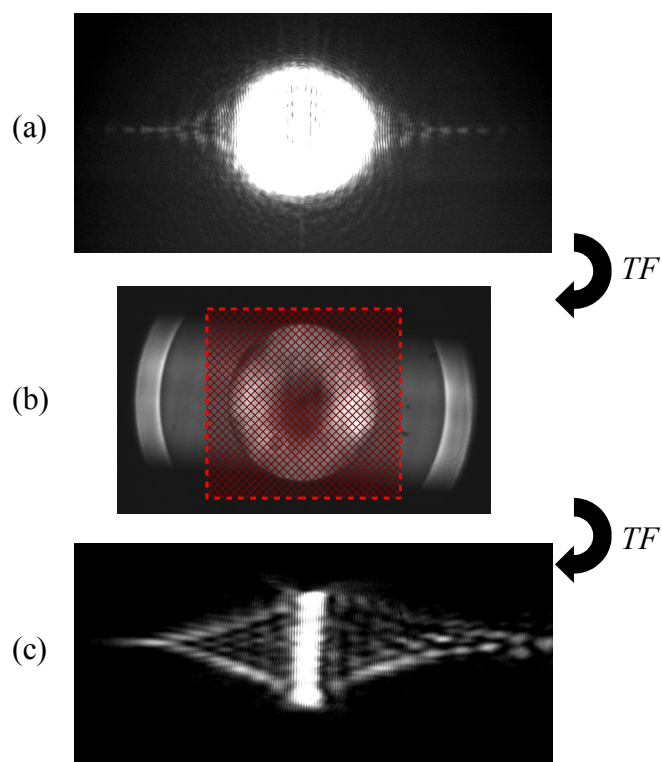


FIGURE C.5 – Application du filtrage spatial pour diminuer la contribution directe. (a) Image obtenue par microscopie en radiation de fuite du faisceau plasmon lancé par une fente source éclairée en défocalisant le spot d'illumination de manière à couvrir toute la fente. (b) Distribution d'intensité associée dans le plan Fourier. La partie hachurée correspond aux fréquences éliminées par le filtre mis en place. (c) Image filtrée.

Annexe D

Fabrication avancée de nanostructures

D.1 Pilotage des faisceaux

Dans le cadre de la fabrication de structures par gravure ionique ou par lithographie électronique, les déplacements des faisceaux d'ions et d'électrons dans le plan de l'échantillon se font en modifiant les tensions électriques appliquées aux niveau des composants de la colonne correspondante (voir le descriptif du système donné au chapitre 4). L'ajustement de ces tensions est réalisé par le biais d'une électronique de contrôle qui permet de coder sur une profondeur de 12 bits les déplacements des faisceaux suivant chacun des deux axes (\mathbf{x}, \mathbf{y}) du plan focal où se situe, à la mise au point, la surface de l'échantillon. Celle-ci est donc échantillonnée suivant une grille régulière de $2^{12} \times 2^{12}$ points qui correspondent à autant de positions distinctes du champ couvert par l'instrument où les faisceaux peuvent être allumés. Le processus consiste ensuite à indiquer à la machine la liste des coordonnées $(x_i, y_i)_{i=1..n}$ de la grille qui correspondent au motif que l'on souhaite fabriquer, chaque position (x_i, y_i) se voyant accompagnée du temps d'exposition t_i correspondant souhaité. Cette liste de coordonnées dépend naturellement de la définition géométrique de la structure que l'on souhaite réaliser, mais doit impérativement être élaborée en tenant compte du grossissement et de la taille du

Grossissement (kX)	Largeur du champ couvert (μm)	Pas du balayage (nm)
1	304	74
1.2	253	62
1.5	203	50
2	152	37
2.5	122	30
3.5	86.9	21
5	60.8	15
6.5	46.8	11
8	38	9
10	30.4	7
14	25.3	6
15	20.3	5
20	15.2	4
25	12.2	3
35	8.69	2

Données techniques FEI

TABLE D.1 – Quelques valeurs des grossissements disponibles sur les colonnes FIB/MEB, avec les valeurs correspondantes de la largeur du champ couvert par l'instrument. Les déplacements des faisceaux étant codés sur 12 bits dans chaque direction du plan focal, on en déduit la valeur du pas correspondant du balayage dans le plan focal.

faisceau destinés à être utilisés au moment de la fabrication.

Grossissement Le nombre de points de la grille d'échantillonnage reste toujours le même quel que soit le grossissement utilisé sur les colonnes : il ne dépend en effet que de la profondeur de codage de l'électronique de contrôle. En revanche, le champ couvert par l'instrument dépend lui du grossissement (table D.1). L'échantillonnage d'un motif de taille fixé n'occupera donc pas le même espace sur la grille suivant le grossissement destiné à être utilisé. La figure D.1(b) illustre ce point. En posant $N = 2^{12}$ la profondeur de codage de l'électronique de contrôle, hfw la largeur du champ couvert par l'instrument¹, d une distance caractéristique de la structure à réaliser (diamètre

1. *Horizontal Focal Width*

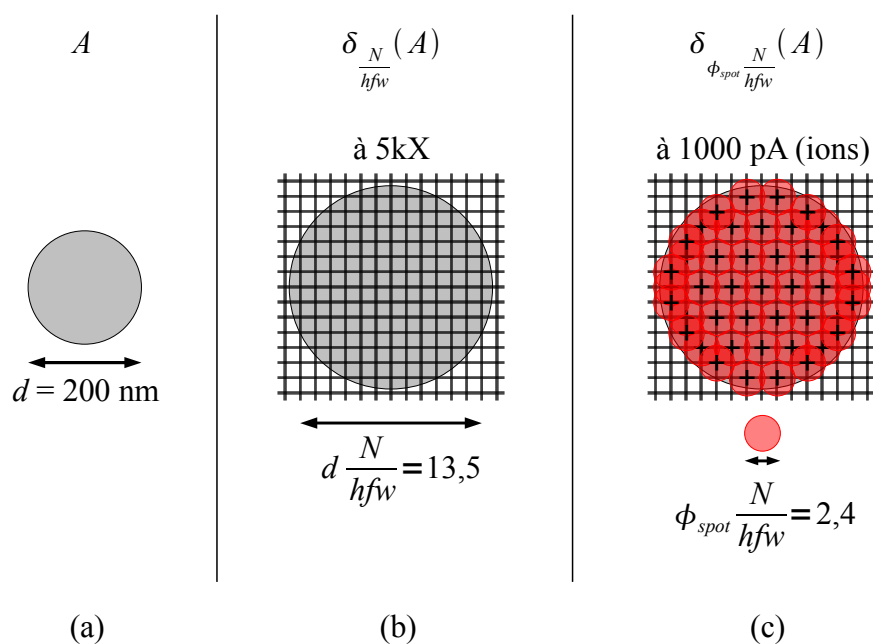


FIGURE D.1 – Principe de l'échantillonnage à réaliser sur le motif de consigne (a), en fonction du grossissement sélectionné sur la colonne (b), puis de la taille de spot utilisée et du taux de recouvrement souhaité (c). Dans cet exemple, le taux de recouvrement choisi est faible, seulement quelques pour cent. Sur (c), les “+” indiquent les nœuds de la grille qui seront finalement retenus pour dresser la liste de coordonnées $(x_i, y_i)_{i=1..n}$ transmises à la machine.

d'un trou, largeur ou longueur d'une fente, etc.), le nombre de nœuds correspondant sur la grille est donné par $d \times N/hfw$. Dans la mesure où hfw est déterminé par le grossissement, la liste des coordonnées descriptives du motif à réaliser doit par conséquent être élaborée en connaissance du grossissement destiné à être utilisé (le grossissement doit évidemment être choisi de sorte que le motif à réaliser s'inscrive intégralement dans le champ couvert par l'instrument). Il va sans dire que si le grossissement sélectionné lors de la gravure ne correspond pas au grossissement utilisé lors l'élaboration de la liste de coordonnées descriptives de la structure, la structure obtenue ne sera pas à la bonne échelle.

Taille de spot La table D.1 donne également les distances hfw/N qui correspondent, dans le plan focal, au pas élémentaire de la grille d'échantillonnage en fonction du grossissement sélectionné sur la colonne. Ces distances se doivent d'être comparées aux dimensions physiques des faisceaux dans le plan focal (voir les tailles de spots données au chapitre 4, table 4.1 pour les ions et table 4.2 pour les électrons). En effet, lorsque le diamètre du spot utilisé est inférieur au pas de la grille, la structure réalisée présentera une discrétisation. Dans la plupart des cas, cet effet n'est pas souhaité initialement, et il faut donc s'assurer que le diamètre du spot utilisé est supérieur au pas de la grille, ce qui permet un recouvrement du faisceau entre deux points d'impact voisins. Dans ces conditions, il convient alors, pour obtenir des performances optimales, de gérer le taux de recouvrement entre les points d'impact des faisceaux en fonction de la nature du matériau à structurer : à titre d'exemple, taux de recouvrement de 50% permet d'obtenir une gravure ionique uniforme dans le cas de l'or (préconisation FEI). Concrètement, après avoir généré la liste complète des points $(x_i, y_i)_{i=1..n}$ décrivant, pour un grossissement donné, la structure à réaliser, il faut encore en extraire un sous-ensemble de points (on réalise un échantillonnage sur i) suivant le diamètre du spot destiné à être utilisé, de manière à obtenir le taux de recouvrement désiré. Ceci est illustré sur la figure D.1(c). Cette opération permet dans le même temps d'éviter l'élargissement des structures provoqué par la taille physique du faisceau par rapport aux dimensions de consigne : sur la

grille, on diminue la largeur de la structure d'une distance égale au diamètre du spot. De façon analogue au précédent paragraphe, il va sans dire que la structure doit ensuite être réalisée avec le spot adéquat, sans quoi la résolution de sa fabrication ne sera pas celle souhaitée.

Dans la pratique, la liste de points descriptifs de la structure s'obtient en utilisant un logiciel fourni par le constructeur de la station de travail FIB-SEM. La réalisation, par ce biais, des structures présentées dans cette thèse s'est rapidement heurtée à différentes limitations du logiciel. Citons entre autres :

- il est uniquement possible de générer des motifs de géométrie simple : des cercles, des rectangles et des polygones d'ordre 4. La fabrication de structures telles que la lentille biconvexe étudiée dans le chapitre 7 s'avérerait donc délicate en l'état ;
- le logiciel semble avoir été développé dans l'hypothèse de motifs de dimensions micrométriques et non nanométriques : on obtient des points aberrants sur des motifs de dimensions sublongueurs d'onde, et cette tendance s'accroît fortement à mesure que les dimensions des motifs demandés sont diminuées. La fabrication de structures telles que les optiques métalliques et les gradients d'indice diélectriques du chapitre 7, qui sont constitués de motifs élémentaires de quelques dizaines de nanomètres de diamètre, s'avérerait tout aussi délicate ;
- enfin, le logiciel n'offre qu'une flexibilité très limitée lorsque l'on cherche à faire varier le temps d'exposition au sein du motif : il est uniquement possible de demander une variation linéaire du temps d'exposition d'un point à l'autre de la grille, ce qui ne permet pas de tirer pleinement partie des capacités de la station de travail qui peut elle accepter un temps d'exposition différent en chacun des points $(x_i, y_i)_{i=1..n}$ descriptifs du motif.

Toutes ces limitations nous ont rapidement poussés à développer notre propre logiciel de pilotage des faisceaux. Sans rentrer dans les détails de la programmation, l'idée de base de notre approche consiste, assez logiquement, à assimiler la grille d'échantillonnage à une image : la position d'un pixel

dans l'image correspond à une position (x_i, y_i) sur l'échantillon où peuvent être dirigés les faisceaux, et la valeur du pixel code pour le temps d'exposition. La programmation a été réalisée sous IDL, qui est un environnement de calcul et de visualisation particulièrement bien adapté à la manipulation d'images : de nombreuses fonctionnalités de traitement d'images y sont déjà implémentées, tandis que la manipulation de données s'y fait dans un esprit qui assimile complètement la notion de matrice à celle d'image. En cela, IDL forme un homologue mathématique direct des logiciels de retouche et de création d'images basés sur l'utilisation de filtres et la manipulation de calques. Le programme IDL réalisé procède de la façon suivante :

1. on définit une image de $2^{12} \times 2^{12}$ pixels sur laquelle est dessinée, au grossissement destiné à être utilisé, la géométrie de la structure à fabriquer. Pour ce faire, différentes procédures ont été réalisées pour générer toutes sortes de motifs, tels que des structures périodiques de trous, de fentes ou d'anneaux, différents types optiques 2D, des sillons en V, etc. La conversion en [*nombre de pixels*] des dimensions des structures s'obtient par une simple multiplication par N/hfw . L'image est générée en niveaux de gris, ceux-ci codant, comme indiqué, pour les temps d'exposition souhaités. Précisons toutefois qu'ici, les valeurs possibles ainsi que la résolution sur les niveaux de gris de cette image ne sont bien sûr pas limitées par la profondeur de codage d'une image numérique standard (par exemple entre 0 et 255 pour une image en niveaux de gris codée sur 8 bits) mais par celle de l'électronique de contrôle du faisceau : les temps d'exposition t_i semblent être codés sur 15 bits d'après nos tests (la valeur n'est pas spécifiée par le constructeur) et correspondent à des centaines de nanosecondes, ce qui, concrètement, permet de définir des temps d'exposition de $0.0 \mu s$ à $3276.7 \mu s$ par pas de $0.1 \mu s$.
2. On spécifie ensuite la taille du spot du faisceau destiné à être utilisé ainsi que le taux de recouvrement souhaité à une procédure chargée de ré-échantillonner l'image de façon adéquate.
3. Une dernière procédure relève alors la position (x_i, y_i) ainsi que la valeur t_i de chaque pixel restant, rassemble et trie éventuellement ces données

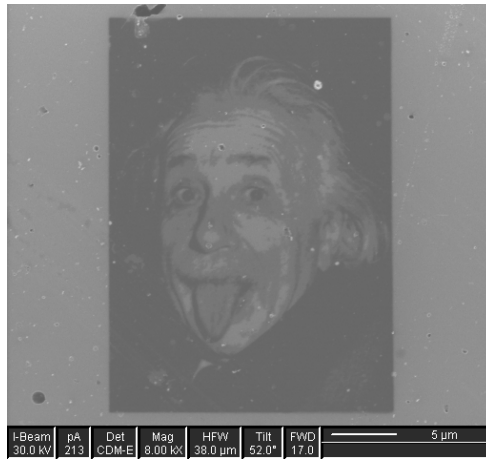


FIGURE D.2 – Exemple ludique d’utilisation du programme de pilotage des faisceaux d’ions et d’électrons développé dans le cadre de la thèse.

s’il est nécessaire de gérer l’ordre de passage, puis génère un fichier de sortie formaté pour la station de travail.

La figure D.2 donne un exemple ludique d’un motif réalisé à partir de notre programme. Outre les structures étudiées dans la partie II, nous allons maintenant voir un exemple beaucoup plus sérieux d’un autre type de structures réalisées durant cette thèse à l’aide de ce programme : les sillons en V. Enfin, dans le contexte non plus de l’optique de surface mais de la transmission de la lumière par des structures métalliques, on pourra encore consulter les références [121, 122, 123] qui donnent des exemples de structures réalisées par d’autres membres du laboratoire à partir de ce programme, la géométrie particulière de ces structures permettant une manipulation originale et performante de la lumière.

D.2 V-grooves

À la fin du chapitre 3, nous avons introduit la notion de modes de gap, modes particuliers qui peuvent apparaître et se propager au sein d’un guide formé de deux surfaces métalliques proches. Ce type de mode résulte du couplage entre le mode plasmon de surface de chacune des parois du guide. Ses

propriétés dépendent donc du recouvrement qui existe entre ces deux modes, autrement dit de la pulsation et des milieux d'une part, ceux-ci déterminant l'extension spatiale du champ associé à l'onde de surface, et de la distance entre les deux parois métalliques d'autre part. Lorsque les parois métalliques ne sont pas parallèles mais forment un sillon en forme de V, le champ se retrouve confiné dans la zone où l'écart entre les parois est suffisamment faible pour permettre le recouvrement entre leur mode respectif, c'est-à-dire au fond du sillon, et on parle alors de *channel plasmon polariton* (CPP). Une propriété originale d'un sillon métallique est de permettre d'agir, à pulsation fixée, sur le confinement du mode CPP à partir des paramètres géométriques de la structure, en l'occurrence au niveau de l'angle formé entre les deux parois du sillon. Ainsi, lorsque l'angle est grand, les parois s'écartent rapidement et le mode CPP se retrouve fortement confiné au fond du sillon : le champ est poussé dans le métal, ce qui, de façon analogue à ce que nous avons déjà vu en configuration plane, rend le mode plus sensible aux pertes du métal et se traduit par une distance de propagation amoindrie. En revanche, lorsque l'angle est diminué, les parois s'écartent plus doucement et le mode CPP remonte progressivement du fond du sillon [124]. En optimisant cet angle, il est possible de faire en sorte que le champ occupe l'espace entre les parois de façon optimale, minimisant de ce fait les pertes liées au métal. On obtient alors des distances de propagation considérables sans pour autant perdre en confinement de façon aussi drastique qu'en configuration plane. Dès lors, les sillons métalliques permettent la fabrication de guides d'onde robustes dans lesquels les CPPs sont fortement confinés et se propagent toutefois dans le circuit sans que le signal ne perde trop en puissance, tandis que des composants miniatures peuvent être fabriqués à partir de portions courbes de guides d'onde présentant des rayons de courbure comparable à la longueur d'onde du signal véhiculé.

C'est dans ce contexte que le groupe du Pr. Sergey Bozhevolnyi de l'Université d'Aalborg est parvenu à implémenter différentes fonctionnalités de guidage, de filtrage et de multiplexage du signal dans des volumes extrêmement faibles à partir de guides d'onde pour CPPs optimisés aux longueurs d'onde des télécommunications [82, 83, 84]. Nous avons eu la chance de par-

ticiper à ces travaux au niveau de la fabrication des structures. Celle-ci s'est révélée être un véritable défi technologique en raison de la géométrie et des dimensions très particulières des sillons à réaliser, et qui nous a amené avec Eloïse Devaux à développer au FIB une nouvelle approche spécialement dédiée à ce type de structure. Nous allons à présent aborder quelques uns des points clés de cette approche qui illustreront les difficultés rencontrés lors de la réalisation par ablation ionique de ces structures et la stratégie adoptée pour les dépasser.

Angle du sillon Nous avons vu que l'angle du sillon était un paramètre critique vis-à-vis des propriétés des modes CPPs supportés. Les sillons gravés dans les films d'or font 500–550 nm de large (mesuré dans le plan de la surface métallique) pour 1.2–1.3 μm de profondeur, ce qui correspond à un angle de l'ordre de 25° et permet d'obtenir les performances maximales pour un sillon air-or excité autour de 1.5 μm . La longueur des guides d'onde est elle, dans la majorité des structures réalisées, de 250 μm . Si la largeur du sillon est en soi facilement accessible aux forts grossissements du FIB, il reste à contrôler localement et précisément, d'un bord à l'autre du sillon, la quantité de métal enlevée afin d'obtenir une allure de sillon en V comme souhaité. En première approche, on peut naturellement penser à faire diminuer linéairement la durée d'exposition aux ions du centre du sillon à ses extrémités. Néanmoins, on voit d'après la table D.1 qu'il faut au plus utiliser un grossissement de 1.2 kX pour obtenir un champ qui couvre toute la longueur du guide à réaliser. À ce grossissement, le pas de la grille d'échantillonnage correspond à une distance caractéristique de 62 nm dans le plan focal de l'instrument : la distance du centre aux bords du sillon équivaut donc à seulement 4 points de la grille (voir aussi la figure D.5(a)). C'est bien trop peu pour définir avec une résolution suffisante une pente qui fait $(25/2)^\circ$ par rapport à la normale à la surface. Nous avons donc abandonné l'idée de la variation locale du temps d'exposition aux ions au profit d'une approche qui tire profit de la forme gaussienne du faisceau ionique. Cette propriété est généralement perçue comme un inconvénient : en effet, l'allure gaussienne du faisceau fait en sorte que, à titre d'exemple, la gravure d'un trou cylindrique aboutit en réalité à un trou légè-

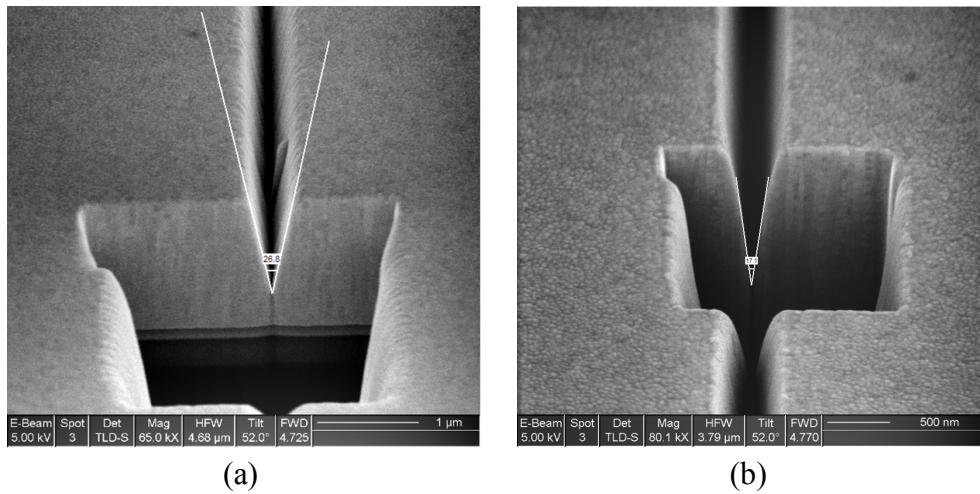


FIGURE D.3 – Images MEB de coupes pratiquées dans des guides d’onde à CPPs pour évaluer l’angle du sillon. (a) L’angle ($\approx 28^\circ$) est proche de la valeur optimale pour les milieux et la gamme de pulsations utilisés : le champ va occuper l’espace dans le sillon de manière optimale. (b) L’angle ($\approx 17^\circ$) est trop refermé, le champ va remonter dans le sillon et se coupler à des modes de coin au niveau des bords du sillon.

rement conique. Cette tendance s’accroît avec la profondeur à atteindre et avec la taille du spot, autrement dit du courant ionique, utilisé. Dans notre cas, nous avons conservé un temps d’exposition constant sur toute la largeur du sillon, mais nous avons en revanche soigneusement optimisé le courant ionique jusqu’à atteindre l’angle souhaité. En d’autres termes, ce n’est donc pas par une variation du temps d’exposition que nous avons obtenu le profil de sillon souhaité, mais par une convolution rigoureuse entre la largeur de consigne du motif à graver et l’ouverture du faisceau ionique utilisé. Précisons que ceci implique de fait une nouvelle optimisation du courant ionique à utiliser si l’on est amené à travailler à un grossissement différent, par exemple pour réaliser des guides d’onde plus longs. La figure D.3 compare deux angles de sillon obtenus avec des réglages de colonne ionique différents. Le premier est très proche de la valeur optimale tandis que le second est notablement inférieur. Dans ce dernier cas, le champ se localise à une plus grande distance du fond du sillon, comme nous l’avons vu. En raison de la hauteur finie du

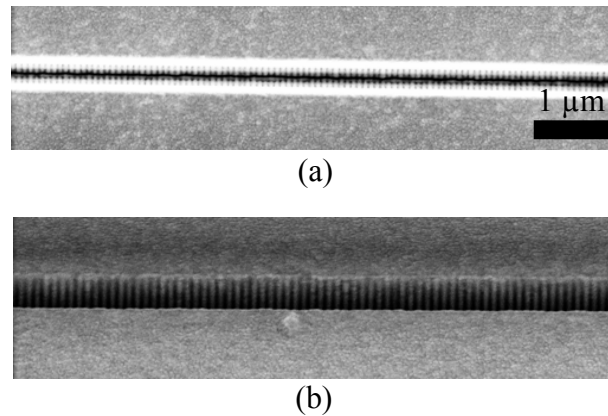


FIGURE D.4 – Images MEB : vue du dessus (a) et en perspective (b) d'un sillon présentant des défauts de discrétisation.

sillon, il perçoit alors les bords du sillon et se couple à un mode de coin (on parle de *wedge plasmon polariton*) [124]. Celui-ci est rapidement atténué car les plasmons de surface peuvent diffuser le long de la surface métallique, et la proximité de sa relation de dispersion avec la ligne de la lumière provoque des pertes radiatives importantes.

Discrétisation Nous avons vu que la longueur des guides d'onde réalisés implique de travailler à un grossissement suffisamment faible pour que la structure s'inscrive intégralement dans le champ couvert par la colonne ionique. La table D.1 montre que dans ces conditions, le pas de la grille d'échantillonnage correspond dans le plan focal de l'instrument à des distances caractéristiques relativement importantes en comparaison de la taille des spots ioniques utilisés (table 4.1). On se retrouve donc face au problème de discrétisation évoqué en début d'annexe, comme le montre la figure D.4 : la discrétisation est légère mais perceptible notamment aux niveau des bords du sillons. Les parades usuelles dans ce cas de figure consistent à travailler à plus fort grossissement ou à plus fort courant ionique, or ces deux paramètres sont ici fixés, comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, en raison des dimensions des structures. Une autre approche possible consiste alors à légèrement défocaliser le faisceau ionique : le spot s'en trouve élargi,

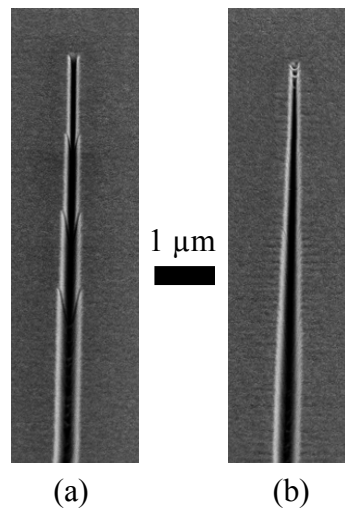


FIGURE D.5 – Images MEB : réalisation d’un sillon présentant une extrémité conique par une réduction progressive de sa largeur et lorsque le temps d’exposition aux ions est (a) gardé constant (b) localement varié.

ce qui peut permettre de venir à bout de la discrétisation. En revanche cette action va également avoir un effet au niveau de l’angle du sillon, ce qui doit impérativement être évité pour lui conserver des performances optimales. Nous nous sommes donc intéressés au parcours suivi par le faisceau ionique lors de la gravure, et nous sommes parvenus à venir à bout des défauts de discrétisation observé en lui imposant des allers et retours le long du guide d’onde : cet effet s’explique par le fait que le faisceau ionique n’est pas parfaitement éteint entre deux positions successives. Jusqu’ici, les défauts de discrétisation s’observaient dans la profondeur du sillon, mais ils vont également apparaître au niveau de la largeur du sillon lorsque celle-ci est variée, par exemple lorsque nous avons cherché à produire un guide d’onde se terminant par une diminution adiabatique de sa section dans le but de démontrer un effet de focalisation du champ au niveau de cette pointe. Cet effet est illustré sur la figure D.5. Dans ce cas de figure précis, nous avons cette fois introduit des gradients de temps d’exposition au niveau de l’extrémité du guide pour surmonter les défauts observés.

La figure D.6 donne quelques exemples de composants à base de sillons en V pour CPPs réalisées avec Eloïse Devaux dans le cadre de cette thèse, à la demande du groupe du Pr. Sergey Bozhevolnyi. L'étude et la caractérisation de ces composants est exposée dans les références [51, 82, 83, 84, 85, 86]. La littérature est par ailleurs très riche en simulations réalisées sur ce type de structure, ce qui témoigne de l'intérêt porté à leurs performances mais atteste également des difficultés quant à leur fabrication expérimentale. Dans le cas de l'ablation ionique, même une fois les processus FIB bien maîtrisés, un autre point critique réside dans la qualité des couches métalliques destinées à être structurées : étant donné la longueur des guides d'onde qui peut être envisagée, il faut, expérimentalement, parvenir à obtenir un film métallique parfaitement homogène sur des zones très étendues afin de garantir une gravure homogène du sillon. Cet aspect a déjà été abordé dans l'annexe A, la qualité de la déposition à atteindre étant ici exacerbée par l'étendue des structures à réaliser. Actuellement, des procédés de *nanoimprint*, basés sur la réplique dans une résine de motifs présents sur un moule obtenu par une technique d'attaque chimique, sont en cours de développement [125]. Les paramètres géométriques, notamment au niveau de l'angle du sillon, des structures obtenues par ces procédés sont encore limités à des valeurs qui ne permettent pas un fonctionnement optimal de ces structures, mais ces processus laissent toutefois envisager la possibilité future d'une fabrication industrielle de cette famille de composants.

Conclusion

Les différents points abordés au cours de cette annexe ainsi que les structures développées dans le cadre de cette thèse nous permettent de constater que la résolution effective de la fabrication par lithographie ionique ou électronique est, au final, fonction de :

- la résolution intrinsèque du pilotage des faisceaux, déterminée par la profondeur du codage de l'électronique de contrôle des faisceaux et par le grossissement utilisé sur les colonnes : c'est ce paramètre qui se révèle être le facteur limitant dans le cadre de la fabrication des sillons en V

- pour CPPs par ablation ionique ;
- la taille de spot du faisceau utilisé, fonction des différents réglages des colonnes : facteur limitant dans le cadre de la fabrication des lentilles métalliques par ablation ionique ;
- la résolution intrinsèque du matériau à structurer : facteur limitant dans le cadre de la fabrication des gradients d'indice diélectriques par lithographie électronique du PMMA, utilisé en positif.

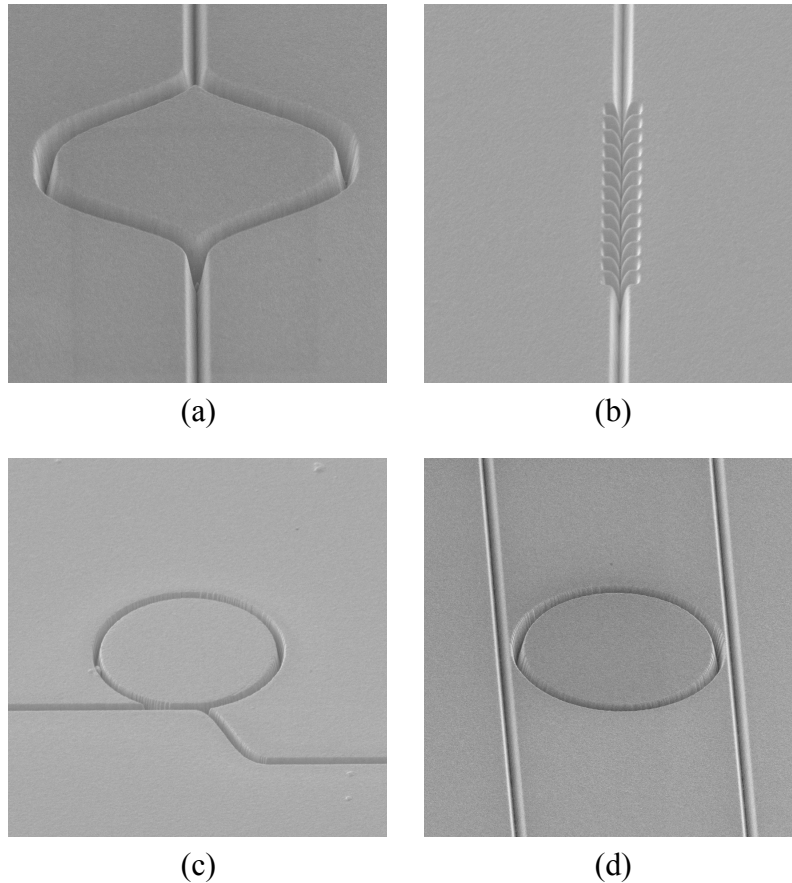


FIGURE D.6 – Images MEB de différents composants à base de sillons en V pour CPPs aux longueurs d’onde des télécommunications. (a) Interféromètre de Mach-Zender. (b) Miroir de Bragg, (b) *ring loop resonator* et (c) *add-drop multiplexer*, structures permettant de filtrer, d’ajouter ou d’extraire des composantes fréquentielles du signal, dans le contexte de la technologie de multiplexage en longueur d’onde. Dans toutes ces structures, la largeur du sillon, mesurée au niveau de la surface du métal, est de 500–550 nm, le rayon de courbure typique est de 5 μm , et la longueur totale de ces guides d’onde est de 250 μm .

Bibliographie

- [1] C. Kittel. *Introduction to solid state physics*. John Wiley, New York, 1976.
- [2] N.W. Aschcroft and N.D. Mermin. *Solid state physics*. Saunders College, Philadelphia, 1976.
- [3] E.D. Palik. *Handbook of optical constants of solids*. Academic, London, 1985.
- [4] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 2006.
- [5] H. Raether. *Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings*. Springer-Verlag, Berlin, 1988.
- [6] R.W.G. Wyckoff. *Crystal Structures*. Interscience, New York, 1963.
- [7] C. J. Powell and J. B. Swan. Origin of the characteristic electron energy losses in aluminum. *Phys. Rev.*, 115(4) :869–875, Aug 1959.
- [8] M.A. Ordal, R.J. Bell, R.W. Alexander Jr, L.L. Long, and M.R. Query. Optical properties of fourteen metals in the infrared and far infrared. *Appl. Opt.*, 24 :4493, 1985.
- [9] J. Zenneck. *Elektromagnetische Schwingungen und drahtlose Telegraphie*. F. Enke, Stuttgart, 1905.
- [10] A. Sommerfeld. *Über die Ausbreitung der Wellen in der drahtlosen Telegraphie*, volume 28. Wiley-VCH, 1909.
- [11] J. Zenneck. Über die fortpflanzung ebener elektromagnetischer wellen längs einer ebenen leiterfläche und ihre beziehung zur drahtlosen telegraphie. *Ann. der Phys.*, 23 :846, 1907.

- [12] R.H. Ritchie. Plasma losses by fast electrons in thin films. *Phys. Rev.*, 106 :874, 1957.
- [13] Jiri Homola, Sinclair S. Yee, and Günter Gauglitz. Surface plasmon resonance sensors : review. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 54(1-2) :3 – 15, 1999.
- [14] H. J. Simon, D. E. Mitchell, and J. G. Watson. Optical second-harmonic generation with surface plasmons in silver films. *Phys. Rev. Lett.*, 33(26) :1531–1534, Dec 1974.
- [15] Katrin Kneipp, Harald Kneipp, Irving Itzkan, Ramachandra R. Dasari, and Michael S. Feld. Ultrasensitive chemical analysis by raman spectroscopy. *Chemical Reviews*, 99(10) :2957–2976, 1999.
- [16] C. J. Powell and J. B. Swan. Effect of oxidation on the characteristic loss spectra of aluminum and magnesium. *Phys. Rev.*, 118(3) :640–643, May 1960.
- [17] A. Otto. Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection. *Zeit. für Physik*, 216 :398–410, 1968.
- [18] P. Dawson, F. de Fornel, and J-P. Goudonnet. Imaging of surface plasmon propagation and edge interaction using a photon scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 72(18) :2927–2930, May 1994.
- [19] A. Bouhelier and G. P. Wiederrecht. Surface plasmon rainbow jets. *Opt. Lett.*, 30(8) :884–886, 2005.
- [20] H.J. Simon and J.K. Guha. Directional surface plasmon scattering from silver films. *Optics Communications*, 18(3) :391 – 394, 1976.
- [21] B. Hecht, H. Bielefeldt, L. Novotny, Y. Inouye, and D. W. Pohl. Local excitation, scattering, and interference of surface plasmons. *Phys. Rev. Lett.*, 77(9) :1889–1892, Aug 1996.
- [22] A. Bouhelier, Th. Huser, H. Tamaru, H.-J. Güntherodt, D. W. Pohl, Fadi I. Baida, and D. Van Labeke. Plasmon optics of structured silver films. *Phys. Rev. B*, 63(15) :155404, Mar 2001.

- [23] Aurelien Drezet, Andreas Hohenau, Andrey L. Stepanov, Harald Ditlbacher, Bernhard Steinberger, Nicole Galler, Franz R. Aussenegg, Alfred Leitner, and Joachim R. Krenn. How to erase surface plasmon fringes. *Applied Physics Letters*, 89(9) :091117, 2006.
- [24] 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(14) :143901, Sep 2003.
- [25] Eloise Devaux, Thomas W. Ebbesen, Jean-Claude Weeber, and Alain Dereux. Launching and decoupling surface plasmons via microgratings. *Applied Physics Letters*, 83(24) :4936–4938, 2003.
- [26] D. Egorov, B. S. Dennis, G. Blumberg, and M. I. Haftel. Two-dimensional control of surface plasmons and directional beaming from arrays of subwavelength apertures. *Phys. Rev. B*, 70(3) :033404, Jul 2004.
- [27] 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(11) :6779–6782, Sep 1998.
- [28] R. W. Wood. The anomalous dispersion of sodium vapour. *Philos. Mag.*, 4 :396, 1902.
- [29] A. Hessel and A. A. Oliner. A new theory of wood’s anomalies on optical gratings. *Appl. Opt.*, 4(10) :1275–1297, 1965.
- [30] 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.
- [31] H. Ditlbacher, J. R. Krenn, N. Felidj, B. Lamprecht, G. Schider, M. Salerno, A. Leitner, and F. R. Aussenegg. Fluorescence imaging of surface plasmon fields. *Applied Physics Letters*, 80(3) :404–406, 2002.
- [32] A. Dereux, E. Devaux, J. C. Weeber, J. P. Goudonnet, and C. Girard. Direct interpretation of near-field optical images. *Journal of Microscopy*, 202(2) :320–331, 2001.

- [33] Eloïse Devaux, Alain Dereux, Eric Bourillot, Jean-Claude Weeber, Yvon Lacroute, Jean-Pierre Goudonnet, and Christian Girard. Local detection of the optical magnetic field in the near zone of dielectric samples. *Phys. Rev. B*, 62(15) :10504–10514, Oct 2000.
- [34] J.-C. Weeber, J. R. Krenn, A. Dereux, B. Lamprecht, Y. Lacroute, and J. P. Goudonnet. Near-field observation of surface plasmon polariton propagation on thin metal stripes. *Phys. Rev. B*, 64(4) :045411, Jul 2001.
- [35] Anton Kuzyk, Mika Pettersson, J. J. Toppari, Tommi K. Hakala, Hanna Tikkanen, Henrik Kunttu, and Päivi Törmä. Molecular coupling of light with plasmonic waveguides. *Opt. Express*, 15(16) :9908–9917, 2007.
- [36] A. V. Akimov, A. Mukherjee, C. L. Yu, D. E. Chang, A. S. Zibrov, P. R. Hemmer, H. Park, and M. D. Lukin. Generation of single optical plasmons in metallic nanowires coupled to quantum dots. *Nature*, 450(7168) :402–406, Nov 2007.
- [37] Stefan A. Maier, Michelle D. Friedman, Paul E. Barclay, and Oskar Painter. Experimental demonstration of fiber-accessible metal nanoparticle plasmon waveguides for planar energy guiding and sensing. *Applied Physics Letters*, 86(7) :071103, 2005.
- [38] G. I. Stegeman, R. F. Wallis, and A. A. Maradudin. Excitation of surface polaritons by end-fire coupling. *Opt. Lett.*, 8(7) :386–388, 1983.
- [39] Bogdan Dragnea, Jodi M. Szarko, Stefan Kowarik, Thomas Weimann, Jochen Feldmann, and Stephen R. Leone. Near-field surface plasmon excitation on structured gold films. *Nano Letters*, 3(1) :3–7, 2003.
- [40] Andreas Hohenau, Joachim R. Krenn, Andrey L. Stepanov, Aurelien Drezet, Harald Ditlbacher, Bernhard Steinberger, Alfred Leitner, and Franz R. Aussenegg. Dielectric optical elements for surface plasmons. *Opt. Lett.*, 30(8) :893–895, 2005.
- [41] Ilya P. Radko, Andrey B. Evlyukhin, Alexandra Boltasseva, and Sergey I. Bozhevolnyi. Refracting surface plasmon polaritons with nanoparticle arrays. *Opt. Express*, 16(6) :3924–3930, 2008.

- [42] T. K. Hakala, J. J. Toppari, M. Pettersson, A. Kuzyk, H. Tikkanen, H. Kunttu, and P. Törmä. Frequency conversion of propagating surface plasmon polaritons by organic molecules. *Applied Physics Letters*, 93(12) :123307, 2008.
- [43] Igor I. Smolyaninov, David L. Mazzoni, Joseph Mait, and Christopher C. Davis. Experimental study of surface-plasmon scattering by individual surface defects. *Phys. Rev. B*, 56(3) :1601–1611, Jul 1997.
- [44] Ilya P. Radko, Sergey I. Bozhevolnyi, Andrey B. Evlyukhin, and Alexandra Boltasseva. Surface plasmon polariton beam focusing with parabolic nanoparticlechains. *Opt. Express*, 15(11) :6576–6582, 2007.
- [45] H. Ditlbacher, J. R. Krenn, G. Schider, A. Leitner, and F. R. Aussenegg. Two-dimensional optics with surface plasmon polaritons. *Applied Physics Letters*, 81(10) :1762–1764, 2002.
- [46] M. U. González, J.-C. Weeber, A.-L. Baudrion, A. Dereux, A. L. Stepanov, J. R. Krenn, E. Devaux, and T. W. Ebbesen. Design, near-field characterization, and modeling of 45[degree] surface-plasmon bragg mirrors. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 73(15) :155416, 2006.
- [47] A. Drezet, Daniel Koller, Andreas Hohenau, Alfred Leitner, Franz R. Aussenegg, and Joachim R. Krenn. Plasmonic crystal demultiplexer and multiports. *Nano Letters*, 7(6) :1697–1700, 2007.
- [48] A. Drezet, A. L. Stepanov, H. Ditlbacher, A. Hohenau, B. Steinberger, F. R. Aussenegg, A. Leitner, and J. R. Krenn. Surface plasmon propagation in an elliptical corral. *Applied Physics Letters*, 86(7) :074104, 2005.
- [49] A. Drezet, A. Hohenau, A. L. Stepanov, H. Ditlbacher, B. Steinberger, F. R. Aussenegg, A. Leitner, and J. R. Krenn. Surface plasmon polariton mach-Zehnder interferometer and oscillation fringes. *Plasmonics*, 1(2) :141–145, 2006.
- [50] Aurelien Drezet, Daniel Koller, Andreas Hohenau, Alfred Leitner, Franz R. Aussenegg, and Joachim R. Krenn. Surface plasmon polari-

- ton microscope with parabolic reflectors. *Opt. Lett.*, 32(16) :2414–2416, 2007.
- [51] S.I. Bozhevolnyi. *Plasmonic Nanoguides and Circuits*. Pan Stanford, Singapore, 2008.
- [52] Carsten Marquart, Sergey Bozhevolnyi, and Kristjan Leosson. Near-field imaging of surface plasmon-polariton guiding in band gap structures at telecom wavelengths. *Opt. Express*, 13(9) :3303–3309, 2005.
- [53] Ilya P. Radko, Thomas Søndergaard, and Sergey I. Bozhevolnyi. Adiabatic bends in surface plasmon polariton band gap structures. *Opt. Express*, 14(9) :4107–4114, 2006.
- [54] B. Steinberger, A. Hohenau, H. Ditlbacher, A. L. Stepanov, A. Drezet, F. R. Aussenegg, A. Leitner, and J. R. Krenn. Dielectric stripes on gold as surface plasmon waveguides. *Applied Physics Letters*, 88(9) :094104, 2006.
- [55] S. Massenot, J. Grandidier, A. Bouhelier, G. Colas des Francs, L. Markey, J.-C. Weeber, A. Dereux, J. Renger, M. U. González, and R. Quindant. Polymer-metal waveguides characterization by fourier plane leakage radiation microscopy. *Applied Physics Letters*, 91(24) :243102, 2007.
- [56] Tobias Holmgaard, Sergey I. Bozhevolnyi, Laurent Markey, and Alain Dereux. Dielectric-loaded surface plasmon-polariton waveguides at telecommunication wavelengths : Excitation and characterization. *Applied Physics Letters*, 92(1) :011124, 2008.
- [57] Tobias Holmgaard, Sergey I. Bozhevolnyi, Laurent Markey, Alain Dereux, Alexey V. Krasavin, Pádraig Bolger, and Anatoly V. Zayats. Efficient excitation of dielectric-loaded surface plasmon-polariton waveguide modes at telecommunication wavelengths. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 78(16) :165431, 2008.
- [58] Tobias Holmgaard, Zhuo Chen, Sergey I. Bozhevolnyi, Laurent Markey, Alain Dereux, Alexey V. Krasavin, and Anatoly V. Zayats. Bend- and splitting loss of dielectric-loaded surface plasmon-polariton waveguides. *Opt. Express*, 16(18) :13585–13592, 2008.

- [59] A. V. Krasavin and A. V. Zayats. Three-dimensional numerical modeling of photonic integration with dielectric-loaded spp waveguides. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 78(4) :045425, 2008.
- [60] Tobias Holmgaard, Zhuo Chen, Sergey I. Bozhevolnyi, Laurent Markey, and Alain Dereux. Dielectric-loaded plasmonic waveguide-ring resonators. *Opt. Express*, 17(4) :2968–2975, 2009.
- [61] E. N. Economou. Surface plasmons in thin films. *Phys. Rev.*, 182(2) :539–554, Jun 1969.
- [62] Pierre Berini. Plasmon-polariton waves guided by thin lossy metal films of finite width : Bound modes of symmetric structures. *Phys. Rev. B*, 61(15) :10484–10503, Apr 2000.
- [63] A. Boltasseva, T. Nikolajsen, K. Leosson, K. Kjaer, M.S. Larsen, and S.I. Bozhevolnyi. Integrated optical components utilizing long-range surface plasmon polaritons. *Lightwave Technology, Journal of*, 23(1) :413–422, Jan. 2005.
- [64] G. Della Valle, T. Sondergaard, and S. I. Bozhevolnyi. Plasmon-polariton nano-stripresonators : from visible to infra-red. *Opt. Express*, 16(10) :6867–6876, 2008.
- [65] B. Lamprecht, J. R. Krenn, G. Schider, H. Ditlbacher, M. Salerno, N. Felidj, A. Leitner, F. R. Aussenegg, and J. C. Weeber. Surface plasmon propagation in microscale metal stripes. *Applied Physics Letters*, 79(1) :51–53, 2001.
- [66] Thomas Nikolajsen, Kristjan Leosson, and Sergey I. Bozhevolnyi. Surface plasmon polariton based modulators and switches operating at telecom wavelengths. *Applied Physics Letters*, 85(24) :5833–5835, 2004.
- [67] Robert Charbonneau, Nancy Lahoud, Greg Mattiussi, and Pierre Berini. Demonstration of integrated optics elements based on long-ranging surface plasmon polaritons. *Opt. Express*, 13(3) :977–984, 2005.
- [68] Alexandra Boltasseva, Sergey Bozhevolnyi, Thomas Søndergaard, Thomas Nikolajsen, and Kristjan Leosson. Compact z-add-drop wave-

- length filters for long-range surface plasmon polaritons. *Opt. Express*, 13(11) :4237–4243, 2005.
- [69] Alexandra Boltasseva, Thomas Nikolajsen, Kristjan Leosson, Kasper Kjaer, Morten S. Larsen, and Sergey I. Bozhevolnyi. Integrated optical components utilizing long-range surface plasmon polaritons. *J. Lightwave Technol.*, 23(1) :413, 2005.
- [70] Sandtke M. and Kuipers L. Slow guided surface plasmons at telecom frequencies. *Nat. Photon.*, 1(10) :573–576, 2007.
- [71] Sergey I. Bozhevolnyi and Thomas Søndergaard. General properties of slow-plasmon resonant nanostructures : nano-antennas and resonators. *Opt. Express*, 15(17) :10869–10877, 2007.
- [72] Henri J. Lezec, Jennifer A. Dionne, and Harry A. Atwater. Negative Refraction at Visible Frequencies. *Science*, 316(5823) :430–432, 2007.
- [73] Junichi Takahara, Suguru Yamagishi, Hiroaki Taki, Akihiro Morimoto, and Tetsuro Kobayashi. Guiding of a one-dimensional optical beam with nanometer diameter. *Opt. Lett.*, 22(7) :475–477, 1997.
- [74] K. Leosson, T. Nikolajsen, A. Boltasseva, and S. I. Bozhevolnyi. Long-range surface plasmon polariton nanowire waveguides for device applications. *Opt. Express*, 14(1) :314–319, 2006.
- [75] Jun Q. Lu and A. A. Maradudin. Channel plasmons. *Phys. Rev. B*, 42(17) :11159–11165, Dec 1990.
- [76] I. V. Novikov and A. A. Maradudin. Channel polaritons. *Phys. Rev. B*, 66(3) :035403, Jun 2002.
- [77] D. F. P. Pile and D. K. Gramotnev. Channel plasmon-polariton in atriangular groove on a metal surface. *Opt. Lett.*, 29(10) :1069–1071, 2004.
- [78] Sergey I. Bozhevolnyi. Effective-index modeling of channel plasmon polaritons. *Opt. Express*, 14(20) :9467–9476, 2006.
- [79] Sergey I. Bozhevolnyi and Jesper Jung. Scaling for gap plasmon based waveguides. *Opt. Express*, 16(4) :2676–2684, 2008.

- [80] Kazuo Tanaka and Masahiro Tanaka. Simulations of nanometric optical circuits based on surface plasmon polariton gap waveguide. *Applied Physics Letters*, 82(8) :1158–1160, 2003.
- [81] D. F. P. Pile and D. K. Gramotnev. Plasmonic subwavelength waveguides : next to zero losses at sharp bends. *Opt. Lett.*, 30(10) :1186–1188, 2005.
- [82] Valentyn S. Volkov, Sergey I. Bozhevolnyi, Eloïse Devaux, and Thomas W. Ebbesen. Compact gradual bends for channel plasmon polaritons. *Opt. Express*, 14(10) :4494–4503, 2006.
- [83] Sergey I. Bozhevolnyi, Valentyn S. Volkov, Eloise Devaux, Jean-Yves Laluet, and Thomas W. Ebbesen. Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators. *Nature*, 440 :508–511, Mar 2006.
- [84] Valentyn S. Volkov, Sergey I. Bozhevolnyi, Eloise Devaux, Jean-Yves Laluet, and Thomas W. Ebbesen. Wavelength selective nanophotonic components utilizing channel plasmon polaritons. *Nano Letters*, 7(4) :880–884, 2007.
- [85] Sergey I. Bozhevolnyi, Valentyn S. Volkov, Eloise Devaux, Jean-Yves Laluet, and Thomas W. Ebbesen. Channelling surface plasmon. *Appl. Phys. A*, 89(2) :225–231, 2007.
- [86] Valentyn S. Volkov, Sergey I. Bozhevolnyi, Sergio G. Rodrigo, Luis Martín-Moreno, Francisco J. García-Vidal, Eloise Devaux, and Thomas W. Ebbesen. Nanofocusing with channel plasmon polaritons. *Nano Lett.*, 9(3) :1278–1282, 2009.
- [87] A. Manjavacas and F. J. García de Abajo. Robust plasmon waveguides in strongly interacting nanowire arrays. *Nano Letters*, 9(4) :1285–1289, 2009.
- [88] Stefan A. Maier and Harry A. Atwater. Plasmonics : Localization and guiding of electromagnetic energy in metal/dielectric structures. *Journal of Applied Physics*, 98(1) :011101, 2005.
- [89] William L. Barnes, Alain Dereux, and Thomas W. Ebbesen. Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 424(6950) :824–830, 2003.

- [90] Anatoly V. Zayats, Igor I. Smolyaninov, and Alexei A. Maradudin. Nano-optics of surface plasmon polaritons. *Physics Reports*, 408(3-4) :131 – 314, 2005.
- [91] S.A. Maier. *Plasmonics : Fundamentals and Applications*. Springer, New York, 2007.
- [92] Cyriaque Genet, Martin P. van Exter, and J. P. Woerdman. Huygens description of resonance phenomena in subwavelength hole arrays. *J. Opt. Soc. Am. A*, 22(5) :998–1002, 2005.
- [93] P. B. Johnson and R. W. Christy. Optical constants of the noble metals. *Phys. Rev. B*, 6(12) :4370–4379, Dec 1972.
- [94] E. Altewischer, X. Ma, M. P. van Exter, and J. P. Woerdman. Fano-type interference in the point-spread function of nanohole arrays. *Opt. Lett.*, 30(18) :2436–2438, 2005.
- [95] F. Lopez-Tejiera, Sergio G. Rodrigo, L. Martín-Moreno, F. J. García-Vidal, E. Devaux, T. W. Ebbesen, J. R. Krenn, I. P. Radko, S. I. Bozhevolnyi, M. U. Gonzalez, J. C. Weeber, and A. Dereux. Efficient unidirectional nanoslit couplers for surface plasmons. *Nat Phys*, 3(5) :324 – 328, 2007.
- [96] Anne-Laure Baudrion, Fernando de Leon-Perez, Oussama Mahboub, Andreas Hohenau, Harald Ditlbacher, Francisco J. García-Vidal, José Dintinger, Thomas W. Ebbesen, Luis Martín-Moreno, and Joachim R. Krenn. Coupling efficiency of light to surface plasmon polariton for single subwavelength holes in a gold film. *Opt. Express*, 16(5) :3420–3429, 2008.
- [97] J-Y Laluet, A Drezet, C Genet, and T W Ebbesen. Generation of surface plasmons at single subwavelength slits : from slit to ridge plasmon. *New Journal of Physics*, 10(10) :105014 (9pp), 2008.
- [98] F. Przybilla, A. Degiron, C. Genet, T. Ebbesen, F. de Léon-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(13) :9571–9579, 2008.

- [99] I. P. Radko, S. I. Bozhevolnyi, G. Brucoli, L. Martín-Moreno, F. J. García-Vidal, and A. Boltasseva. Efficient unidirectional ridge excitation of surface plasmons. *Opt. Express*, 17(9) :7228–7232, 2009.
- [100] H. Liu and P. Lalanne. Microscopic theory of the extraordinary optical transmission. *Nature*, 452(7188) :728–731, 2008.
- [101] F de Leon-Perez, G Brucoli, F J García-Vidal, and L Martín-Moreno. Theory on the scattering of light and surface plasmon polaritons by arrays of holes and dimples in a metal film. *New Journal of Physics*, 10(10) :105017 (22pp), 2008.
- [102] A. B. Evlyukhin, S. I. Bozhevolnyi, A. L. Stepanov, R. Kiyam, C. Reinhardt, S. Passinger, and B. N. Chichkov. Focusing and directing of surface plasmon polaritons by curved chains of nanoparticles. *Opt. Express*, 15(25) :16667–16680, 2007.
- [103] H. W. Kihm, K. G. Lee, D. S. Kim, J. H. Kang, and Q-Han Park. Control of surface plasmon generation efficiency by slit-width tuning. *Applied Physics Letters*, 92(5) :051115, 2008.
- [104] Roman Kiyam, Carsten Reinhardt, Sven Passinger, Andrei L. Stepanov, Andreas Hohenau, Joachim R. Krenn, and Boris N. Chichkov. Rapid prototyping of optical components for surface plasmon polaritons. *Opt. Express*, 15(7) :4205–4215, 2007.
- [105] A. Drezet, A. Hohenau, D. Koller, A. Stepanov, H. Ditlbacher, B. Steinberger, F.R. Aussenegg, A. Leitner, and J.R. Krenn. Leakage radiation microscopy of surface plasmon polaritons. *Materials Science and Engineering : B*, 149(3) :220 – 229, 2008. E-MRS 2007 Spring Conference Symposium A : Sub-wavelength photonics throughout the spectrum : Materials and Techniques.
- [106] J.-Y. Laluet, E. Devaux, C. Genet, T. W. Ebbesen, J.-C. Weeber, and A. Dereux. Optimization of surface plasmons launching from sub-wavelength hole arrays : modelling and experiments. *Opt. Express*, 15(6) :3488–3495, 2007.

- [107] P. Lalanne, J. P. Hugonin, and J. C. Rodier. Approximate model for surface-plasmon generation at slit apertures. *J. Opt. Soc. Am. A*, 23(7) :1608–1615, 2006.
- [108] Liang Feng, Kevin A. Tetz, Boris Slutsky, Vitaliy Lomakin, and Yeshaiahu Fainman. Fourier plasmonics : Diffractive focusing of in-plane surface plasmon polariton waves. *Applied Physics Letters*, 91(8) :081101, 2007.
- [109] R. Ulrich and M. Tacke. Submillimeter waveguiding on periodic metal structure. *Applied Physics Letters*, 22(5) :251–253, 1973.
- [110] J. B. Pendry, L. Martín-Moreno, and F. J. García-Vidal. Mimicking Surface Plasmons with Structured Surfaces. *Science*, 305(5685) :847–848, 2004.
- [111] F. J. García-Vidal, H. J. Lezec, T. W. Ebbesen, and L. Martín-Moreno. Multiple paths to enhance optical transmission through a single sub-wavelength slit. *Phys. Rev. Lett.*, 90(21) :213901, May 2003.
- [112] M. A. Khashan and A. Y. Nassif. Dispersion of the optical constants of quartz and polymethyl methacrylate glasses in a wide spectral range : 0.2-3 μm . *Optics Communications*, 188(1-4) :129 – 139, 2001.
- [113] Weeber J.-C., Bouhelier A., Colas des Francs G., Margey L., and Dereux A. Submicrometer in-plane integrated surface plasmon cavities. *Nano Lett.*, 7(5) :1352–1359, 2007.
- [114] Christian Girard, Jean-Claude Weeber, Alain Dereux, Olivier J. F. Martín, and Jean-Pierre Goudonnet. Optical magnetic near-field intensities around nanometer-scale surface structures. *Phys. Rev. B*, 55(24) :16487–16497, Jun 1997.
- [115] Uriel Levy, Maxim Abashin, Kazuhiro Ikeda, Ashok Krishnamoorthy, John Cunningham, and Yeshaiahu Fainman. Inhomogenous dielectric metamaterials with space-variant polarizability. *Physical Review Letters*, 98(24) :243901, 2007.
- [116] Bala Krishna Juluri, Sz chin S. Lin, Thomas R. Walker, Lasse Jensen, and Tony Jun Huang. Propagation of designer surface plasmons

- in structured conductor surfaces with parabolic gradient index. *Opt. Express*, 17(4) :2997–3006, 2009.
- [117] Hamza Kurt and David S. Citrin. Graded index photonic crystals. *Opt. Express*, 15(3) :1240–1253, 2007.
- [118] Anatoliy O. Pinchuk and George C. Schatz. Metamaterials with gradient negative index of refraction. *J. Opt. Soc. Am. A*, 24(10) :A39–A44, 2007.
- [119] S. Lipp, L. Frey, C. Lehrer, B. Frank, E. Demm, S. Pauthner, and H. Ryssel. Tetramethoxysilane as a precursor for focused ion beam and electron beam assisted insulator (siox) deposition. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 14(6) :3920, 1996.
- [120] O. Yavas, C. Ochiai, M. Takai, Y. K. Park, C. Lehrer, S. Lipp, L. Frey, H. Ryssel, A. Hosono, and S. Okuda. Field emitter array fabricated using focused ion and electron beam induced reaction. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 18(2) :976, 2000.
- [121] E. Laux, C. Genet, S. Torbjorn, and T. W. Ebbesen. Plasmonic photon sorters for spectral and polarimetric imaging. *Nat. Photon.*, 2(3) :161–164, 2008.
- [122] Aurelien Drezet, Cyriaque Genet, Jean-Yves Laluet, and Thomas W. Ebbesen. Optical chirality without optical activity :how surface plasmons give a twist to light. *Opt. Express*, 16(17) :12559–12570, 2008.
- [123] Aurélien Drezet, Cyriaque Genet, and Thomas W. Ebbesen. Miniature plasmonic wave plates. *Physical Review Letters*, 101(4) :043902, 2008.
- [124] Esteban Moreno, F. J. García-Vidal, Sergio G. Rodrigo, L. Martín-Moreno, and Sergey I. Bozhevolnyi. Channel plasmon-polaritons : modal shape, dispersion, and losses. *Opt. Lett.*, 31(23) :3447–3449, 2006.
- [125] Irene Fernandez-Cuesta, Rasmus Bundgaard Nielsen, Alexandra Boltasseva, Xavier Borrísé, Francesc Pérez-Murano, and Anders Kristensen. V-groove plasmonic waveguides fabricated by nanoimprint lithography. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 25(6) :2649–2653, 2007.

Liste des communications

Publications

1. J.-Y. Laluet, A. Drezet, C. Genet, T. W. Ebbesen, *Generation of surface plasmons at single subwavelength slits : from slit to ridge plasmon*, New J. Phys. **10**, 105014 (2008)
2. A. Drezet, C. Genet, J.-Y. Laluet, T. W. Ebbesen, *Optical chirality without optical activity : How surface plasmons give a twist to light*, Opt. Express **16**, 12559 (2008)
3. S. I. Bozhevolnyi, V. S. Volkov, E. Devaux, J.-Y. Laluet, T. W. Ebbesen, *Channelling surface plasmons*, Appl. Phys. A **89**, 225 (2007)
4. V. S. Volkov, S. I. Bozhevolnyi, E. Devaux, J.-Y. Laluet, T. W. Ebbesen, *Wavelength selective nanophotonic components utilizing channel plasmon polaritons*, Nano Lett. **7**, 880 (2007)
5. J.-Y. Laluet, E. Devaux, C. Genet, T. W. Ebbesen, J.-C. Weeber, A. Dereux, *Optimization of surface plasmons launching from subwavelength hole arrays : modelling and experiments*, Opt. Express **15**, 3488 (2007)
6. S. I. Bozhevolnyi, V. S. Volkov, E. Devaux, J.-Y. Laluet, T. W. Ebbesen, *Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators*, Nature **440**, 508 (2006)
7. A. Degiron, F. Przybilla, J.-Y. Laluet, C. Genet, T. W. Ebbesen, *Enhanced optical transmission through arrays of subwavelength apertures in noble and transition metals*, J. Phys. IV **135**, 355 (2006)

8. F. Przybilla, A. Degiron, J.-Y. Laluet, C. Genet, T. W. Ebbesen, *Optical transmission in perforated noble and transition metal films*, J. Opt. A : Pure Appl. Opt. **8**, 458 (2006)

Présentations orales

1. *Surface plasmon devices as a toolkit in optics and circuitry*, Fourth International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP4), Amsterdam, Juin 2009
2. *Controlling surface plasmon beams via micro-grating launchers*, Third International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP3), Dijon, Juin 2008
3. *Controlling surface plasmon beams via micro-grating launchers and refractive micro-optical elements*, European Material Research Society (E-MRS) 2008 Spring Meeting, Strasbourg, Mai 2008

Posters

1. *Composants pour plasmons de surface : circuits plasmoniques*, 11èmes Journées de la Matière Condensée (JMC11), Strasbourg, Août 2008
2. *Controlling surface plasmon beams via micro-grating launchers and refractive micro-optical elements*, Trends in Materials and Nanosciences (TMN2006), Strasbourg, Novembre 2006
3. *Refractive micro-optical elements for surface plasmons*, Neuvième Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (COLOQ9), Dijon, Septembre 2005
4. *Refractive micro-optical elements for surface plasmons*, Second International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP2), Graz, Mai 2005