



République Algérienne Démocratique et populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur
et De la Recherche Scientifique



Université Abou Bekr Belkaid - Tlemcen -
Faculté des Sciences
Département de Physique

MEMOIRE

Présenté en vue de l'obtention du diplôme de

MAGISTER

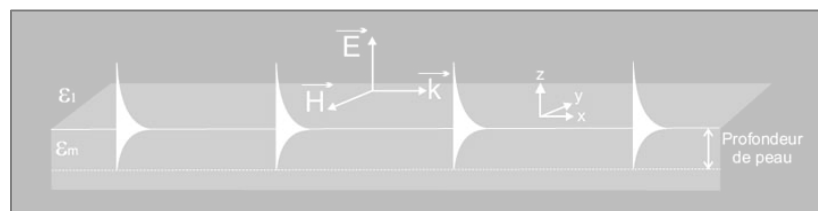
Option : Physique théorique

Par

BENDJEBBOUR MOHAMED

Thème

**Caractérisation d'une structure hétérogène
multicouche Application à la génération
des modes plasmoniques**



Soutenu le : 05 / 04 / 2011

Devant le jury composé de :

- Mr. Maamar.BOUAMOUD Président de jury professeur (U. Tlemcen)
- Mr. Benemar.BOUHAFS Directeur de Mémoire Maitre de conf (U. Tlemcen)
- Mr. Ahmed.HOUARI Examineur professeur (U. Tlemcen)
- Mr. Mostefa.LEMERINI Examineur professeur (U. Tlemcen)

Année universitaire 2010/2011

Remerciements

Ce travail a été réalisé dans le laboratoire de Physique Théorique du Département de physique de la Faculté des Sciences de L'Université de Tlemcen.

*Je suis très reconnaissant à Monsieur **B. BOUHAFS** Maître de conférence à la Faculté des Sciences exactes de l'Université de Tlemcen pour la confiance qu'il m'a accordé en m'accueillant au sein du groupe de Recherche. Sa disponibilité alliée à ces grandes compétences scientifiques et ses discussions fertiles m'ont aidé à m'épanouir dans les sphères de la recherche. Je lui présente mes sincères remerciements.*

*Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur **M. BOUAMOUD**, professeur à l'Université de Tlemcen de s'être intéressé à ce travail de recherche et pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de thèse.*

J'adresse mes vifs remerciements aux messieurs :

- ***A. HOUARI** professeur à l'université de Tlemcen*
- ***M. LEMERINI** Maître de conférences à l'université de Tlemcen*

Pour avoir accepté d'examiner et d'évaluer ce modeste travail.

Je remercie toutes les personnes, secrétaires, techniciens, ingénieurs et chercheurs au sein du laboratoire, qui m'ont accordé leur aide avec beaucoup de compétence, patience et enthousiasme.

Je ne saurais oublier tous mes collègues et mes amis au labo.

*Finalement je tiens à remercier **M. B. LIANI** le responsable du laboratoire de Physique Théorique qui m'a aidé en mettant à ma disposition le matériel adéquat et l'espace voulu.*

Dédicaces

*Avec une grande satisfaction et cœur ouvert, je
dédie ce modeste travail*

*A mes chers parents qui ont sacrifiés leurs vies
pour donner sens à la mienne.*

A mes frères et mes sœurs.

A mes adorables enfants : Aymen et Wakiba

A toute ma famille et mes meilleurs amis.

Table des matières

INTRODUCTION GÉNÉRALE	1
-----------------------------	---

CHAPITRE I

Résonance plasmons de surface origine et applications	6
--	----------

1. Introduction	7
2. Ondes évanescentes et plasmons	8
2.1 Quelques dates clés	8
2.2 Plasmons polaritons et plasmons de surface	9
3. Le métal parfait	11
3.1 Modèle de Drude	11
3.2 Fonction diélectrique du métal parfait	12
3.3 Dispersion spectrale et fréquence de plasmons	14
3.4 Perte d'énergie et fréquence plasmons	16
4. Gaz d'électrons dans un espace semi-infini :plasmons de surface	17
4.1 Relation de dispersion des plasmons de surface	17
4.2 Extension spatiale et longueur de propagation des PS	21
4.3 Choix du métal	24
5. Technique optique de couplage	25
5.1 Relation de couplage	25
5.2 Description des différents modes de couplage entre PS et lumière...	27
6. Application du principe SPR	35
7. Conclusion	38

CHAPITRE II

Les modes plasmons de surface couplés à travers un milieu diélectrique	39
1. Calcul de la Réflectivité dans la géométrie de Kretschmann	40
1.1 Expressions des champs électromagnétiques.....	40
1.2 Calcul des réflectivités aux interfaces.....	43
2. Etude de la réflectivité et mise en évidence des conditions d'existence d'un plasmon.....	45
2.1 Introduction.....	45
2.2 Analyse des influences des paramètres de construction sur la résonance plasmons de surface.....	47
2.2.1 Épaisseur de la couche métallique.....	47
2.2.2 Permittivité du milieu incident.....	49
2.2.3 Permittivité du milieu émergent.....	51
2.2.4 Nature du métal	52
2.2.5 Influence de la longueur d'onde.....	53
3. Conclusion.....	54

CHAPITRE III

Caractérisation d'une microcavité a parois métalliques	55
1. Elaboration d'une microcavité à deux miroirs métalliques.....	56
1.1 Calcul de la réflectivité aux interfaces.....	57
1.1.1 Expressions du champ électrique.....	57
1.1.2 Application des conditions de continuité.....	59
2. Simulation numérique SPR de la microcavité.....	62
2.1 Optimisation de l'épaisseur de la couche métallique.....	63
2.1.1. Interfaces : Prisme / Argent / diélectrique	63
2.1.2. Interfaces : Prisme / Or / diélectrique	65
2.2 Analyse d'une microcavité symétrique.....	68
2.2.1 Interfaces : Prisme / Argent / Gap / Argent	68

2.2.2 Interfaces : Prisme / Or / Gap / Or	72
2.3 Analyse d'une microcavité antisymétrique.....	74
2.3.1 Premier cas : contribution faible en absorption pour les deux miroirs	74
2.3.2 Deuxième cas : contribution importante en absorption pour :	
- Le miroir UP	75
- Le miroir DOWN	76
2.3.3 Troisième cas : contribution très importante en absorption pour :	
- Le miroir UP	76
- Le miroir DOWN	77
3. Régimes de fonctionnement de la microcavité élaborée	78
4. Influence de la nature du milieu gap de la microstructure élaborée	79
.Synthèse sur les résultats obtenus	80

CHAPITRE IV

Application de la structure à double miroirs	81
1. Introduction	82
2. généralités	83
3. Principe de l'interféromètre pour une onde monochromatique	84
4. Finesse de l'interféromètre	86
5. Caractérisation d'une microcavité Fabry-Perot	87
5.1 Géométrie de la microcavité et paramètres caractéristiques	87
5.2 Paramètres optiques de la structure	88
5.3 Réponse optique de la microcavité	88
- Mode plasmon d'ordre $m = 0$	88
- Mode plasmon d'ordre $m = 1$	90

CONCLUSION GÉNÉRALE	92
ANNEXES	95
RÉFÉRENCES	99

Introduction générale

Les plasmons de surface sont des ondes électromagnétiques associées à une oscillation collective des électrons du plasma d'électrons libres à la surface d'un métal. Ces ondes ont été très étudiées depuis les années soixante-dix aussi bien grâce à des mesures de spectroscopie de perte d'énergie d'électrons que grâce à des méthodes optiques comme l'ATR (Attenuated Total Reflection) [1]. Étant extrêmement sensibles à l'indice au contact de la surface métallique ou à la rugosité des différentes surfaces, ils ont trouvé de nombreuses applications aussi bien en physique [2], en chimie [3], qu'en biologie [4].

De nouvelles avancées technologiques, permettant de structurer un métal à des échelles de l'ordre du nanomètre, ont provoqué un regain d'intérêt pour ces plasmons de surface. En effet, ils permettent de réaliser aussi bien des structures équivalentes à des gaps photoniques avec les plasmons, que des guides où le plasmon est confiné latéralement sur des distances caractéristiques sub-longueur d'onde.

Il est ainsi possible d'envisager la réalisation de circuits photoniques miniaturisés, permettant de convertir la lumière en plasmons de surface. Ces derniers se propageraient et pourraient être traités, avant d'être transformés de nouveau en lumière. Un gros effort de recherche est fourni actuellement dans ce domaine avec la réalisation de coupleurs, de gap-photoniques ou de guides d'onde (de taille inférieur à $\lambda/10$) pour les plasmons de surface. Les développements dans ce domaine pourraient permettre la naissance d'une nouvelle branche de la photonique appelée la plasmonique [5].

Le développement des nanotechnologies au cours des vingt dernières années a permis l'émergence de nouveaux matériaux pour la *nanophotonique*, tels que les cristaux photoniques, **les nanostructures métalliques** ou plus récemment les

méta-matériaux. D'une manière générale, les nanostructures permettent une augmentation des interactions lumière-matière, avec de nombreuses applications en photonique et en opto-électronique dans les domaines de l'émission, de la détection, de l'imagerie ou du guidage optique.

Ces dernières années, l'étude de l'interaction de la lumière avec les nanostructures métalliques, la *plasmonique*, a connu un vif intérêt. La raison vient de la particularité des *plasmons de surface*, qui permettent la propagation de la lumière non pas dans le volume d'un matériau diélectrique, mais le long d'une interface. Depuis leur mise en évidence, les plasmons de surface ont permis de proposer des solutions nouvelles pour des dispositifs de détection, de guidage ou d'émission de lumière. Ainsi, les plasmons de surface sont très sensibles à l'environnement proche des métaux. Une petite modification de l'indice optique près de l'interface change leur condition de résonance sur un film métallique. En mesurant ce décalage, il est possible de détecter la présence de seulement quelques molécules au voisinage d'un film métallique, et de réaliser ainsi des détecteurs très sensibles par exemple pour l'analyse de molécules isolées en biologie ou en chimie.

Ces différents exemples illustrent l'intérêt grandissant pour l'utilisation des plasmons de surface dans des dispositifs actifs. Pour cela, il est nécessaire de contrôler les propriétés des plasmons de surface, ce que l'on peut espérer faire en structurant périodiquement les interfaces métalliques. L'objectif est évidemment de modifier les propriétés dispersives, le couplage radiatif ou encore le guidage des plasmons de surface.

Le présent manuscrit est structuré en quatre chapitres:

Le Chapitre I présente un rappel sur les approches théoriques des plasmons de surface, les méthodes optiques d'excitation passant par les applications basées sur la résonance des plasmons de surface

Le Chapitre II nous aborderons l'étude du phénomène de SPR. Nous présenterons le principe de calculs numériques de la réflectivité dans la géométrie de Kretschmann. Cette partie d'étude permet la mise en évidence des conditions d'existence d'un plasmon, l'analyse des influences des paramètres de construction sur la résonance plasmons de surface pour aboutir à l'optimisation des paramètres de la configuration, ainsi que le choix des matériaux.

Le Chapitre III sera consacré à la partie la plus innovante de ce travail, à savoir la mise en évidence de l'existence de la résonance plasmonique dans une structure multicouche. Dans cette partie, nous avons proposé une méthode pour confiner les modes plasmons de surface en intercalant un milieu diélectrique (d'épaisseur d_g) peu absorbant entre deux films métalliques. Nous nous intéressons plus particulièrement à la nature et à l'épaisseur du diélectrique intermédiaire (appelé le milieu gap). Les ordres des modes plasmons confinés dans la cavité (symétrique ou antisymétrique) ainsi constituée sont maîtrisés sur le facteur d_g dont l'ordre de grandeur est lié à la longueur d'onde, λ de l'onde électromagnétique incidente. La cavité admet deux régimes de fonctionnement selon le rapport d_g/λ . L'intérêt porté à ces deux types de fonctionnement de microcavité est le piégeage des modes plasmoniques dans une répartition angulaire pour une longueur d'onde donnée menant en plus à mesurer la durée de vie du photon, ainsi que la force d'oscillateur relativement aux propriétés optiques des métaux en couche minces fonctionnant comme des miroirs réflecteurs. Nous faisons allusion qu'en faite nous réalisons une microcavité

Fabry-Pérot qui constitue un instrument optique fortement recommandé en spectroscopie résonnante à haute résolution. L'aspect descriptif de cet instrument sera détaillé dans le chapitre IV.

Nous clôturons ce mémoire en dressant un bilan général des points essentiels afin de terminer sur quelques perspectives proposées à la suite de ce travail.

CHAPITRE I

Résonance plasmons de surface Origine et applications

Table des matières

1. Introduction	7
2. Ondes évanescentes et plasmons	8
2.1 Quelques dates clés	8
2.2 Plasmons polaritons et plasmons de surface	9
3. Le métal parfait	11
3.1 Modèle de Drude	11
3.2 Fonction diélectrique du métal parfait	12
3.3 Dispersion spectrale et fréquence de plasmons	14
3.4 Perte d'énergie et fréquence plasmons	16
4. Gaz d'électrons dans un espace semi-infini : plasmons de surface	17
4.1 Relation de dispersion des plasmons de surface	17
4.2 Extension spatiale et longueur de propagation des PS	21
4.3 Choix du métal	24
5. Technique optique de couplage	25
5.1 Relation de couplage	25
5.2 Description des différents modes de couplage entre PS et lumière	27
6. Applications du principe SPR	35
7. Conclusion	38

1 . INTRODUCTION

Ce premier chapitre introductif est consacré à une approche théorique des plasmons en général et des plasmons de surface en particulier. Ce chapitre se veut, dans une première partie, didactique et c'est la raison pour laquelle quelques rappels ont été faits sur la physique des plasmons de volume.

Les plasmons de surface apparaissent à l'interface entre deux milieux, dont l'un est généralement un métal (au premier abord on parlera d'une interface plane). Comme nous le verrons, ils représentent des ondes particulières, solutions des équations de Maxwell. Ces ondes peuvent se propager parallèlement à l'interface, et l'amplitude du champ électromagnétique associé décroît exponentiellement en s'éloignant perpendiculairement de l'interface. Pour cette raison, ces ondes ainsi confinées sont souvent appelées ondes de surface. Ceci nous amènera à définir dans ce chapitre la profondeur de pénétration ou l'extension spatiale de ces ondes.

Nous discuterons aussi des caractéristiques que doit posséder le métal pour être un bon candidat dans les applications développées au cours de cette thèse. Nous pourrons ainsi justifier pourquoi l'or et l'argent ont été retenus pour les applications dans lesquelles le couplage plasmon de surface – lumière (domaine visible-proche infrarouge) est recherché. Pour aller plus loin sur l'origine de ces ondes de surface, nous développerons le problème électromagnétique de la propagation d'une onde à l'interface entre un milieu diélectrique et un milieu métallique parfait.

Nous en déduisons la relation de dispersion qui relie la fréquence d'apparition du plasmon avec les caractéristiques spatiales du champ électromagnétique. En particulier, nous discuterons alors des conditions de couplage plasmon de surface – onde lumineuse et nous décrirons finalement les différentes méthodes pour y parvenir (méthodes de Kretschmann, Otto, corrugation de surface...).

Enfin, nous terminerons ce chapitre par un très bref tour d'horizon des applications impliquant les plasmons de surface.

2 . ONDES EVANESCENTES ET PLASMONS

2.1 — Quelques dates clés

La mise en évidence des ondes évanescentes remonte à 1704, quand I. Newton observa la réflexion totale atténuée d'un faisceau lumineux sur la face d'un prisme, en mettant en contact ce dernier avec une lentille convergente. Par cette expérience, bien connue aujourd'hui, il découvrait ainsi le champ électromagnétique évanescent.

Bien plus tard, J. Zenneck (1907) et A. J. W. Sommerfeld (1909) démontrèrent (théoriquement) qu'une onde électromagnétique de radio fréquence apparaissait à l'interface de deux milieux lorsque l'un des deux est un métal ou un diélectrique absorbant et l'autre un milieu non absorbant. Puis, en 1939, U. Fano montra que les ondes électromagnétiques surfaciques à l'interface métal/air étaient évanescentes (leurs vecteurs d'ondes étant supérieurs à celui de l'onde incidente, les « Wood's Anomalies ») et qu'un réseau de diffraction pouvait augmenter le vecteur incident pour qu'il puisse se coupler avec l'onde électromagnétique surfacique [5].

Mais c'est en 1957 que R. H. Ritchie démontra théoriquement l'existence de plasmons transversaux à la surface d'un métal [6]. E. A. Stern et R. A. Ferrell en 1958 montrèrent, aussi théoriquement, le rôle du couplage d'un rayonnement électromagnétique avec les plasmons de surface à une interface métallique [7]. En particulier, ils calculèrent pour la première fois la relation de dispersion des ondes électromagnétiques à la surface d'un métal. En utilisant un faisceau électronique monocinétique, Powell et Swan (1960) observèrent expérimentalement l'excitation des plasmons de surface à une interface métallique [8]. A. Otto (1968) proposa, quant à lui, une configuration expérimentale fondée sur l'utilisation d'un prisme - nommée FTR (Frustrated Total Reflection) - mettant en évidence les plasmons de surface par leur couplage avec une onde électromagnétique [9]. E. Kretschmann (1971) modifia et simplifia ensuite la géométrie de Otto, en se basant sur une configuration dite ATR (Attenuated Total Reflection) [10]. Jusqu'à nos jours, cette dernière géométrie reste la plus utilisée.

Dans les années qui suivirent, ce sujet connut un regain d'intérêt si l'on en croit le nombre important de publications qui y furent consacrées. L'intérêt fondamental a cependant fléchi dans les années 90 pour se reporter sur des études avec des objectifs plus appliqués, telle que la spectroscopie Raman exaltée de surface (SERS) [11,12]. Encore plus récemment, le développement des techniques à sonde locale a permis d'approfondir les connaissances sur le sujet. Par la suite, des investigations systématiques amenèrent à la renaissance des recherches sur les plasmons de surface, en partie motivée par des applications émergentes dans des disciplines diverses (optoélectronique, capteur,...) que nous aborderons à la fin de ce chapitre.

2.2 Plasmon-polariton et plasmon de surface

Lorsqu'un matériau est soumis à un champ électromagnétique, un couplage entre ce champ et la polarisation locale induite dans le matériau peut se produire. Cette excitation couplée est appelée **polariton** [13]. Lorsque le système polarisable est un gaz d'électrons libres, c'est-à-dire lorsque ce matériau est un métal ou présente un caractère métallique, le couplage se produit avec les oscillations électroniques collectives et quantifiées. On utilise alors le terme de **plasmon-polariton** ou plus simplement plasmon.

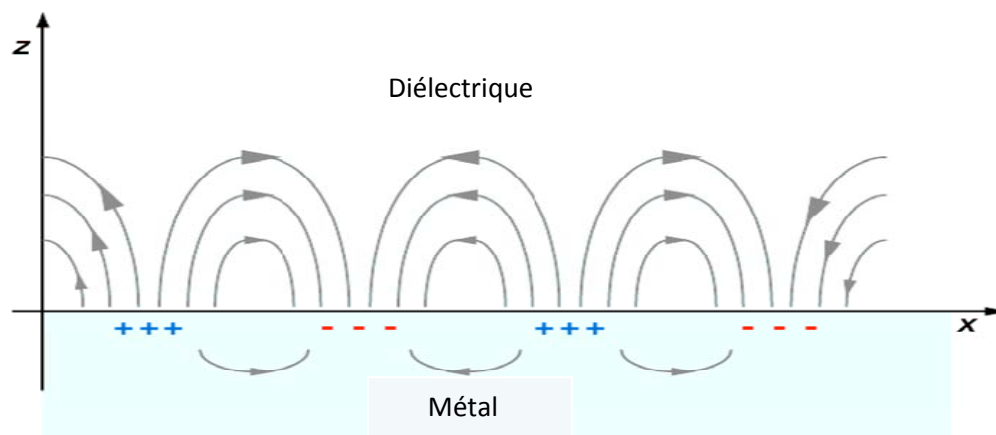


Figure. 1.1 : Représentation schématique de la propagation des oscillations du plasma d'électrons libres à la surface du métal.

L'énergie de ces plasmons (de volume) est typiquement de l'ordre de 10 eV pour les métaux [13]. Signalons que les plasmons existent également dans les diélectriques. Ils constituent alors la quantification des oscillations du nuage d'électrons par rapport à l'ensemble des ions positifs et ils ont des énergies de l'ordre de 10 à 20 eV [13,14].

Dans la littérature, on distingue différents types de plasmons, à savoir les plasmons de volume, de surface (localisés et délocalisés).

– Les plasmons de volume :

Les plasmons de volume sont des oscillations de plasma quantifiées dans le volume d'un métal. Ces oscillations sont dues à l'existence de fluctuations spatiales et temporelles de la densité moyenne des charges dans le métal. Le quantum d'énergie associé à une oscillation élémentaire et qui constitue le plasmon de volume est défini par l'équation I.1

$$\hbar\omega_p = \hbar \sqrt{\frac{ne^2}{m_e \epsilon_0}} \quad I.1$$

- ☞ n : est la densité d'électrons.
- ☞ e : la charge de l'électron.
- ☞ m_e : la masse de l'électron.
- ☞ ε_0 : la constante diélectrique du vide.

Les plasmons de volume peuvent être excités lorsqu'un électron traverse un film mince métallique ou se réfléchit sur ce film, mais ne peuvent se coupler avec la lumière.

– Les plasmons de surface :

Concernant les plasmons de surface qui vont principalement nous intéresser, il faut distinguer :

- ↪ Les plasmons de surface localisés.

- ↪ Les plasmons de surface délocalisés.

Ces plasmons de surface – que l'on notera par la suite PS (ou SP en anglais) – sont des « excitation » de surface dont le champ électromagnétique diminue de façon exponentielle dans les milieux de part et d'autre de la surface et qui, relié à la densité locale de charge surfacique, peuvent se propager tout au long de la surface. Ils ont été découverts par Ritchie en 1957. On les distingue principalement par leur longueur de propagation. Comme leur nom l'indique, les plasmons localisés sont en fait confinés à l'échelle d'une nanoparticule métallique, c'est à dire des distances nanométriques. À l'inverse, les plasmons de surface délocalisés, apparaissent à la surface de films minces métalliques. Ils peuvent se propager sur des distances de plusieurs micromètres.

Les PS localisés sont générés au voisinage de formes diverses ou de particules de taille nanométrique constituant la surface rugueuse d'un métal ou d'un substrat. Les PS localisés sont donc caractéristiques d'une géométrie et d'une taille de corrugation. Ils sont radiatifs c'est-à-dire qu'ils peuvent être couplés directement avec la lumière [1]. La propriété importante des plasmons localisés est le confinement, responsable de l'exaltation du champ électromagnétique au voisinage de la particule métallique ('hot spots'). Ceci est à la base de la théorie électromagnétique de l'effet SERS (Surface-Enhanced Raman Spectroscopy) [15].

Les PS délocalisés, quant à eux, sont générés à l'interface des films métalliques lisses. Comme nous allons le voir, ils sont dits « non radiatifs » car ils ne peuvent se coupler spontanément avec une onde électromagnétique. Il sera alors nécessaire d'utiliser un « coupleur » et c'est ce que nous allons montrer dans la suite de ce chapitre.

3. LE METAL PARFAIT

3.1 - Modèle de Drude (P. Drude, 1900)

Dès 1900, les scientifiques connaissaient déjà le rôle que jouaient les électrons libres dans les métaux, en particulier sur les propriétés électriques et ceci seulement trois ans après leur découverte par J. J. Thomson (1897). Le concept développé dès lors était fondé sur la notion d'électrons libres sans interactions entre eux, s'animant dans un puits de potentiel constant, et soumis à la notion de temps de relaxation. Ce modèle, connu sous le nom de « modèle de Drude » a bien sur été affiné, corrigé et approfondi au cours des années. En particulier la statistique utilisée de type Maxwell-Boltzmann pour les calculs de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique des métaux, statistique issue de la théorie cinétique des gaz, s'est avérée inadaptée aux cas des électrons, et modifiée 30 ans plus tard par la statistique dite de Fermi-Dirac.

Néanmoins le modèle de Drude demeurera à la base de nombreuses théories ultérieures de l'état métallique et malgré ses limitations (quid du champ magnétique par exemple), il reste aujourd'hui un modèle simple et illustrative pour l'étude et la prévision des propriétés optiques des métaux.

Ce modèle, idéal donc, considère le métal comme constitué d'un gaz d'électrons libres de densité N dans un réseau d'ions fixes pour assurer la neutralité du système [10]. Suite à une perturbation électromagnétique, $\vec{E} = E_0 e^{-i\omega t} \vec{u}$ de pulsation ω ($i = \sqrt{-1}$), les électrons vont s'écarter de leur position d'équilibre sous l'effet de la force électrostatique $\vec{F} = -e\vec{E}$ ($-e$ représente la charge de l'électron). Si à cette force, on oppose un terme de frottement lié au libre parcours moyen des électrons dans le réseau d'ions, terme qui s'écrit alors $\vec{F}_f = -(m^*/\tau)\vec{v}$ avec τ le temps de relaxation, m^* la masse effective de l'électron et \vec{v} la vitesse de l'électron selon la direction \vec{u} la position $u(\omega)$ des électrons peut alors être décrite par une équation différentielle du second ordre dont la solution est donnée par les équations I.2 et I.3 :

$$u(\omega) = R_e [\tilde{u}(\omega). e^{-i\omega t}] \quad I.2$$

$$\text{avec } i = \sqrt{-1}$$

$$\tilde{u}(\omega) = \frac{e}{m} \times \frac{1}{(\omega^2 + i\omega/\tau)} \times E_0 \quad I.3$$

(Ici, un calcul simple montre qu'il est tout à fait justifié de négliger la force de Laplace $\vec{F} = -e.(\vec{v} \wedge \vec{B})$ devant la force électrostatique).

Le courant de conduction \vec{j} de surface correspondant peut s'exprimer selon l'équation I.4 :

$$\vec{j} = -N.e.\vec{v} = \frac{Ne^2}{m} \frac{\vec{E}}{(\tau^{-1} + i\omega)} \quad I.4$$

3.2 Fonction diélectrique du métal parfait

Les oscillations électroniques imposées par le modèle de Drude doivent satisfaire les équations locales de l'électromagnétisme, caractérisées par les 4 équations de Maxwell (équation I.5 en MKSA) :

$$\begin{aligned} \overrightarrow{rot} \vec{H} &= \vec{j} + \partial \vec{D} / \partial t \\ rot \vec{E} &= -\partial \vec{B} / \partial t \\ div \vec{D} &= \rho \\ div \vec{B} &= 0 \end{aligned} \tag{I.5}$$

Où :

- \vec{E} représente le vecteur champ électrique (V/m)
- \vec{B} l'induction magnétique (Tesla)
- \vec{D} le vecteur déplacement électrique (C/m²)
- \vec{H} le champ magnétique (A/m²).

Rappelons que les deux dernières grandeurs sont introduites pour tenir compte des effets du champ sur la matière. Pour obtenir une détermination unique des champs vecteurs, nous devons alors introduire les équations suivantes dites « constitutives » (équation I.6) :

$$\begin{aligned} \vec{D} &= \varepsilon \cdot \vec{E} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \\ \vec{B} &= \mu \cdot \vec{H} = \mu_0 \cdot \vec{H} + \vec{M} \\ \vec{j} &= \sigma \cdot \vec{E} \end{aligned} \tag{I.6}$$

avec

- ε la permittivité absolue (F/m)
- μ la perméabilité (H/m)
- σ la conductivité électrique (S/m)
- \vec{M} la polarisation magnétique
- \vec{P} la polarisation électrique
- ε_0 et μ_0 la permittivité et la perméabilité du vide respectivement.

En combinant ces différentes expressions, il vient l'équation d'onde suivante, déterminée pour un milieu non chargé ($\rho = 0$) (équation I.7) :

$$\Delta \vec{E} = \mu \varepsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu \sigma \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad I.7$$

Dans un milieu non magnétique $\mu = \mu_0$, constitué du gaz d'électrons libres du modèle de Drude, l'expression se simplifie pour prendre la forme de l'équation I.8 :

$$\Delta \vec{E} = \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \sigma \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = i\omega (i\omega \mu_0 \varepsilon_0 \vec{E} + \mu_0 \vec{j}) \quad I.8$$

Qui peut encore s'écrire ($\mu_0 \varepsilon_0 c^2 = 1$):

$$\Delta \vec{E} = -\frac{\omega^2}{c^2} \left[1 + i \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\tau}{\omega} \left(\frac{1}{1 - i\omega\tau} \right) \right] \cdot \vec{E} \quad I.9$$

Où l'on reconnaît l'équation de propagation classique de la lumière dans un milieu de constante diélectrique complexe $\tilde{\varepsilon}(\omega)$.

$$\Delta \vec{E} = -\frac{\omega^2}{c^2} \tilde{\varepsilon}(\omega) \cdot \vec{E} \quad I.10$$

avec

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = 1 + i \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\tau}{\omega} \left(\frac{1}{1 - i\omega\tau} \right) \quad I.11$$

On parlera alors de fonction diélectrique plutôt que de constante que l'on réservera aux diélectriques.

Cette fonction $\tilde{\varepsilon}(\omega) = \varepsilon_r + i\varepsilon_i$ peut encore s'écrire en posant $\omega_p^2 = Ne^2/m\varepsilon_0$ (où $\nu_p = \omega_p/2\pi$ est la fréquence de plasmon) et $\omega_t^2 = 1/\tau^2$, comme

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\omega_t)} = \left[1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \omega_t^2} \right] + \left[\frac{\omega_p^2 \cdot \omega_t}{\omega(\omega^2 + \omega_t^2)} \right] \quad I.12$$

Rappelons que la partie réelle de la fonction diélectrique traduit le caractère inductif du milieu, et qu'elle peut être positive ou négative pour un métal, selon la pulsation. La partie imaginaire, quand à elle, traduit le caractère dissipatif du milieu (effet Joule) et elle est toujours positive.

3.3 Dispersion spectrale et fréquence de plasmons

Le couplage entre l'onde électromagnétique incidente et les oscillations collectives des électrons sera appelé un plasmon-polariton. Ces oscillations doivent satisfaire l'équation locale de Maxwell Ampère (équation I.13) :

$$\text{rot}\vec{H} = \vec{j} + \partial\vec{D}/\partial t = i\omega \times \tilde{\epsilon}(\omega)\vec{E} \quad I.13$$

Comme il n'y a pas d'excitations magnétiques dans notre problème, on en déduit que les fréquences propres d'oscillation correspondent au(x) zéro(s) de la fonction diélectrique $\tilde{\epsilon}(\omega) = 0$. S'il s'agit d'électrons libres ayant des temps de relaxation très grand ($\tau \rightarrow \infty$; $\omega_\tau \approx 0$), il vient l'équation I.14 connue dans les métaux :

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad I.14$$

avec $\omega = \omega_p$ la pulsation de résonance. Ainsi, la pulsation spécifique pour laquelle la partie réelle de la fonction diélectrique s'annule et pour laquelle le gaz d'électrons subit une oscillation quantifiée sera appelée pulsation plasmon.

Si les électrons libres ne sont pas dans le vide mais que l'ensemble des charges positives possède une constante diélectrique que l'on notera ϵ^∞ , constante pour des fréquences nettement supérieures à ω_p , on pourra alors écrire l'équation I.15 :

$$\epsilon(\omega) = \epsilon^\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} = \epsilon^\infty \left[1 - \frac{\tilde{\omega}_p^2}{\omega^2} \right] \quad I.15$$

où l'on définit alors la pulsation plasmon comme $\tilde{\omega}_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{m \cdot \epsilon_0 \cdot \epsilon^\infty}}$

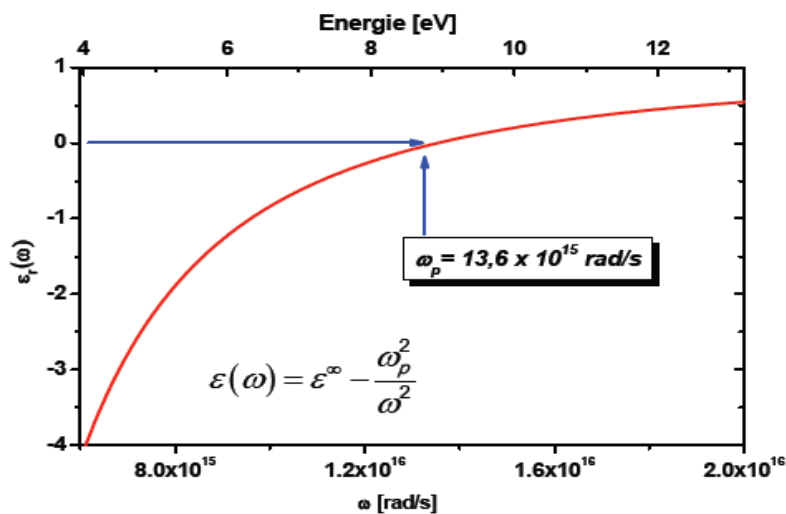


Fig. I.2 : : Partie réelle de la fonction diélectrique d'un métal parfait selon l'équation I.14 avec $\epsilon^\infty = 2,48$; $\omega_p = 13,6 \times 10^{16} (\text{rad} \cdot \text{s}^{-1})$, $\omega_\tau = 7,62 \times 10^{13} (\text{rad} \cdot \text{s}^{-1})$

Le tableau suivant rassemble quelques valeurs de pulsations plasmon et de facteur d'amortissement de différents métaux [16]

Métal	$\omega_p (\times 10^{15} \text{rad.s}^{-1})$	$\omega_\tau (\times 10^{13} \text{rad.s}^{-1})$
Al	13,50	7,62
Ag	13,69	2,73
Au	13,71	4,05
Cu	6,03	5,56
Co	11,23	1,38

Tableau I.1 : Pulsation plasmon et facteurs d'amortissement de différents métaux [13].

Sur la figure I.2, nous avons tracé la dispersion en pulsation de la partie réelle de la constante diélectrique suivant le modèle de Drude. De cette figure il faut distinguer différents domaines (on pose $\tilde{\epsilon}(\omega) = (n - ik)^2$) :

↪ $\tilde{\epsilon}(\omega) < 0$: Dans ce domaine $\omega < \omega_p$ et l'indice est imaginaire pur (car $n = \sqrt{\epsilon_r} = \mp i\sqrt{|\epsilon_r|}$) ; l'atténuation de l'onde ne sera pas liée à une valeur de ϵ_i (de k ou de τ non nulle, comme habituellement quand $n > 0$), mais au fait que n étant imaginaire pur, l'onde se propageant dans la direction z prend la forme :

$$\vec{E}_x(z) = \vec{E}_{0x} \times e^{i\omega t} \times \exp\left[-\frac{\omega}{c}\sqrt{\epsilon_r} \cdot z\right]$$

Ce type d'onde est connu sous le nom d'onde évanescente. Sa décroissance est exponentielle avec la distance ce qui revient à dire qu'elle ne se propage pas dans le milieu. L'onde est aussi dite non radiative. Ainsi, aucune onde ne peut se propager à longue distance et le milieu est considéré comme étant opaque ; dans ce domaine spectral, les ondes sont totalement réfléchies par le métal. On note que pour les métaux $\tilde{\epsilon}(\omega) < 0$ dans le visible.

↪ $\tilde{\epsilon}(\omega) > 0$: Dans ce domaine $\omega > \omega_p$ et l'indice n est réel, le milieu est alors transparent et nous avons transmission de l'onde; le milieu est dit propagatif et si l'on pose $\tilde{\epsilon}(\omega) = (n - ik)^2$, l'amortissement sera géré cette fois par la valeur de k , l'onde aura la forme:

$$\vec{E}_x = \vec{E}_{0x} \times e^{i\omega t} \times \exp\left[-\frac{\omega}{c}k \cdot z\right] \times \exp\left[-i\frac{\omega}{c}n \cdot z\right]$$

3.4 Perte d'énergie et fréquence plasmons

Nous avons défini une pulsation particulière aux paragraphes précédents, que nous avons nommée pulsation plasmon. On peut montrer qu'elle correspond à la pulsation d'une oscillation collective du gaz d'électrons. Cette oscillation, que l'on a aussi appelée plasmon de volume, est harmonique (équation I.1) et quantifiée d'énergie $E = \hbar\omega_p$. Cette quantification d'énergie peut être observée par microscopie électronique à transmission (EELS – 'Electron Energy Loss Spectroscopy'). La mesure des pertes d'énergie du faisceau électronique monocinétique traversant un film mince révèle alors des structures discrètes d'énergie $n \times \hbar\omega_p$, n entier.

En effet, dans un gaz d'électrons de dimensions infinies, la probabilité par unité de temps qu'une particule chargée transmette à ce gaz d'électrons une quantité d'énergie $\hbar\omega$ est proportionnelle à $Im[\tilde{\epsilon}(\omega)^{-1}]$, ce qui s'écrit alors [17] :

$$Im\left[\frac{1}{\tilde{\epsilon}(\omega)}\right] = \frac{\omega\omega_p\tau}{\omega^2 + (\omega^2 - \omega_p^2)\tau^2} \approx \frac{\epsilon_i}{(\epsilon_r^2 + \epsilon_i^2)} \quad I.16$$

Le maximum de cette probabilité est donné par le maximum de $Im\frac{1}{\tilde{\epsilon}(\omega)}$ qui vaut :

$$\omega = \omega_p \left(1 - \frac{1}{8\omega_p^2\tau^2}\right) \quad I.17$$

Ceci revient à supposer que quand le temps de relaxation tend vers l'infini $\epsilon_i \rightarrow 0$, $\omega \approx \omega_p$.

Le tableau I.2 reporte des valeurs en électron-volt de cette énergie pour différents métaux.

Métal	$\hbar\omega_p$ (ev)	λ (nm)
Na	5,71	217
Ag	9,2	135
Mg	10,9	113
Al	15,8	78

Tableau I.2 : Energies $E = \hbar\omega_p$ des plasmons de volume calculées pour différents métaux, (hypothèse des électrons libre) [9].

4. GAZ D'ÉLECTRONS DANS UN ESPACE SEMI-INFINI : PLASMONS DE SURFACE

4.1 Relation de dispersion des plasmons de surface

Jusqu'alors nous avons considéré que le « gaz » d'électrons était de dimensions infinies. Considérons maintenant que ce « gaz » d'électrons n'occupe qu'un demi-espace, l'autre partie étant occupée par un diélectrique et que les deux milieux semi-infinis ainsi définis sont linéaires, homogènes, isotropes et non magnétiques. Intéressons-nous, en particulier, à une interface plane (Figure I.3). Pour introduire les ondes de surface, nous allons résoudre le problème électromagnétique, ce qui va nous permettre de discuter les conditions d'existence des plasmons de surface.

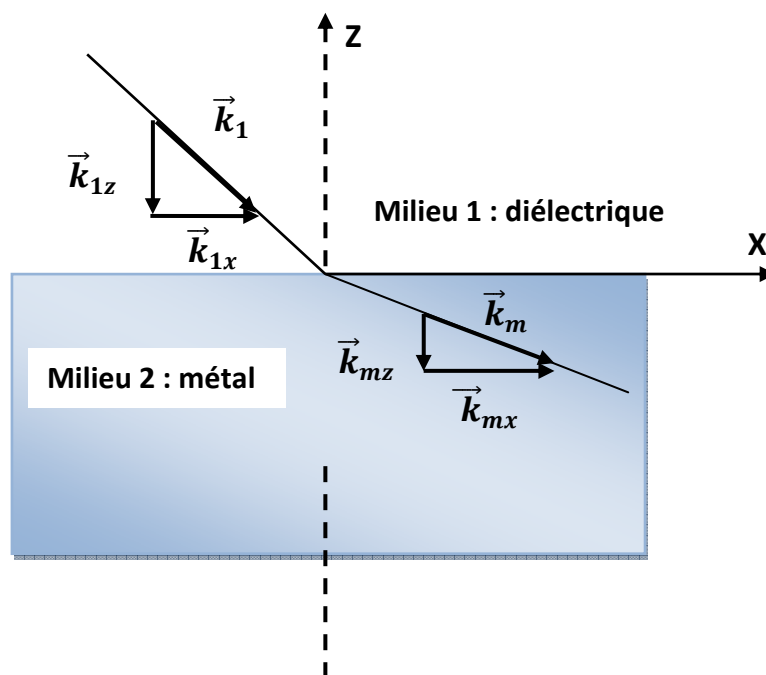


Fig. I.3 : Illustration d'une interface métal diélectrique.

Dans cette géométrie, nous cherchons des fonctions d'ondes, solutions des équations de Maxwell, qui se propagent parallèlement à l'interface et dont l'amplitude décroît exponentiellement avec la distance à l'interface. Ceci définit un mode du système, appelé « onde de surface ». Les champs électriques et magnétiques dans les deux milieux 1 et m (diélectrique et métal, respectivement) sont exprimés par (cas particulier d'une onde de polarisation transverse magnétique TM encore notée p) :

$$\begin{aligned}
 \text{Pour } Z < 0 \text{ (dans le métal)} & \quad \begin{cases} \vec{H}_m = (0, \vec{H}_{my}, 0).exp[+i(k_{mx}x + k_{mz}z - \omega t)] \\ \vec{E}_m = (\vec{E}_{mx}, 0, \vec{E}_{mz}).exp[+i(k_{mx}x + k_{mz}z - \omega t)] \end{cases} \\
 \text{Pour } Z > 0 \text{ (dans le diélectrique)} & \quad \begin{cases} \vec{E}_1 = (\vec{E}_{1x}, 0, \vec{E}_{1z}).exp[+i(k_{1x}x + k_{1z}z - \omega t)] \\ \vec{H}_1 = (0, \vec{H}_{1y}, 0).exp[+i(k_{1x}x + k_{1z}z - \omega t)] \end{cases}
 \end{aligned}$$

A partir des équations de Maxwell appliquées dans le cas d'une interface parfaitement plane entre le solide et le vide, en particulier de l'équation de Maxwell-Ampère ($\overrightarrow{rot} \vec{H} = -\partial \vec{D} / \partial t$) et Maxwell-Faraday ($\overrightarrow{rot} \vec{E} = -\partial \vec{B} / \partial t$), on obtient l'équation de propagation (équation I.18) :

$$\Delta \vec{E} = \frac{\varepsilon(\omega)}{c^2} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \tag{I.18}$$

Appliquées aux champs précédents, on obtient directement dans le vide et pour le métal :

$$(k_{1x})^2 + (k_{1z})^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \times \varepsilon_1 \quad \text{et} \quad (k_{mx})^2 + (k_{mz})^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \times \tilde{\varepsilon}(\omega) \tag{I.19}$$

avec les conditions de continuité :

$$E_{mx} = E_{1x} \quad ; \quad H_{mx} = H_{1x} \quad ; \quad \tilde{\varepsilon}_m E_{mz} = \varepsilon_1 E_{1z} \quad \text{et} \quad k_{mx} = k_{1x} = k_x \tag{I.20}$$

En tenant compte de l'équation de Maxwell-Ampère :

$$k_{z1} H_{y1} = \varepsilon_1 E_{x1} \quad \text{et} \quad k_{zm} H_{ym} = -\tilde{\varepsilon}_m E_{xm} \frac{\omega}{c} \tag{I.21}$$

En combinant ces deux égalités et les propriétés de continuité (équation I.20), il vient la relation suivante :

$$-\frac{k_{zm}}{\tilde{\varepsilon}_m} = \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} \tag{I.22}$$

En associant les équations (I.19) et (I.22), on peut alors déterminer successivement k_{z1} , et k_{zm} enfin . On obtient alors la relation de dispersion suivante :

$$k_x = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\varepsilon_1 \tilde{\varepsilon}_m}{\varepsilon_1 + \tilde{\varepsilon}_m} \right)^{1/2} \tag{I.23}$$

Cette relation relie la pulsation ω et le vecteur d'onde parallèle \vec{k}_x définissant l'onde de surface. **Cette relation est appelée la relation de dispersion du plasmon de surface.**

Dans le cas du métal parfait, avec $\tilde{\epsilon}_m = \epsilon_{mr} + i\epsilon_{mi}$ nous avons montré que la partie réelle de la fonction diélectrique est négative dans le domaine visible ($\epsilon_{mr} < 0$) et que la partie imaginaire est voisine de zéro $\epsilon_{mi} \approx 0$. La relation (I.23) montre alors que les modes surfaciques n'existeront que pour $\epsilon_1 + \epsilon_{mr} < 0$, soit pour $\epsilon_{mr} < -\epsilon_1$.

Si l'on se rappelle que pour le plasma idéal $\epsilon_m = 1 - \omega_p^2/\omega^2$ alors les plasmons de surface n'existeront que pour des pulsations ω telle que :

$$\omega < \frac{\omega_p}{(1+\epsilon_1)^{1/2}} \tag{I.24}$$

Pour les grandes valeurs du vecteur d'onde, on peut caractériser les plasmons de surface par $\epsilon_1 + \epsilon_{mr} = 0$, soit par la définition suivante (équation I.25) :

$$\omega_{ps} = \frac{\omega_p}{\sqrt{1+\epsilon_1}} \tag{I.25}$$

Si le diélectrique est l'air, l'équation (I.25) se réduit à la relation bien connue pour les plasmons de surface :

$$\omega_{ps} = \frac{\omega_p}{\sqrt{2}} \tag{I.26}$$

Il est alors possible de tracer la relation de dispersion des plasmons de surface comme le montre la Figure I.4.

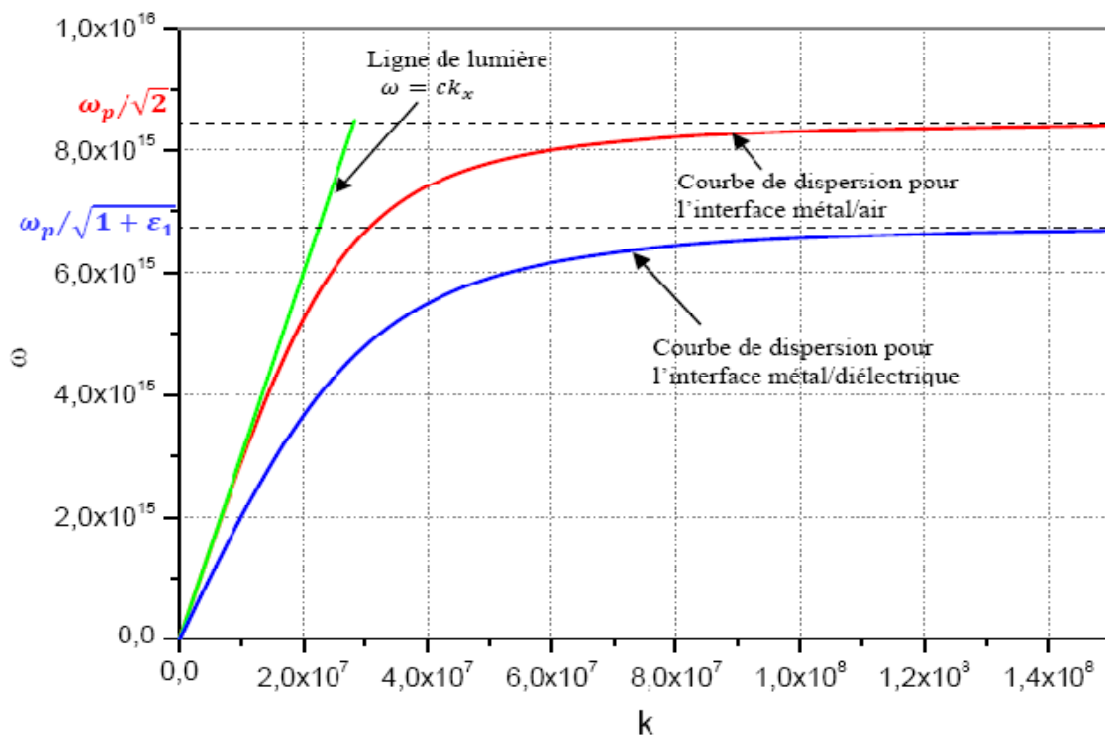


Fig. I.4 : Relation de dispersion des plasmons de surface.

Chapitre I Résonance Plasmons de surface - origine et applications

Les branches inférieures des courbes de la Figure I.4, représentent la relation de dispersion des PS à l'interface métal/air (ligne rouge) et à l'interface métal/diélectrique en ligne bleue. Au point d'origine ces courbes sont tangentes à la droite d'équation $\omega = ck_x$. Cette dernière exprime la dispersion de la lumière dans le vide appelée « ligne de lumière ». Quand k_x tend vers l'infini, la pulsation tend vers une valeur asymptotique $\omega_p/\sqrt{1 + \varepsilon_1}$ (asymptote horizontale).

La relation de dispersion des plasmons de surface est donc toujours strictement inférieure à celle de la ligne de lumière comme nous montre la Figure I.6. Cette absence d'intersection (sauf la solution triviale pour $\omega = 0$) interdit tout couplage ou résonance entre l'onde électromagnétique et un mode de propagation des plasmons de surface. En d'autre terme, il est impossible d'exciter les PS en éclairant directement le métal avec une onde électromagnétique dite du domaine optique, car l'accord de phase ne peut pas être réalisé. Nous détaillerons néanmoins les méthodes de couplages dans la suite du chapitre.

Signalons que Stern et Ferrel [18] ont montré que le mouvement des électrons des plasmons de surface pouvait acquérir un caractère transverse (TM) à la surface de séparation des deux milieux. Mais des conditions de polarisation de la lumière incidente se présentent. Nous rappelons dans le tableau suivant la polarisation et les champs correspondants.

<i>TM ou pulsations (p)</i>	$\begin{cases} E = (E_x, 0, E_z) \\ H = (0, H_y, 0) \end{cases}$
<i>TE ou pulsations (s)</i>	$\begin{cases} E = (0, E_y, 0) \\ H = (H_x, 0, H_z) \end{cases}$

Tableau. I.3 : résumé des polarisations transverses électrique et magnétique.

Si on considère qu'une onde incidente sur le métal est de polarisation **s** ou **TE** (Transverse Electrique), il n'y aura pas de composante de son champ électrique dans le plan de polarisation, donc aucune onde de PS ne sera excitée. Nous voyons ainsi que seule une onde polarisée **p** pourra engendrer dans le gaz d'électrons (plasma) une onde longitudinale de PS, alors qu'une onde **s** laissera le milieu globalement invariant, pour une surface d'interaction lisse.

4.2 Extension spatiale et longueur de propagation des PS

Nous venons de voir que le vecteur d'onde des PS, \mathbf{k} , en particulier sur une interface métal/diélectrique, comporte deux composantes, une correspondant à la propagation du plasmon le long de l'interface, et une autre – imaginaire pure – caractérisant la décroissance de l'onde des deux côtés de l'interface.

$$k_x^2 + k_{zj}^2 = \tilde{\epsilon}_j(\omega) \left(\frac{\omega}{c}\right)^2$$

avec $j = 1$ ou m caractérisant le milieu diélectrique et métal, respectivement.

a. Extension spatiale suivant la direction transverse à l'interface (Oz) (profondeur de pénétration)

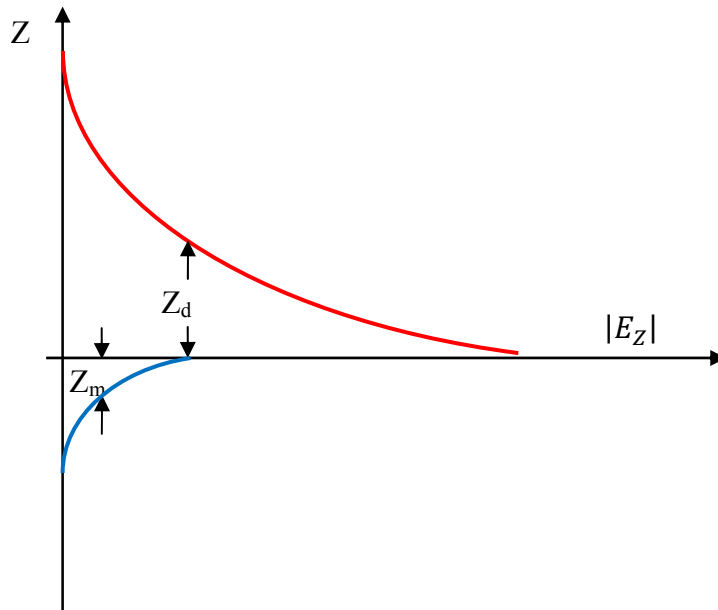


Fig. I.5: représentation de la composante normale du champ électrique du plasmon de surface selon la direction Z perpendiculaire à l'interface.

L'amplitude du champ mentionné précédemment décroît exponentiellement comme $\exp[-|k_{zj}||z|]$ par rapport à la normale à la surface, \mathbf{z} (figure I.5).

L'extension spatiale (ou encore distance d'atténuation) pour laquelle le champ des PS s'atténue de $1/e$ est alors défini par :

$$z_j = \frac{1}{|k_{zj}|} \tag{I.27}$$

Avec (équations I.19 et I.22)

$$k_{zm} = \left(\frac{\omega}{c}\right) \left(\frac{\epsilon_{mr}^2}{\epsilon_{mr} + \epsilon_1}\right)^{1/2} \tag{I.28}$$

$$k_{z1} = \left(\frac{\omega}{c}\right) \left(\frac{\epsilon_1^2}{\epsilon_{mr} + \epsilon_1}\right)^{1/2}$$

Les k_{zj} sont imaginaires car $\varepsilon_1 + \varepsilon_{mr} < 0$. On peut en tirer facilement les valeurs suivantes d'extension spatiale (équation I.29) que nous avons tracées sur la figure I.6 pour l'argent :

$$z_m = \left(\frac{\lambda}{2\pi} \right) \left(\frac{\varepsilon_{mr} + \varepsilon_1}{\varepsilon_{mr}^2} \right)^{1/2}$$

I.29

$$z_1 = \left(\frac{\lambda}{2\pi} \right) \left(\frac{\varepsilon_{mr} + \varepsilon_1}{\varepsilon_1^2} \right)^{1/2}$$

La connaissance de cette profondeur de « peau » s'avère importante pour l'étude des champs électriques à la surface des matériaux notamment pour l'étude des phénomènes d'adsorption, l'étude des couches ultra minces ou encore l'étude des capteurs à résonance plasmons de surface (SPR). Elle donne une indication précieuse sur la distance à laquelle une molécule chimique ou biochimique pourra influencer ou être influencée au niveau du capteur.

A titre d'exemple, nous traçons l'extension spatiale suivant z pour une interface argent/air (Figure I.6). En appliquant l'équation I.29 pour une longueur d'onde de 600 nm, nous obtenons, dans le métal et le diélectrique, que le champ des PS s'étend sur 370 nm dans l'air et de seulement 23 nm dans l'argent.

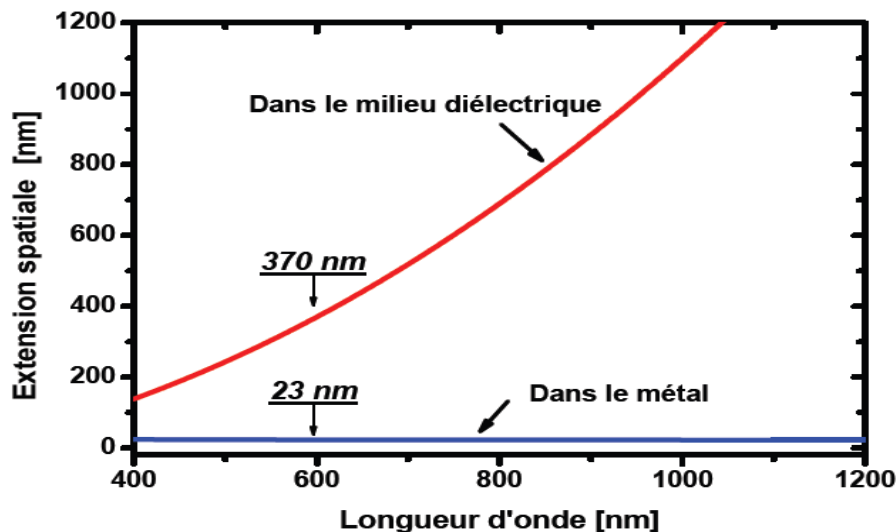


Fig. I.6: Extension spatiale dans la direction z normale à la surface, dans le vide (en rouge) et dans le métal (courbe bleue), du plasmon de surface à l'interface argent/vide.

b. Longueur de propagation le long de l'interface (Ox)

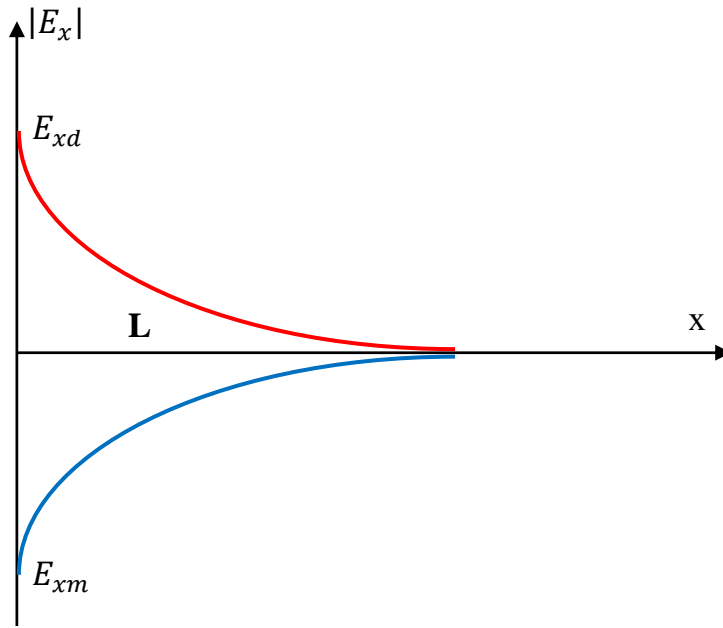


Fig. I.7 : Représentation schématique de la longueur de propagation L du plasmon de surface se propageant à l'interface entre un métal et un diélectrique.

Jusqu'ici nous avons négligé les pertes (amortissement) lors de l'oscillation des électrons ce qui nous a fait considérer la propagation des PS sans atténuation.

Cependant l'intensité des PS se propageant le long d'une surface plane décroît en fonction de $\exp(-2k_x x)$ (figure I.7). La longueur pour laquelle l'intensité décroît à $1/e$ est donnée par l'équation 1.30 [1] :

$$L = (2k_x)^{-1} \tag{I.30}$$

Nous rappelons que $\epsilon_m = \epsilon_{mr} + i\epsilon_{mi}$; On peut écrire $k_x = k_{xr} + ik_{xi}$, et montrer que :

$$k_{xr} = \left(\frac{\omega}{c}\right) \left(\frac{\epsilon_1 \epsilon_{mr}}{\epsilon_{mr} + \epsilon_1}\right)^{1/2} \tag{I.31}$$

$$k_{xi} = \left(\frac{\omega}{c}\right) \left(\frac{\epsilon_1 \epsilon_{mr}}{\epsilon_{mr} + \epsilon_1}\right)^{3/2} \times \frac{\epsilon_{mi}}{2(\epsilon_{mr})^2}$$

k_{xi} représente l'absorption interne ; cette énergie absorbée par le film peut être mesurée par une cellule photo acoustique. La connaissance de L est importante car elle conditionne la résolution latérale lors des applications Spectroscopie Raman exaltée de surface par exemple (SERS).

A titre d'exemple, comme nous le montre la Figure I.8, $L \sim 60 \mu\text{m}$ dans l'argent pour une longueur d'onde de 600 nm.

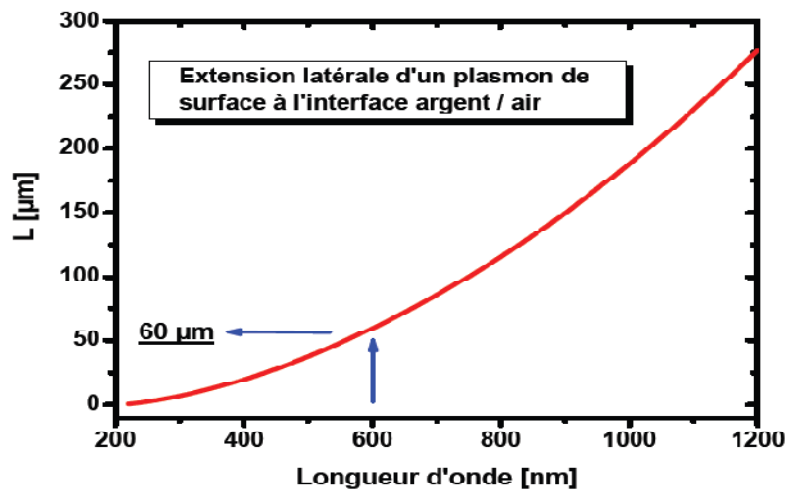


Fig. I.8: Extension suivant la direction x de propagation du plasmon de surface à l'interface argent/vide.

4.3 Choix du métal

Nous avons maintenant tous les éléments pour justifier le choix du métal utilisé pour étudier les plasmons de surface et ses applications. Pour les applications en optique, ce qui est notre cas, le métal doit présenter des plasmons de surface capable de « résonner » avec la lumière à une longueur d'onde convenable (entre 400 et 1000 nm, soit grossièrement entre 3,5 et 1 eV). Ceci impose donc de choisir des métaux présentant des transitions hybrides comme l'argent, l'or et le cuivre. Un métal simple comme l'aluminium, aura des énergies de résonance pour les plasmons de volume autour de 15 eV, pour les plasmons de surface autour de 10,6 eV qui pourront descendre jusqu'à 6,5-7 eV du fait de la couche d'oxyde Al_2O_3 et de l'état de surface $\left(\hbar\omega_p / \sqrt{(1 + \epsilon_{\text{Al}_2\text{O}_3})} \right)$

L'argent et l'or sont des métaux qui satisfont ces conditions et sont largement utilisés dans la recherche et les applications commerciales à cause de leur sensibilité et leur stabilité [19].

D'autres métaux comme le cuivre, l'aluminium, le sodium ou l'indium peuvent être utilisés en théorie, mais certains inconvénients font leur utilisation rare et essentiellement dans les laboratoires de recherche. Par exemple, l'indium est trop onéreux, le sodium trop réactif et l'aluminium et le cuivre ont leur résonance trop large.

Enfin, il faut noter dans le cas de l'or, pour des longueurs d'onde $< 520\text{nm}$, les photons ne transfèrent pas leur énergie aux modes plasmons de surface. A la place, ils les transfèrent à des électrons individuels pour générer des transitions interbandes, ce qui conduit à la disparition de la résonance plasmons de surface [20]. M. Watanabe et al [21], parlent de « anomalous reflection of gold ». Ainsi, pour des longueurs d'onde inférieures à 550 nm , l'or devient un diélectrique et perd ses propriétés métalliques de réflectivité. Par exemple, M. Watanabe utilisent cet effet pour contrôler la variation du signal due aux dépôts de couches transparentes sur l'or et comparent cette technique à l'évolution du signal de résonance plasmons de surface SPR.

5. TECHNIQUES OPTIQUES DE COUPLAGE

5.1 Relation de couplage

Dans le début de ce chapitre, nous avons établi la relation de dispersion $\omega - k$ des plasmons de surface (PS) à partir des équations de Maxwell et des conditions de continuité aux limites ; nous avons alors exprimé cette relation par l'équation I.23 :

$$k_{ps} = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\varepsilon_1 \tilde{\varepsilon}_m}{\varepsilon_1 + \tilde{\varepsilon}_m} \right)^{1/2}$$

Cette relation de dispersion $\omega - k$ est habituellement représentée dans un graphe qui représente la pulsation ω_{ps} en fonction de la norme du vecteur d'onde k_{ps} du PS (figure I.6). Cette représentation nous a permis de comprendre en quoi les plasmons de surfaces sont dit « non radiatif ». En effet, pour qu'un couplage entre les plasmons de surface et la lumière puisse être observé, il faut que la condition dite de couplage soit satisfaite. Cette condition s'exprime très simplement par l'égalité entre la norme du vecteur d'onde des plasmons de surface k_{ps} et la projection dans le plan de la surface du vecteur d'onde k_x de lumière incidente.

Ceci s'écrit simplement selon l'équation I.32.

$$\vec{k}_x = \vec{k}_{ps} \tag{I.32}$$

On constate sur la figure I.6 que cette condition n'est jamais réalisée, car la courbe $\omega = c.k_x$ dite ligne de lumière ne croise jamais la courbe de dispersion des plasmons $\omega - k_{ps}$.

Il apparaît donc indispensable, pour coupler les plasmons de surface avec un rayonnement électromagnétique photonique, de développer des techniques particulières, ayant recours à l'utilisation de systèmes de couplage, encore appelés « coupleurs ».

Concrètement, le rôle des coupleurs est d'« accorder » l'onde lumineuse incidente avec l'un des modes des plasmons de surface, afin qu'il y ait un échange d'énergie entre les deux. Les coupleurs vont ainsi permettre d'adapter la composante longitudinale $k_x \pm \Delta k_x$ du vecteur d'onde de la lumière incidente afin que la condition de résonance décrite par l'équation I.32 soit satisfaite.

$$k_x \pm \Delta k_x = k_{ps} \quad I.33$$

Il existe principalement 4 types de coupleurs permettant de réaliser la condition de couplage :

- ↪ Le prisme ou la fibre optique
- ↪ Le réseau de diffraction ou la rugosité de surface
- ↪ Le coupleur directionnel et guide optique
- ↪ La pointe en champ proche

Dans la suite de ce chapitre, nous allons rapidement détailler les différentes configurations expérimentales des 4 types de couplages citées ci-dessus.

5.2 Description des différents modes de couplage entre PS et lumière

a. Couplage par prisme ou fibre optique (mode ATR)

Lors du passage de la lumière à travers un prisme, si l'angle d'incidence est supérieur à l'angle critique défini par la loi de Snell (figure I.9), on observe une réflexion interne totale (RIT).

L'onde réfractée alors ne peut plus se propager, il y a apparition d'un champ évanescent à l'interface prisme-milieu extérieur. Ce champ est qualifié d'évanescence, car on peut montrer que son amplitude décroît exponentiellement suivant l'axe z perpendiculaire à l'interface. On définit alors la profondeur de pénétration, ou l'épaisseur de peau, épaisseur pour laquelle l'amplitude du champ a diminué de $1/e \sim 0,27$ (voir la sous-section I.4.2-a).

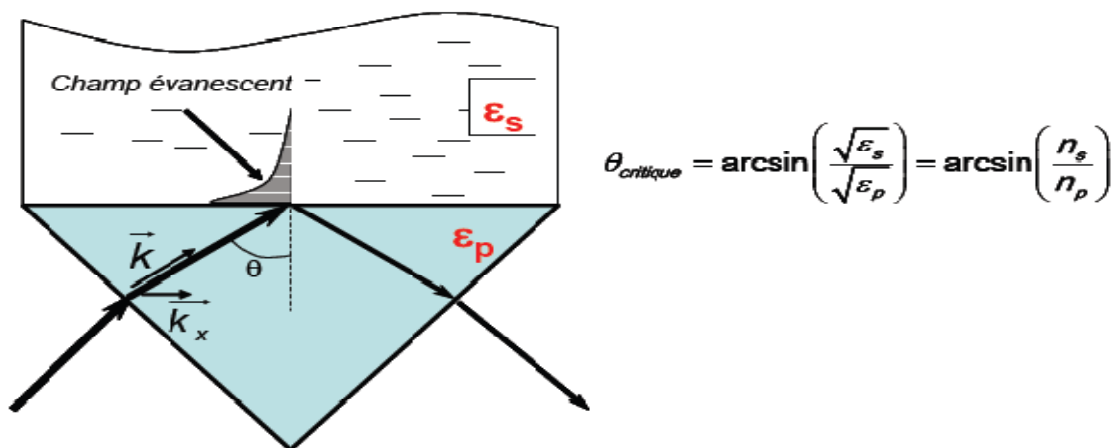


Fig. I.9: Réflexion interne totale (RIT) d'une onde dans un prisme. Illustration de la décroissance exponentielle de l'amplitude du champ évanescent dans le milieu extérieur d'indice de réfraction (n_s) inférieur par rapport à celui du prisme (n_p).

Maintenant, si ce même prisme est recouvert d'une couche métallique, pour les longueurs d'onde supérieures à la longueur d'onde de coupure (fréquence plasmon), nous observerons là encore le phénomène de réflexion interne totale. Si l'épaisseur de cette couche métallique est suffisamment faible (<150 nm pour l'argent), alors l'amplitude du champ associé à l'onde évanescente sera encore suffisamment importante au niveau de la seconde interface métal/milieu extérieur (figure I.10). Le champ évanescent pourra alors se coupler avec les plasmons de surface présent à l'interface métal/milieu extérieur, sous réserve que la condition de couplage soit satisfaite.

En effet, pour un angle d'incidence particulier, que nous appellerons angle de résonance, il pourra y avoir égalité entre la composante longitudinale du vecteur d'onde du champ évanescent avec le vecteur d'onde du plasmon. Ce couplage se manifestera par un minimum sur la courbe de réflectivité due à l'absorption de l'énergie par le métal, énergie qui pourra se propager sous forme de PS à l'interface entre le métal et le milieu extérieur. Ce phénomène a pour nom réflexion totale atténuée (ATR).

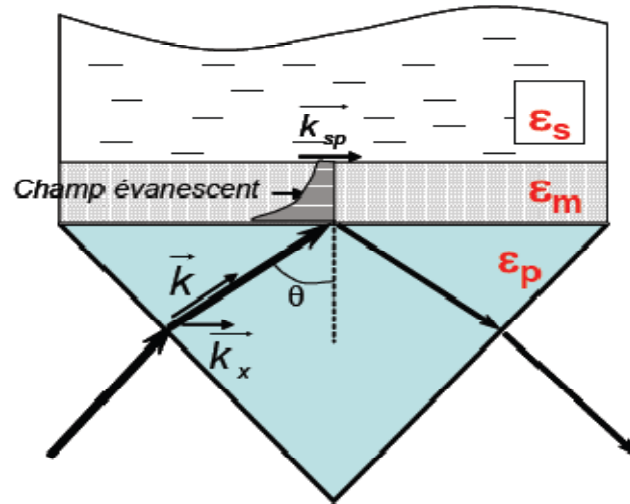


Fig. I.10: Illustration du couplage par prisme, configuration de Kretschman [6].

Finalement, on peut montrer que le prisme est un bon coupleur à l'aide des courbes de dispersion. En effet, dans le prisme de constante diélectrique ϵ_p , le vecteur d'onde du champ incident devient :

$$k = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_p} \quad I.34$$

et sa projection sur la surface peut s'écrire :

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_p} \cdot \sin\theta \quad I.35$$

On remarque alors sur la figure I.11, pour des valeurs particulières de ϵ_p , le couplage entre l'onde incidente se propageant dans le prisme et les plasmons de surface à l'interface métal-milieu extérieur.

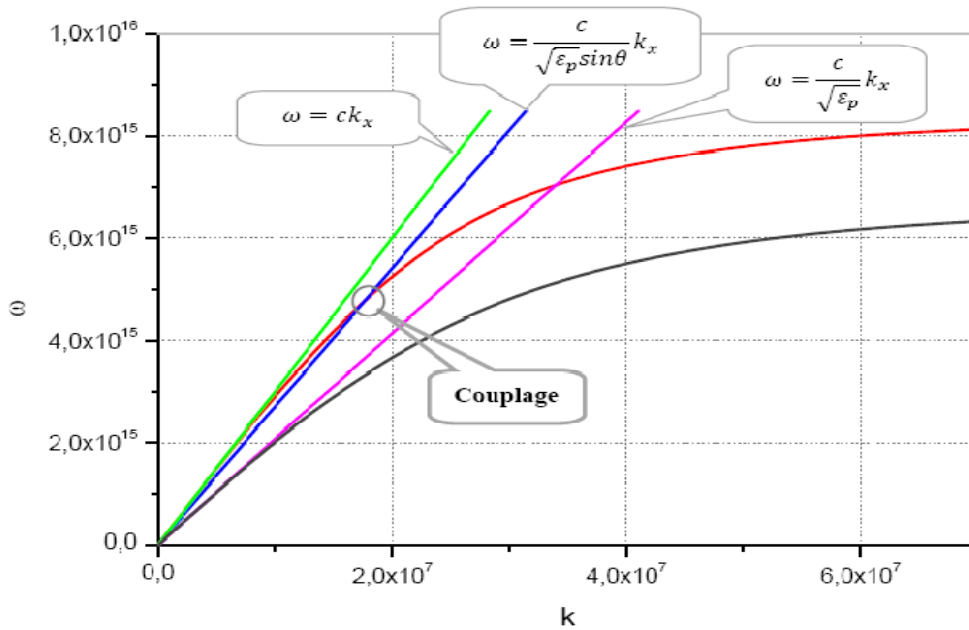


Fig. I.11: Illustration du couplage d'une onde lumineuse se propageant dans un prisme sous un angle d'incidence θ , et les plasmons de surface à l'interface métal – milieu extérieur.

Ce phénomène a lieu pour un angle d'incidence, tel que deux courbes de dispersion se croisent (Fig. I.11). La résonance plasmonique se traduit par un accroissement de l'efficacité du transfert d'énergie de l'onde lumineuse aux plasmons de surface. Ce qui explique l'apparition d'un pic d'absorption sur le spectre angulaire de la réflectivité du multicouche (Fig. I.12). Notons qu'un bon choix de paramètres optiques du système permet même d'annuler sa réflectivité à un certain angle d'incidence.

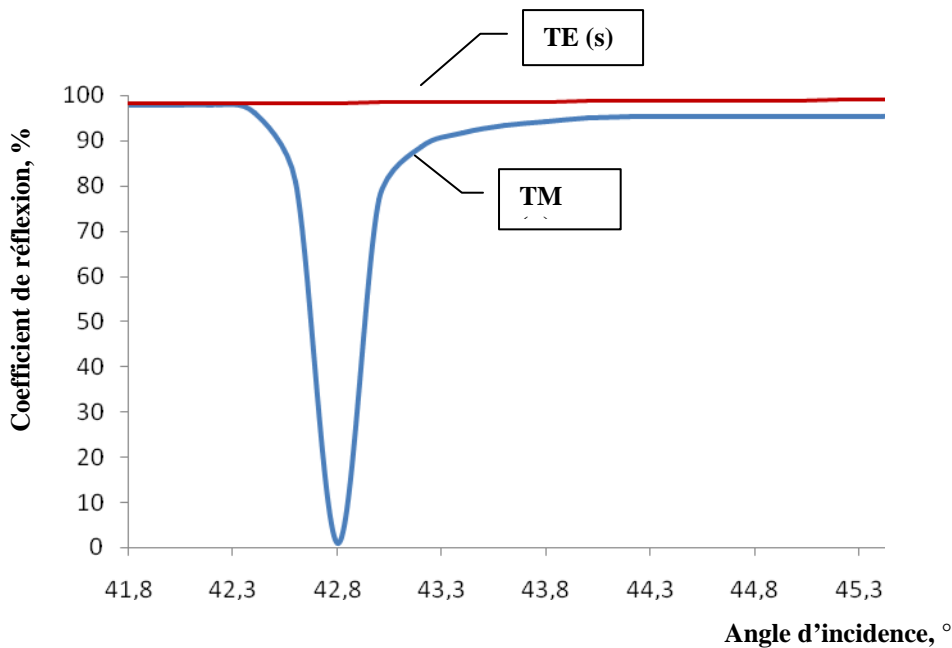


Fig. I.12 : Coefficients de réflexion d'une interface « Argent/Air » en fonction de l'angle d'incidence pour les polarisations TM (p) et TE (s). Données de calculs : une couche d'argent de ($\epsilon = -18+0,5i$), d'épaisseur 45nm, l'indice du prisme $n=1.515$

La position angulaire du pic d'absorption (angle SPR) est sensible principalement à la partie réelle des permittivités diélectriques des milieux du multicouche. La largeur à mi-hauteur du pic, quant à elle, est quasiment proportionnelle à la partie imaginaire des permittivités de ces milieux.

La fréquence maximale des plasmons de surface qu'on peut exciter par une onde lumineuse varie en fonction de l'indice du prisme ($n_p = \sqrt{\varepsilon_p}$). Afin de trouver cette fréquence, on pose : $\sin\theta = 1$ et $\frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{prisme}} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon'}{\varepsilon'+1}}$.

Comme $\varepsilon(\omega) \approx 1 - \omega_p^2/\omega^2$, on trouve, alors :

$$Max(\omega_s) \approx \omega_p \sqrt{\frac{\varepsilon_p - 1}{2\varepsilon_p - 1}} \quad I.36$$

Ainsi, pour un prisme de BK-7 ($n=1.5$), par exemple : $Max(\omega_s) \approx 0.128\omega_p$

et pour l'indice $n=1.7$, la fréquence maximale sera : $Max(\omega_s) \approx 0.165\omega_p$

L'angle de résonance plasmonique (θ_{SPR}) pour une interface plane « métal /diélectrique » peut être évalué comme il suit :

- le vecteur d'onde du plasmon de surface (k_{SP}) se propageant le long de l'interface vaut :

$$k_{sp} = k_0 \cdot \sqrt{\frac{\varepsilon(\omega) \cdot \varepsilon_d}{\varepsilon(\omega) + \varepsilon_d}} = k_{sp}^{reel} + ik_{sp}^{imag} \quad I.37$$

$$k_{sp}^{reel} = k_0 \cdot \sqrt{\frac{\varepsilon_{reel}(\omega) \cdot \varepsilon_d}{\varepsilon_{reel}(\omega) + \varepsilon_d}} \quad I.38$$

$$k_{sp}^{imag} = k_{sp}^{reel} \cdot \frac{\varepsilon_{imag}}{2 \cdot \varepsilon_{reel} \cdot (\varepsilon_{reel} + \varepsilon_d)} = k_0 \left(\frac{\varepsilon_{reel} \varepsilon_d}{\varepsilon_{reel} + \varepsilon_d} \right)^{3/2} \frac{\varepsilon_{imag}}{2\varepsilon_{reel}^2} \quad I.39$$

où k_0 est le vecteur d'onde du faisceau lumineux dans le vide ($k_0 = \omega/c = 2\pi/\lambda$) ; $\varepsilon(\omega)$ et ε_d sont respectivement la permittivité diélectrique du métal et celle du milieu diélectrique adjacent.

- la composante tangentielle du vecteur d'onde du faisceau incident :

$$k_x = k_0 \cdot n_{prisme} \cdot \sin\theta \quad I.40$$

Alors, la condition principale de SPR ($k_x = k_{sp}$) sera remplie pour un angle d'incidence θ_{spr} tel que :

$$k_0 \cdot n_{prisme} \cdot \sin\theta = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_{reel}(\omega) \cdot \epsilon_d}{\epsilon_{reel}(\omega) + \epsilon_d}} \quad I.41$$

Ce qui donne finalement :

$$\theta_{spr} = \arcsin \left(n_{prisme}^{-1} \sqrt{\frac{\epsilon_{reel}(\omega) \cdot \epsilon_d}{\epsilon_{reel}(\omega) + \epsilon_d}} \right) \quad I.42$$

En pratique, il y a deux configurations utilisées : la configuration d’Otto (figure I.14-a) et celle de Kretschmann [10] (figure I.14-b). La configuration d’Otto, dite aussi couplage par « *frustration* », peut poser des problèmes de reproductibilité liés au contrôle de l’épaisseur séparant le prisme du métal (gap). La configuration de Kretschmann vient contourner cet inconvénient, puisque le gap est défini par l’épaisseur de la couche métallique. L’extension du champ électrique généré par les plasmons de surface est plus importante dans un diélectrique (verre) que dans le métal (cf. paragraphe sur les extensions spatiales). Pour cette raison, le « gap » est beaucoup plus fin dans la configuration de Kretschmann. Signalons que dans la configuration d’Otto, le couplage entre le champ évanescent et les PS se fait au travers d’une lame d’air. C’est aussi ce que l’on appelle l’effet tunnel optique (figure I.14-a).

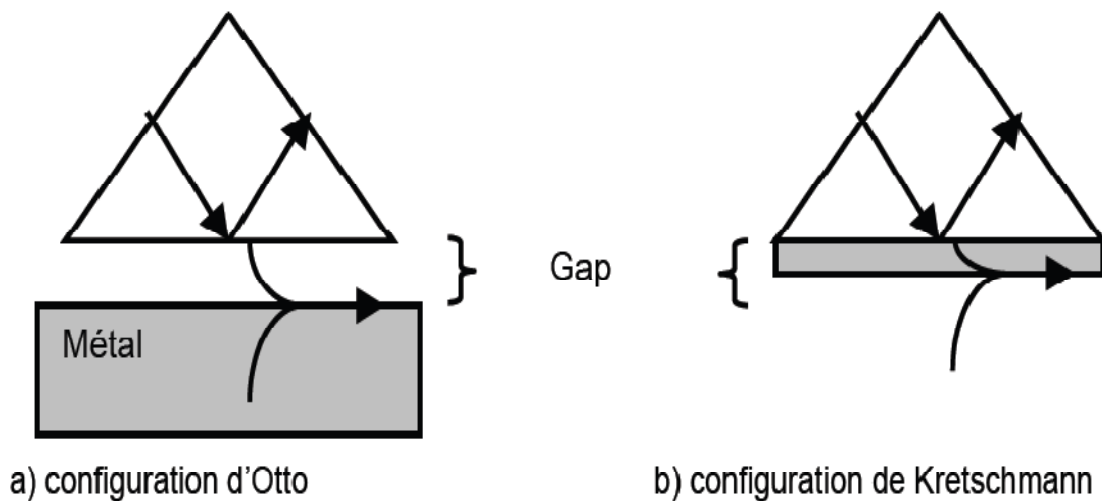


Fig. I.13: Couplage d’une onde incidente avec un PS à l’aide d’un prisme comme coupleur configuration d’Otto ; b) configuration de Kretschmann.

b. Couplage par réseau de diffraction et par la rugosité

Une autre façon très élégante de coupler la lumière avec les plasmons de surface est d'utiliser un réseau de lignes ou de plots métalliques.

Comme dans le cas du couplage optique par un prisme, le SPR aura lieu lorsque la condition formulée par l'équation (I.32) sera remplie. Ceci est possible si la projection tangentielle du vecteur d'onde de l'un des ordres de diffraction k'_{xm} du réseau devient égale à la norme du vecteur d'onde des plasmons de surface :

$$k'_{xm} = k_{sp}^{reel} \tag{I.43}$$

Cette projection tangentielle s'exprime comme suit :

$$k'_{xm} = k_x + mG \tag{I.44}$$

où \vec{G} est le vecteur d'onde du réseau ; k_x est la projection tangentielle du vecteur d'onde du faisceau incident.

Rappelons que, dans le cas d'un réseau sinusoïdal, la position angulaire d'un ordre de diffractions m s'exprime comme suit :

$$\beta_{\pm 1} = \arcsin \left[\pm \frac{\lambda_0}{nd} m - \sin\theta \right] \tag{I.45}$$

Où λ_0 est la longueur d'onde du faisceau incident, n est l'indice de réfraction du milieu adjacent, d est le pas du réseau (Fig. I.14.).

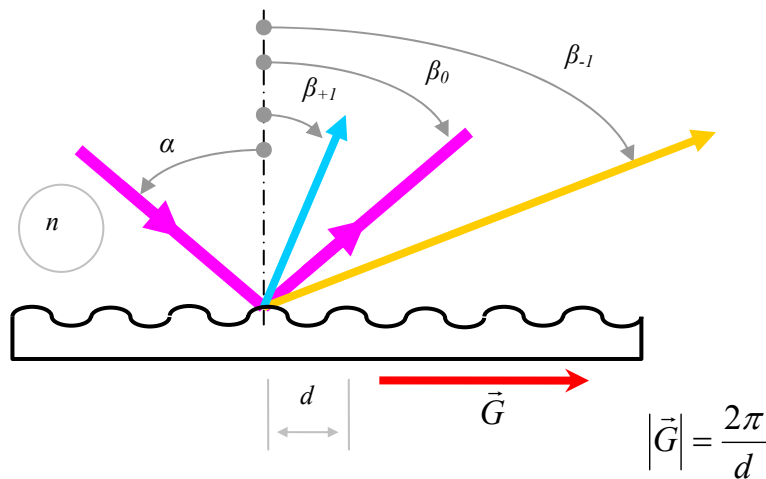


Fig. I.14: Schéma illustrant la contribution de la corrugation de surface sur le couplage lumière – plasmons de surface.

Alors, le couplage entre les plasmons de surface et l'ordre de diffraction m aura lieu si :

$$n \sin \theta + m \frac{\lambda_0}{d} = \pm \sqrt{\frac{\epsilon_r \cdot n^2}{\epsilon_r + n^2} + \Delta n_{eff}} \quad I.46$$

Où Δn_{eff} dénote une perturbation de l'indice effectif des PS due à la présence du réseau, [22].

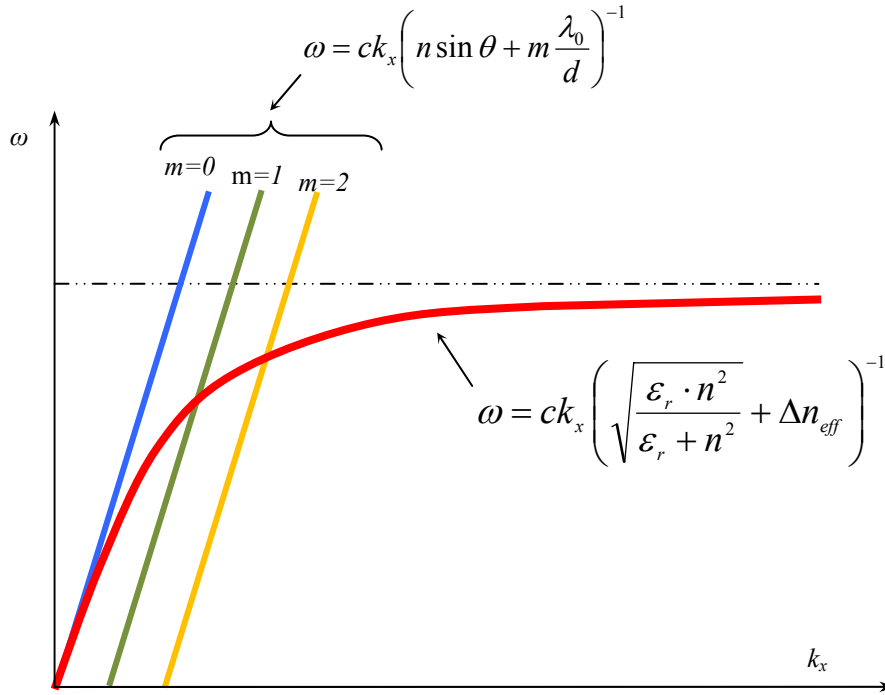


Fig. I.15: Principe du couplage optique par un réseau de diffraction.

Ainsi, l'angle de SPR d'un réseau métallisé vaut :

$$\theta_{spr} \approx \arcsin \left(n^{-1} \cdot \left[\sqrt{\frac{\epsilon_r \cdot n^2}{\epsilon_r + n^2} \pm m \frac{\lambda_0}{d}} \right] \right) \Bigg|_{\substack{n=1(\text{air}) \\ m=\pm 1}} = \arcsin \left(\sqrt{\frac{\epsilon_r}{\epsilon_r + 1} \pm \frac{\lambda_0}{d}} \right) \quad I.47$$

Étant donné que pour la plupart des métaux, dans le visible et infrarouge $\epsilon_r \gg 1$, $\sqrt{\epsilon_r / (\epsilon_r + 1)} \rightarrow 1$. La période du réseau de couplage optique vaut, alors :

$$d_{SPR} = \lambda_0 \left(\sqrt{\frac{\epsilon_r}{\epsilon_r + 1} \pm \sin \theta} \right)^{-1} \approx \frac{\lambda_0}{1 \pm \sin \theta} \quad I.48$$

c. Couplage directionnel dans un guide d'onde

Un plasmon de surface peut évidemment être excité par un autre plasmon de surface, et il est généralement plus utile et plus facile de l'exciter par un mode guidé. Cette dernière solution présente un intérêt dans la réalisation de polariseurs. Le coupleur directionnel permet le transfert d'énergie entre deux structures lorsqu'elles sont suffisamment proches l'une de l'autre. Les structures associées sont une interface entre un métal et un diélectrique et un guide d'onde avec un substrat métallique [23]

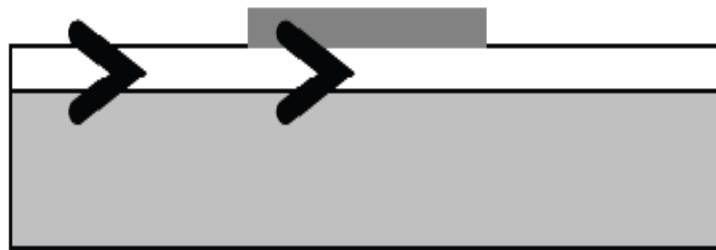


Fig. I.16 : Couplage d'un mode guidé avec un PS à la surface du métal déposé sur le guide.

Comme nous l'avons vu, deux modes doivent avoir le même indice effectif pour que leur couplage soit efficace.

d. Pointe champ proche

Une méthode inspirée de la technique de frustration décrite par Otto est exploitée pour exciter des ondes PS à l'aide de sondes pour microscopies en champ proche optique (SNOM ou PSTM). Cette technique utilise deux types de sonde pour provoquer le couplage recherché. Soit il est possible d'utiliser une pointe métallique d'une sonde a-SNOM ('apertureless SNOM') et dans ce cas la génération des ondes évanescentes se fera par diffraction du faisceau de lumière incidente au voisinage de la pointe de taille nanométrique. Soit par la diffraction de la lumière au travers une nano-ouverture sub-longueur d'onde en extrémité d'une sonde SNOM « à ouverture » ceci génèrera des ondes évanescentes en extrémité de la sonde. [24-25]

Ainsi, si l'on approche ces sources au voisinage ultime de l'interface à investiguer (d'une distance de l'ordre de quelques dizaines de nm ou moins), un PS est susceptible d'être couplé, si là encore, la condition de résonance est satisfaite (fréquence de la lumière adapté...).

6. Applications du principe SPR

Les applications fondées sur le principe de résonance de plasmons de surface SPR sont nombreuses. Elles varient du diagnostic et la détection des molécules aux études des propriétés de surface des couches ultrafines, de la modification des surfaces et les interactions biomoléculaires aux surfaces. SPR peut être utilisée aussi en mode imagerie où l'épaisseur et les propriétés diélectriques des couches adsorbées peuvent être résolues dans l'espace ; sans oublier les applications de la SPR en photonique. Citer tous les travaux faits jusqu'à nos jours s'avère une tâche difficile. Plusieurs revues de travaux fondamentaux ainsi qu'expérimentaux et nombreux articles montrent les applications possibles de la SPR. [26-27] Dans ce qui suit, on présentera une vue d'ensemble non exhaustive des applications majeures et des travaux prometteurs du principe, alors que les références citées donnent plus d'informations. Ainsi, les applications de la SPR peuvent être classées suivant trois axes de recherche.

6.1 SPR pour la microscopie et l'investigation des interfaces et surfaces

Le confinement du champ électromagnétique du PS aux interfaces lui donne une très haute sensibilité aux conditions de ces surfaces. Cette sensibilité est utilisée pour étudier les adsorbants, investiguer la rugosité et les défauts, étudier le comportement des PS lié et mesurer les propriétés optiques des couches minces.

La microscopie à SPR a été développée pour devenir un instrument d'imagerie des architectures à 2-D de ces couches (e.g. imagerie des cellules). Elle est utilisée pour calculer les distances de contact entre une particule - ou cellule - et le substrat par un système de balayage angulaire classique. (Car les particules, cellules par exemple, interfèrent avec le champ évanescent des PS). Les images sont construites directement et en temps réel à partir des intensités de la SPR. Par exemple, des imageries ont été faites pour des particules différentes des couches de lipides [28], des films métalliques [29], cellules vivantes [30] et des sphères de latex [31].

Un point critique pour l'imagerie en microscopie SPR est la limite de résolution; ceci est lié à l'atténuation (ou l'évanescence) du PS. Il faut noter que la longueur de propagation du PS est liée à la largeur à mi-hauteur des courbes de résonance. Comme le montre l'équation I.30, cette longueur de propagation est décrite par $L = (2k_{xi})^{-1}$.

Les métaux comme l'argent ont des courbes pointues (petit k_{xi}) et pour cette raison, ils ont une grande longueur de propagation, donc inadéquat à la microscopie SPR. En outre, les métaux comme Au et Al ont des larges courbes de résonance, donc courte longueur de propagation ($\sim 2\mu\text{m}$ pour l'or à 543 nm), et donc convenables pour l'imagerie à grande résolution des particules et des cellules. [29,32,33]

Comme les PS ont des champs évanescents, ils ne peuvent pas être observés par des microscopes à champ lointain classiques sauf si les PS sont convertis en lumière par l'interaction avec des inhomogénéités de surface par exemple [1]. La structure microscopique des surfaces étant en générale inconnue, le signal optique mesuré par ces techniques de champ lointain est moyenné par rapport à l'ensemble des caractéristiques de la surface causées par des effets de diffraction; et donc il est possible de corrélater le comportement de la lumière diffractée avec la moyenne de la topographie de surface. C'est justement avec le développement des microscopies à champ proche que l'étude locale des plasmons est devenue possible. En particulier avec le SNOM (Scanning Near-field Optical Microscopy) [34] qui donne la possibilité de sonder le champ des PS directement sur la surface où ils se situent [35-36].

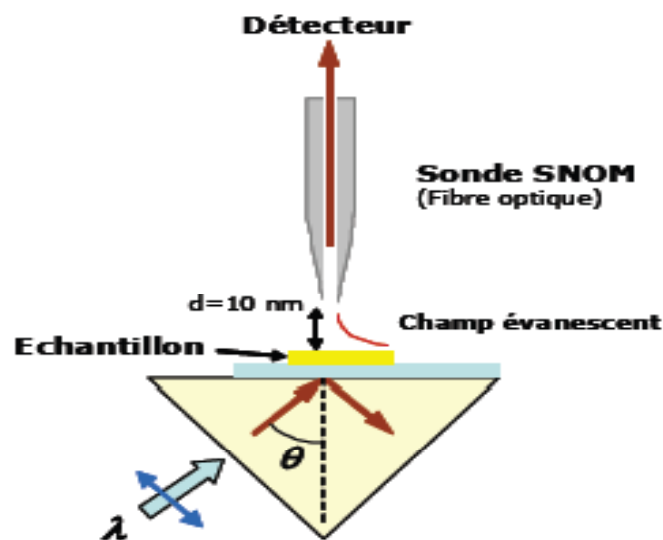


Fig. I.17: Principe du microscope à balayage à effet tunnel optique (PSTM). Un champ évanescents est créé par réflexion totale. Une pointe SNOM est approchée à la surface et frustre le champ évanescents afin de le détecter.

Le SNOM (fig. I.17) a permis la visualisation des phénomènes des PS tels que leur diffraction, les interférences, la rétrodiffusion, et la localisation, en corrélant le comportement des PS avec la structure de la surface.

6.2 SPR pour la photonique

La propagation des PS est contrôlée par l'utilisation des ensembles de micro-réseau, de matrice de nanoparticules alignées, des nanoparticules arrangées périodiquement ou des matrices aléatoires. Donc, les propriétés des PS - en particulier leur interaction avec la lumière – peuvent être adaptées, ce qui ouvre la voie à la photonique miniaturisée [37]. La nature deux dimensionnelles des PS confère une flexibilité considérable quant à l'ingénierie des circuits optiques intégrés en photonique et optoélectronique e.g. la communication optique, optique sub-longueur d'onde, stockage des données, génération de lumière avec des dispositifs de dimensions nanométriques [38].

Une tendance prometteuse est de combiner des capteurs à SPR avec des concepts d'optique intégrée. L'idée c'est d'utiliser des modes guidés comme source d'excitation des PS à l'interface métal/diélectrique [39] (Figure I.18).

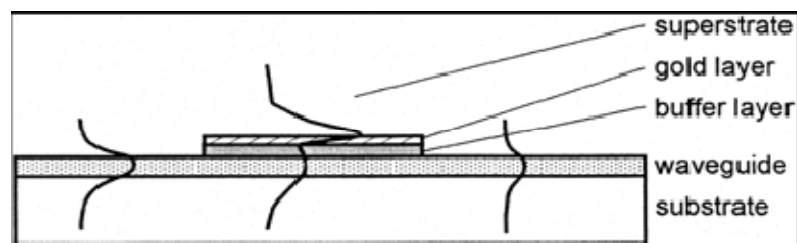


Fig. I.18: Illustration du changement de la distribution du champ d'un mode guide d'onde simple à un mode guide d'onde associée à un PS [39].

6.3 SPR pour la détection et les mesures biochimiques

Le phénomène SPR est utilisé pour la détection et la quantification des molécules d'un côté et les analyses biophysiques des interactions biomoléculaires ; et cela dans des domaines différents tels que le contrôle de l'environnement (détection des polluants chimiques et les contaminants comme les pesticides), la biotechnologie, l'alimentaire (détection des contaminants chimiques - antibiotiques - et des pathogènes alimentaires - bactéries), la sécurité (détection rapide d'émanations biologiques ou chimiques – e.g. toxines, bactéries, ...) et la médecine (détection des analytes comme les anticorps et les hormones).

La bio détection en SPR a commencé à être étudiée notamment par Liedberg et al [40]. Actuellement, les biocapteurs commercialisés couvrent une zone limitée du marché du contrôle biochimique. Ainsi, les biocapteurs fondés sur la SPR en particulier peuvent se montrer compétitifs par rapport aux autres techniques. Ils ont nombreux avantages tels que, le faible coût, la facilité d'utilisation, la sensibilité et les mesures en temps réel.

7. CONCLUSION

Dans ce premier chapitre nous avons décrit le phénomène de plasmons, leur condition de résonance, en particulier à l'interface entre deux milieux dont l'un est un métal parfait. Nous avons montré que ces plasmons sont des ondes de surface, solutions des équations de Maxwell, qui se propagent parallèlement à l'interface et dont l'amplitude du champ électromagnétique associé décroît exponentiellement en s'éloignant de l'interface. Ceci nous a amenés à définir des caractéristiques importantes, telle la profondeur de pénétration ou l'extension spatiale de ces ondes.

A partir de ces traitements théoriques, nous avons discuté le choix des métaux candidats aux applications développées au cours de cette thèse. Nous avons alors justifié notre choix qui s'est porté sur l'or et l'argent, dont le couplage plasmon de surface – lumière (dans le domaine visible-proche infrarouge) est convenable.

Nous avons alors déduit la relation de dispersion qui relie la fréquence d'apparition du plasmon avec les caractéristiques spatiales du champ électromagnétique. Cette relation de dispersion nous a montré que les PS générés à l'interface des films métalliques lisses ne peuvent se coupler spontanément avec une onde électromagnétique photonique. Cet aspect « non radiatif » des PS rend donc indispensable pour le couplage l'utilisation de techniques particulières, tels les « coupleurs ».

Nous avons alors discuté les conditions de couplage plasmon de surface – onde lumineuse polarisée p ; nous avons discuté les modes de couplages les plus usuels, en particulier le couplage par prisme (mode ATR).

Enfin, nous avons clôturé le chapitre par un tour d'horizon des applications impliquant les plasmons de surface, pour la microscopie et l'investigation des interfaces et surfaces, pour la photonique et en particulier pour la détection de molécules.

CHAPITRE II

les modes plasmons de surface couplés à travers un milieu diélectrique

Table des matières

1. Calcul de la Réflectivité dans la géométrie de Kretschmann	40
1.1 Expressions des champs électromagnétiques.....	40
1.2 Calcul des réflectivités aux interfaces.....	43
2. Etude de la réflectivité et mise en évidence des conditions d'existence d'un plasmon.....	45
2.1 Introduction.....	45
2.2 Analyse des influences des paramètres de construction sur la résonance plasmons de surface.....	47
2.2.1 Épaisseur de la couche métallique.....	47
2.2.2 Permittivité du milieu incident.....	49
2.2.3 Permittivité du milieu émergent.....	51
2.2.4 Nature du métal	52
2.2.5 Influence de la longueur d'onde.....	53
3. Conclusion.....	54

1. Calcul de la Réflectivité dans la géométrie de Kretschmann (structure à deux interfaces).

1.1 Expressions des champs électromagnétiques

Nous venons de démontrer que seuls les ondes de polarisation TM (P)(le champ magnétique incident est polarisé perpendiculairement au plan d'incidence, le champ électrique est contenu dans le plan d'incidence) seront capables de générer des ondes évanescentes capables de se coupler avec les plasmons de surface. Pour se faire, A.Otto puis E.Kretschmann et H.Raether proposeront la configuration décrite au chapitre I.

Ainsi si l'on considère comme illustré sur la figure II.1 un empilement de trois milieux, de permittivités respectives ϵ_p , ϵ_m , et ϵ_d . Celle du milieu p est choisie telle que sa partie réelle est positive.

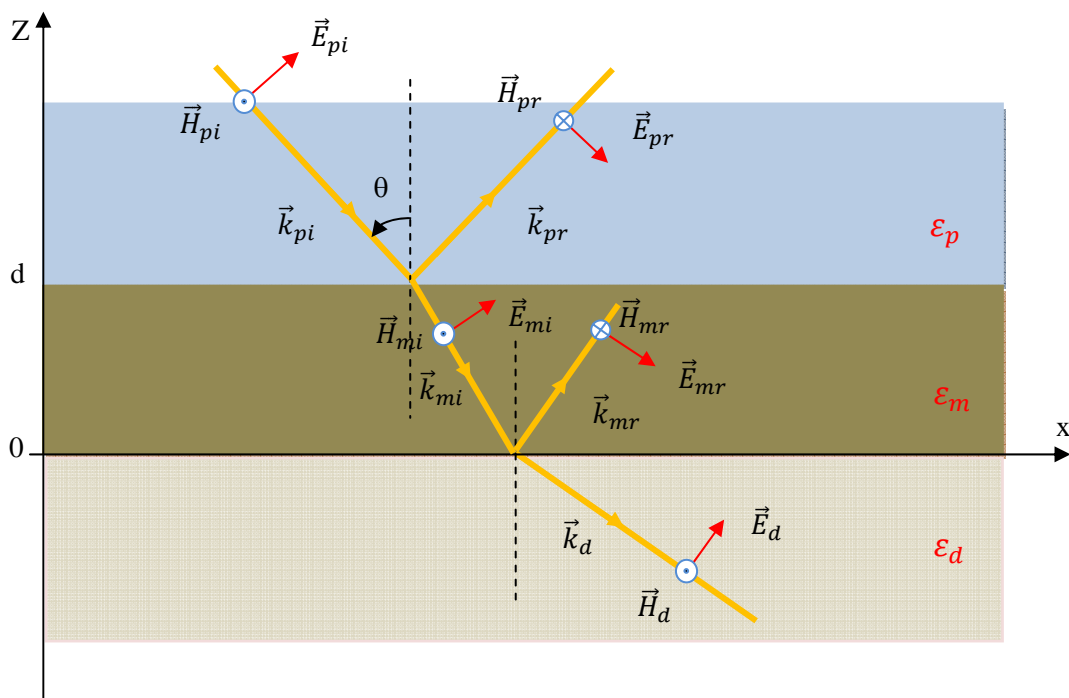


Figure. II.1 : Représentation conventionnelle de la réflexion et de la réfraction d'une onde plane TM(p) dans la géométrie de Kretschmann.

Nous considérons que l'onde électromagnétique incidente est monochromatique de pulsation ω , polarisé transverse magnétique, faisant un angle θ avec l'axe Z.

L'onde se propage, et subit une réflexion à l'interface $Z = d$, le reste pénètre dans le métal puis se réfléchit sur l'interface $Z = 0$, où une partie est transmise dans le milieu diélectrique (permittivité ϵ_d).

Ces ondes étant planes, nous avons :

$$\vec{k} = k_x \vec{i} + k_z \vec{k}$$

$$k_x = k_{xp} = k_{xm} = k_{xd} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_p} \sin \theta$$

$$k_{yp} = 0, k_{ym} = 0, k_{yd} = 0$$

$$k_{zp} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_p} \cos \theta$$

$$k_{zm} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_m} \cos \theta_m = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_m - \epsilon_p \sin^2 \theta}$$

$$k_{zd} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_d} \cos \theta_d = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_d - \epsilon_p \sin^2 \theta}$$

Nous allons écrire les expressions du champ électrique \vec{E} dans les trois milieux, en tenant compte des conditions de continuité aux interfaces, pour obtenir la condition d'existence d'un plasmon à l'interface métal-diélectrique dans ce modèle à trois couches.

✚ **Dans le milieu P ($Z \geq d$) :**

$$\vec{E}_p = \vec{E}_i + \vec{E}_r$$

$$\vec{E}_p = \left(\vec{E}_{pi} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} + \vec{E}_{pr} e^{i\vec{k}' \cdot \vec{r}'} \right) e^{-i\omega t} \quad II.1$$

Avec :

$$\vec{k} \cdot \vec{r} = k_x x - k_{zp} (z - d)$$

$$\vec{k}' \cdot \vec{r}' = k_x x + k_{zp} (z - d)$$

Donc :

$$\vec{E}_p = \left(\vec{E}_{pi} e^{i(k_x x - k_{zp}(z-d))} + \vec{E}_{pr} e^{i(k_x x + k_{zp}(z-d))} \right) e^{-i\omega t} \quad II.2$$

Avec :

$$\vec{E}_{pi} = E_{px}(1, 0, k_x/k_{zp})$$

$$\vec{E}_{pr} = r_p E_{px}(-1, 0, k_x/k_{zp})$$

Donc :

$$\vec{E}_p = \left[E_{px} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ k_x/k_{zp} \end{pmatrix} e^{i(k_x x - k_{zp}(z-d))} + r_p E_{px} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ k_x/k_{zp} \end{pmatrix} e^{i(k_x x + k_{zp}(z-d))} \right] e^{-i\omega t} \quad II.3$$

✚ Dans le milieu métallique $0 \leq Z \leq d$:

$$\vec{E}_m = (\vec{E}_{mi} e^{i(k_x x - k_{zm} z)} + \vec{E}_{mr} e^{i(k_x x + k_{zm} z)}) e^{-i\omega t} \quad II.4$$

Avec :

$$\vec{E}_{mi} = E_{mx}(1, 0, k_x/k_{zm})$$

$$\vec{E}_{mr} = r_m E_{mx}(-1, 0, k_x/k_{zm})$$

Donc :

$$\vec{E}_m = \left[E_{mx} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ k_x/k_{zm} \end{pmatrix} e^{i(k_x x - k_{zm} z)} + r_m E_{mx} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ k_x/k_{zm} \end{pmatrix} e^{i(k_x x + k_{zm} z)} \right] e^{-i\omega t} \quad II.5$$

✚ Dans le diélectrique $Z \leq 0$:

$$\vec{E}_d = \vec{E}_d e^{i(k_x x - k_{zd} z)} e^{-i\omega t} \quad II.6$$

Avec :

$$\vec{E}_d = E_{dx}(1, 0, k_x/k_{zd})$$

Donc :

$$\vec{E}_d = E_{dx} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ k_x/k_{zd} \end{pmatrix} e^{i(k_x x - k_{zd} z)} e^{-i\omega t} \quad II.7$$

1.2 Calcul des réflectivités aux interfaces

Ecrivons maintenant les conditions de continuité de la composante tangentielle de \vec{E} et de la composante normale de \vec{D} ($\vec{D} = \varepsilon\vec{E}$) respectivement aux interfaces milieu P-métal et métal-diélectrique, autrement dit pour $Z = d$ et $Z = 0$.

↳ Pour $Z = d$:

$$\vec{E}_p = \vec{E}_m$$

et $\varepsilon_p \vec{E}_p = \varepsilon_m \vec{E}_m$

▪ $\vec{E}_p = \vec{E}_m :$

$$(E_{px} e^{i k_x x} - r_p E_{px} e^{i k_x x}) e^{-i \omega t} = (E_{mx} e^{i(k_x x - k_{zm} d)} - r_m E_{mx} e^{i(k_x x + k_{zm} d)}) e^{-i \omega t}$$

$$E_{px} - r_p E_{px} = E_{mx} e^{-k_{zm} d} - r_m E_{mx} e^{i k_{zm} d}$$

$$E_{px} (1 - r_p) = E_{mx} (e^{-k_{zm} d} - r_m e^{i k_{zm} d}) \quad II.8$$

▪ $\varepsilon_p \vec{E}_p = \varepsilon_m \vec{E}_m :$

$$\varepsilon_p \left(E_{px} \frac{k_x}{k_{zp}} e^{i k_x x} + r_p E_{px} \frac{k_x}{k_{zp}} e^{i k_x x} \right) e^{-i \omega t} = \varepsilon_m \left(E_{mx} \frac{k_x}{k_{zm}} e^{i(k_x x - k_{zm} d)} + r_m E_{mx} \frac{k_x}{k_{zm}} e^{i(k_x x + k_{zm} d)} \right) e^{-i \omega t}$$

$$\varepsilon_p \left(\frac{E_{px}}{k_{zp}} + r_p \frac{E_{px}}{k_{zp}} \right) = \varepsilon_m \left(\frac{E_{mx}}{k_{zm}} e^{-i k_{zm} d} + r_m \frac{E_{mx}}{k_{zm}} e^{i k_{zm} d} \right)$$

$$\varepsilon_p E_{px} k_{zm} (1 + r_p) = \varepsilon_m E_{mx} k_{zp} (e^{-i k_{zm} d} + r_m e^{i k_{zm} d}) \quad II.9$$

↳ Pour $Z = 0$:

$$\vec{E}_m = \vec{E}_d$$

et $\varepsilon_m \vec{E}_m = \varepsilon_d \vec{E}_d$

▪ $\vec{E}_m = \vec{E}_d :$

$$(E_{mx} e^{i k_x x} - r_m E_{mx} e^{i k_x x}) e^{-i \omega t} = E_{dx} e^{i k_x x} e^{-i \omega t}$$

$$E_{mx} (1 - r_m) = E_{dx} \quad II.10$$

▪ $\varepsilon_m \vec{E}_m = \varepsilon_d \vec{E}_d :$

$$\varepsilon_m \left(E_{mx} \frac{k_x}{k_{zm}} e^{i k_x x} - r_m E_{mx} \frac{k_x}{k_{zm}} e^{i k_x x} \right) e^{-i \omega t} = \varepsilon_d E_{dx} \frac{k_x}{k_{zd}} e^{i k_x x} e^{-i \omega t}$$

$$\varepsilon_m \left(\frac{E_{mx}}{k_{zm}} + r_m \frac{E_{mx}}{k_{zm}} \right) = \frac{\varepsilon_d E_{dx}}{k_{zd}}$$

$$\varepsilon_m E_{mx} k_{zd} (1 + r_m) = \varepsilon_d E_{dx} k_{zm} \quad II.11$$

A partir des équations II.8, II.9, II.10, II.11 on va calculer les coefficients de réflexion respectivement pour les deux interfaces $Z = d$ et $Z = 0$.

$$\begin{aligned} \frac{II.8}{II.9} &\Rightarrow \frac{E_{px}(1 - r_p)}{\varepsilon_p E_{px} k_{zm} (1 + r_p)} = \frac{E_{mx}(e^{-k_{zm}d} - r_m e^{ik_{zm}d})}{\varepsilon_m E_{mx} k_{zp} (e^{-ik_{zm}d} + r_m e^{ik_{zm}d})} \\ &\Rightarrow \frac{(1 - r_p)}{\varepsilon_p k_{zm} (1 + r_p)} = \frac{(e^{-k_{zm}d} - r_m e^{ik_{zm}d})}{\varepsilon_m k_{zp} (e^{-ik_{zm}d} + r_m e^{ik_{zm}d})} \\ &\Rightarrow \frac{(1 - r_p)}{\varepsilon_p k_{zm} (1 + r_p)} = \frac{(1 - r_m e^{2ik_{zm}d})}{\varepsilon_m k_{zp} (1 + r_m e^{2ik_{zm}d})} \end{aligned}$$

On pose : $A = r_m e^{2ik_{zm}d}$

$$\text{Donc : } \frac{(1 - r_p)}{\varepsilon_p k_{zm} (1 + r_p)} = \frac{(1 - A)}{\varepsilon_m k_{zp} (1 + A)}$$

$$(1 - r_p) \varepsilon_m k_{zp} (1 + A) = \varepsilon_p k_{zm} (1 + r_p) (1 - A)$$

$$r_p [\varepsilon_m k_{zp} (1 + A) + \varepsilon_p k_{zm} (1 - A)] = \varepsilon_m k_{zp} (1 + A) - \varepsilon_p k_{zm} (1 - A)$$

$$r_p = \frac{\varepsilon_m k_{zp} (1 + A) - \varepsilon_p k_{zm} (1 - A)}{\varepsilon_m k_{zp} (1 + A) + \varepsilon_p k_{zm} (1 - A)} \quad II.12$$

$$\frac{II.10}{II.11} \Rightarrow \frac{E_{mx}(1 - r_m)}{\varepsilon_m E_{mx} k_{zd} (1 + r_m)} = \frac{E_{dx}}{\varepsilon_d E_{dx} k_{zm}}$$

$$\Rightarrow \frac{(1 - r_m)}{\varepsilon_m k_{zd} (1 + r_m)} = \frac{1}{\varepsilon_d k_{zm}}$$

$$\Rightarrow (1 - r_m) \varepsilon_d k_{zm} = \varepsilon_m k_{zd} (1 + r_m)$$

$$\Rightarrow r_m (\varepsilon_d k_{zm} + \varepsilon_m k_{zd}) = \varepsilon_d k_{zm} - \varepsilon_m k_{zd}$$

$$r_m = \frac{\varepsilon_d k_{zm} - \varepsilon_m k_{zd}}{\varepsilon_d k_{zm} + \varepsilon_m k_{zd}} \quad II.13$$

On pourra alors calculer la réflectivité du système définie par :

$$R = |r_p|^2 \quad II.14$$

2. Etude de la réflectivité et mise en évidence des conditions d'existence d'un plasmon

2.1 Introduction

Nous avons décrit au chapitre I les différentes méthodes de couplage plasmon de surface – onde lumineuse, il reste à préciser que la structure la plus simple permettant l'excitation des plasmons de surface par une onde lumineuse est le dispositif ATR (Attenuated Total Reflection) [1]. C'est sur ce dispositif que nous avons basé notre étude.

Le milieu incident de cette structure est considéré comme semi-infini et possède une permittivité $\varepsilon_p = 2.1$, correspondant à celle de la silice. Le milieu émergent, semi-infini également, est constitué par l'air ambiant, de permittivité $\varepsilon_d = 1$. Nous avons choisi l'argent (Ag) pour réaliser la couche mince de métal. Sa permittivité complexe vaut $\varepsilon_m = \varepsilon_r + i\varepsilon_i = -5.17 + i 0.23$. Cette structure remplit les conditions d'une bonne résonance de plasmons de surface :

$$\begin{cases} |\varepsilon_r| \gg \varepsilon_i \\ |\varepsilon_r| > \varepsilon_d \\ \varepsilon_p > \varepsilon_d \end{cases}$$

La figure III.1 compare la simulation du spectre de réflexion du dispositif ATR avec celle du même système mais auquel on aurait enlevé la fine couche métallique.

Pour le système sans métal , c'est-à-dire constitué d'un milieu incident, ε_p , et du milieu émergent, ε_d , tel que $\varepsilon_p > \varepsilon_d$, le spectre de réflexion, représenté par la courbe bleu, présente deux régions. La première correspond à l'incidences inférieures à l'angle critique du système, $\theta_c = \arcsin\left(\sqrt{\frac{\varepsilon_d}{\varepsilon_p}}\right) = 43.8^\circ$, et présente une faible réflectivité . La seconde région du spectre présente une réflectivité unitaire et correspond aux incidences supérieures à l'angle θ_c . Dans ce domaine angulaire, il ya réflexion totale.

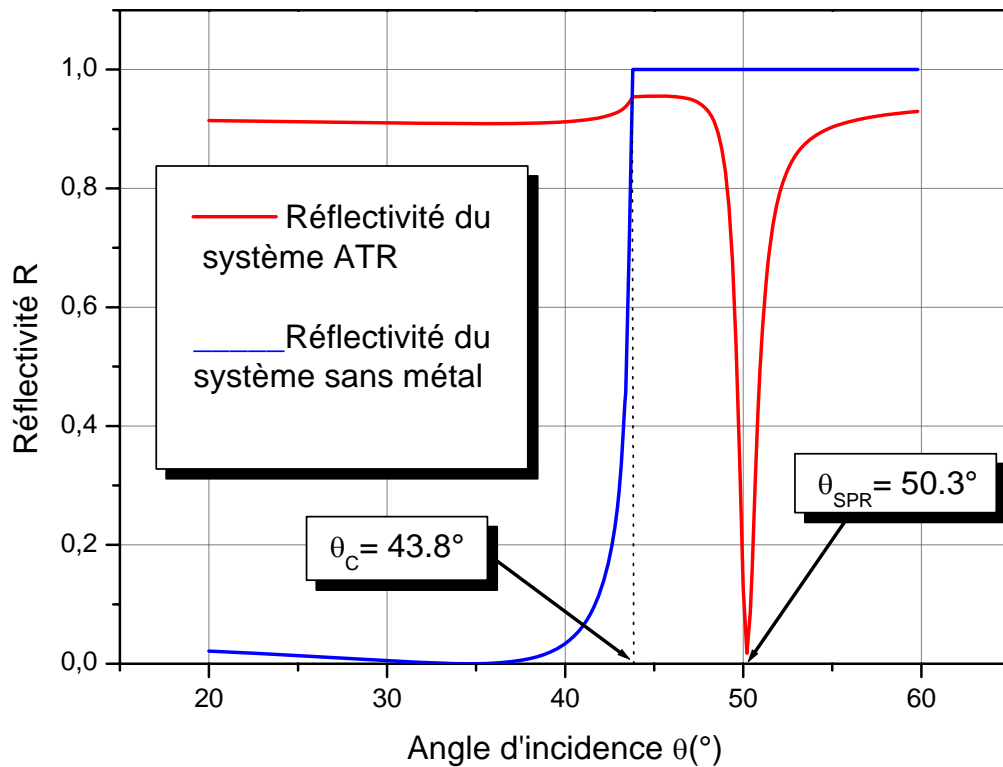


Fig. II.2: simulation numérique de l'évolution de la réflectivité du dispositif ATR (courbe rouge) et de la réflectivité d'un système dépourvu de la couche métallique (courbe bleue). Les paramètres de simulation sont : $\varepsilon_p = 2.1$, $\varepsilon_d = 1$, $\lambda = 413.7$ nm et, dans le cas du système ATR :
 $\varepsilon_m = -5.17 + i 0.23$, $d = 60$ nm.

L'ajout d'une mince couche d'argent à ce système, entre les milieux incident et émergent modifie considérablement le phénomène de réflexion, ce que montre l'allure du spectre de réflexion.

La courbe rouge de la figure II.2 présente l'évolution de la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence de la structure ATR. La première partie du spectre présente une réflectivité nettement supérieure à celle de la structure sans métal. Dans la seconde partie de la courbe, l'introduction d'un métal provoque l'apparition d'un pic de résonance et d'un maximum local précédant cette résonance. Dans la seconde partie du spectre, correspondant aux angles supérieurs à l'angle critique θ_c , hors résonance, la réflectivité n'est pas unitaire comme on pourrait l'attendre, sauf lorsqu'on approche de l'incidence rasante. Ce phénomène est dû à l'absorption d'une fraction du faisceau incident par la couche de métal.

La résonance de plasmons de surface produit un pic d'absorption dans le spectre de réflexion du dispositif ATR. A la résonance, les plasmons de surface absorbent l'énergie électromagnétique de l'onde incidente. Hors résonance, la structure réfléchit la lumière incidente.

2.2 Analyse des influences des paramètres de construction sur la résonance plasmons de surface

Le spectre de réflexion d'un dispositif ATR présente une bande d'absorption pour une incidence donnée et pour une longueur d'onde donnée, l'onde incidente étant de polarisation transverse magnétique. L'étude de l'influence des différents paramètres de construction de la structure ATR sur la réponse de celui-ci est essentielle pour la maîtrise de ce composant, donc pour sa construction ultérieure. Nous pourrions ainsi déterminer les valeurs des paramètres de construction fournissant le pic d'absorption le plus intense et le plus sélectif (de manière à lever toute ambiguïté d langage, nous dirons que l'amplitude du pic de résonance, ou d'absorption, est unitaire lorsque sa réflectivité est nulle).

2.2.1 Épaisseur de la couche métallique

L'étude de la résonance de plasmons de surface au moyen du formalisme matriciel des équations de Fresnel permet de définir une épaisseur optimale de la couche métallique pour laquelle la réflectivité est nulle [41][42]. Dans le cas de l'architecture ATR, l'épaisseur optimale, d_{opt} , est donnée par la relation :

$$d_{opt} = \frac{\lambda_0}{4\pi} \frac{(|\varepsilon_r| - 1)^{1/2}}{|\varepsilon_r|} \ln \left[\frac{8\varepsilon_r^2 \varepsilon_d a}{\varepsilon_i (|\varepsilon_r| + 1)(\varepsilon_d + a^2)} \right] \quad II.15$$

Où :

- ☞ λ_0 est la longueur d'onde de la radiation lumineuse dans l'air.
- ☞ ε_r et ε_i sont respectivement les composantes réelle et imaginaire de la permittivité du métal.
- ☞ $a = [|\varepsilon_r|(\varepsilon_d - 1)]$
- ☞ ε_d est la permittivité diélectrique du milieu émergent.

Cette épaisseur optimale est l'épaisseur que le métal doit posséder pour optimiser le couplage entre l'onde incidente et les plasmons de surface de l'interface métal / diélectrique.

L'influence de l'épaisseur d de la couche métallique sur le comportement du spectre de réflexion du système II.1 est résumé à la figure II.3. Il apparaît ainsi qu'un écart par rapport à l'épaisseur optimale, d_{opt} , conduit à un déplacement du pic de résonance, à une modification de sa largeur, ainsi qu'à une variation de son amplitude. Plus précisément, une épaisseur supérieure à la valeur optimale induit une résonance plus étroite à une incidence plus faible. Une épaisseur inférieure à l'épaisseur optimale entraîne, quant à elle, une résonance moins angulairement sélective à une incidence plus élevée. Dans les deux cas, l'amplitude du pic d'absorption diminue.

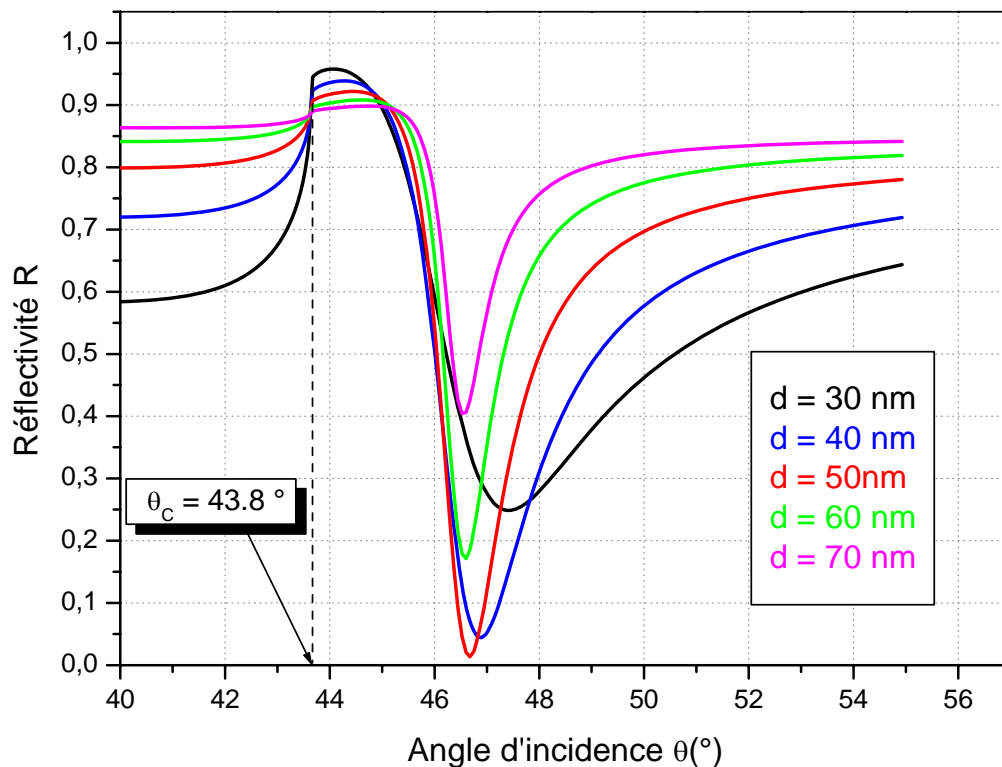


Fig. II.3: Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure ATR de la Fig. I.1 pour différentes épaisseurs de la couche d'or. Les paramètres de simulation sont : $\varepsilon_p = 2.1$, $\varepsilon_d = 1$, $\varepsilon_m = -10.66 + i1.37$, $\lambda = 617.5$ nm. L'épaisseur optimale du système considéré vaut $d = 50$ nm. Pour cette épaisseur, le pic de résonance possède une amplitude maximale.

2.2.2 Permittivité du milieu incident

Une augmentation de la permittivité diélectrique, ϵ_p , du milieu incident, conduit à un déplacement du pic de résonance vers un angle d'incidence, θ , plus petit, et inversement sans modification significative de son amplitude. Notons également qu'une augmentation de ϵ_p induit un déplacement de l'angle critique θ_c vers les incidences plus faibles. Figure II.4

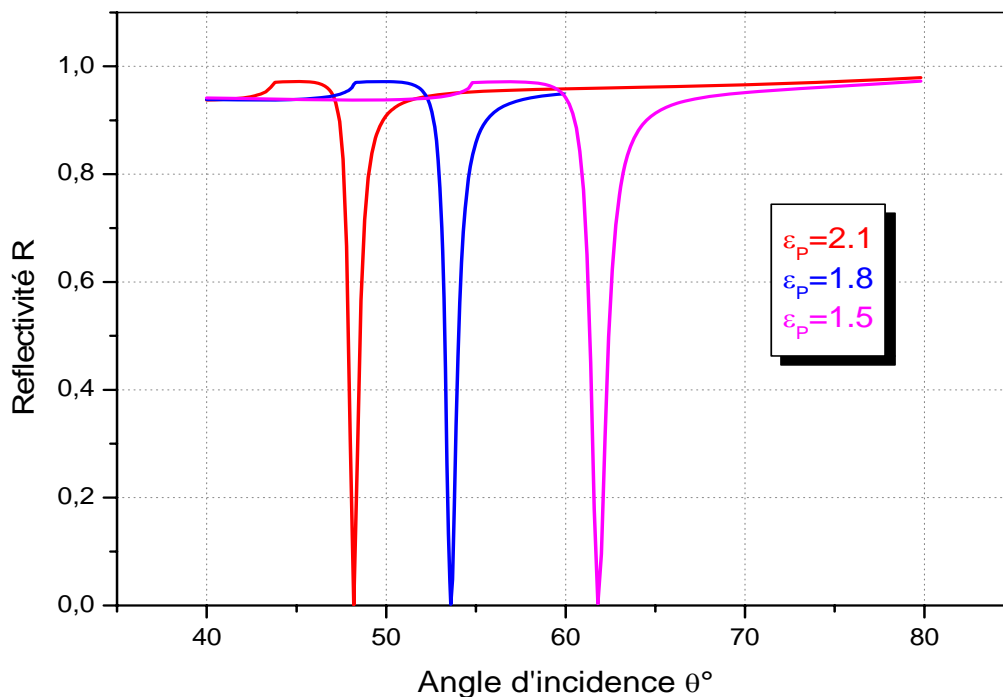


Fig. II.4: Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure ATR de la Fig. I.1 en fonction de la permittivité du milieu incident. Les paramètres de simulation sont :

$$\epsilon_d = 1, \quad \epsilon_{Ag} = -7.06 + i0.21, \quad \lambda = 448\text{nm}.$$

Ce comportement peut aisément s'expliquer. Au chapitre I, nous avons vu que la résonance de plasmons de surface a lieu lorsque les composantes selon x des vecteurs d'ondes des plasmons et de la lumière incidente sont en accord. La composante selon x du vecteur d'onde des plasmons, pour une interface déterminée du métal, est donnée par :

$$k_{x,j}^p = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_j \epsilon_m}{\epsilon_j + \epsilon_m} \right)^{1/2} \tag{II.16}$$

Où j indique le milieu constituant l'interface avec le métal. Dans le cas qui nous occupe, nous savons que les plasmons de surface sont générés à la seconde interface métal/diélectrique.

$$k_{x,d}^p = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\varepsilon_d \varepsilon_m}{\varepsilon_d + \varepsilon_m} \right)^{1/2} \quad II.17$$

Cette relation met en évidence l'indépendance de la relation de dispersion des plasmons de surface avec la permittivité diélectrique du milieu incident.

Il n'en va pas de même pour la composante selon l'axe x du vecteur d'onde de la radiation incidente, exprimée par :

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_p} \sin\theta \quad II.18$$

Ainsi, lorsque la permittivité incidente est modifiée, k_x^p ne variant pas, il faut que k_x reste inchangé pour garder la résonance. En définitive, seul l'angle d'incidence ou la longueur d'onde peuvent varier de manière à ramener la résonance. Par conséquent, la résonance survient sous une incidence différente. Une augmentation de la permittivité du milieu incident conduit à un déplacement du pic vers une incidence plus petite et inversement. Notons également qu'une augmentation de ε_p induit un déplacement de l'angle critique vers les incidences plus faibles.

2.2.3 Permittivité du milieu émergent

Intéressons-nous à présent, à l'effet qu'apporte une variation de la permittivité diélectrique du milieu émergent, ϵ_d , sur la réponse du système ATR. Les simulations numériques montrent qu'une augmentation de ϵ_d déplace l'angle de résonance, θ , vers les grandes incidences. Fig. II.5.

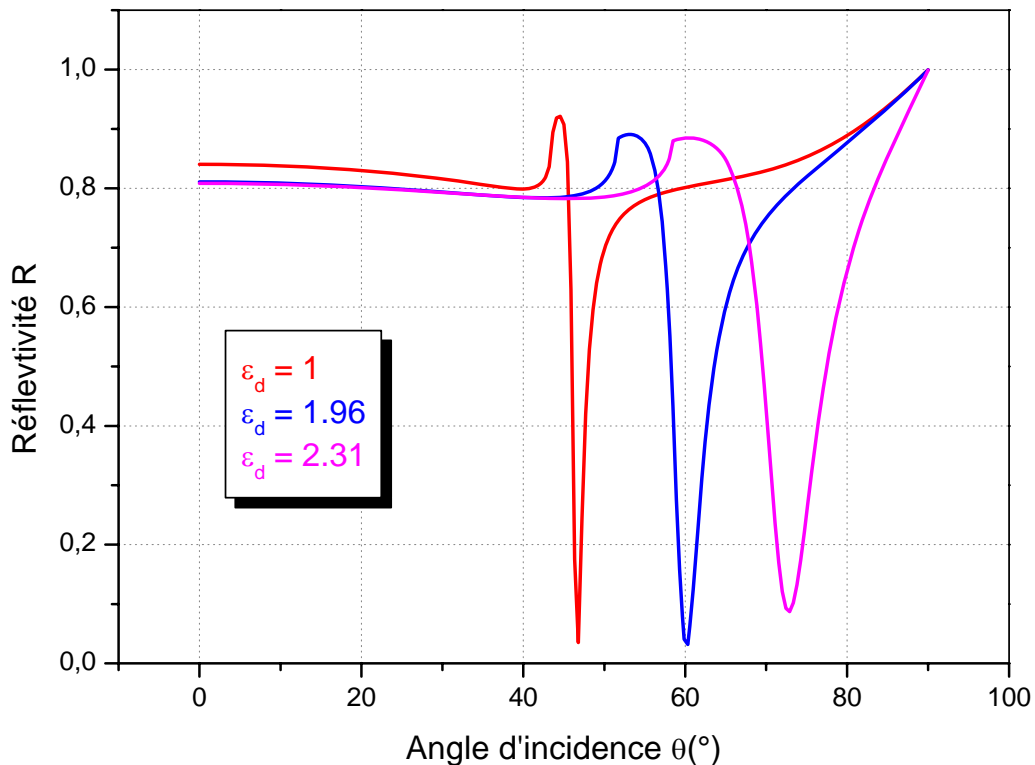


Fig. II.5: simulations numériques de l'évolution de la sélectivité angulaire du dispositif ATR pour différentes valeurs de la permittivité du milieu émergent. La permittivité du milieu incident est $\epsilon_p = 3.19$ (LaSNFN21), la longueur d'onde vaut 617.5nm et le métal est l'or $\epsilon_{Au} = -10.66 + i1.37$. Les différentes valeurs de la permittivité du milieu émergent utilisées correspondent à : l'air ($\epsilon_d = 1$), au quartz ($\epsilon_d = 1.96$), et au verre BK7 ($\epsilon_d = 2.31$). $d = 50\text{nm}$.

Afin d'expliquer ce comportement, il faut à nouveau considérer les relations de dispersion des plasmons et de la lumière données par les équations II.17 et II.18, respectivement. L'augmentation de la permittivité du milieu émergent entraîne une augmentation de la composante x du vecteur d'onde des plasmons de surface. En effet, si ϵ_d augmente, le terme entre parenthèses de l'équation II.17 augmente et, par conséquent, la valeur de $k_{x,d}^p$ également.

Cette variation du vecteur d'onde des plasmons nécessite un nouvel accord avec le vecteur d'onde de la lumière incidente afin d'obtenir la résonance. Ainsi, puisqu'à la

résonance $k_x^{inc} = k_x^p$, la projection selon l'axe x du vecteur d'onde de la radiation incidente doit être augmentée, compte tenu de la relation II.18 et des remarques formulées au paragraphe précédent concernant la variation des paramètres de cette équation, ω et ε_p restant constant, l'angle de résonance doit se déplacer vers les grandes incidences. Une augmentation de la permittivité du milieu émergent induit une résonance pour une incidence plus élevée. Notons également qu'une augmentation de la permittivité diélectrique, ε_d , conduit à une augmentation de la valeur de l'angle critique.

2.2.4 Nature du métal

Analysons l'effet d'une variation de la permittivité ε_m sur la position et la forme de la résonance. Pour cette étude, nous utiliserons les valeurs des permittivités complexes des métaux les plus couramment utilisés pour la réalisation de systèmes à résonance de plasmons de surface. Il s'agit de :

$$\Rightarrow \text{L'or : } \varepsilon_{Au} = -10.66 + i1.37$$

$$\Rightarrow \text{L'argent : } \varepsilon_{Ag} = -17.24 + i0.5$$

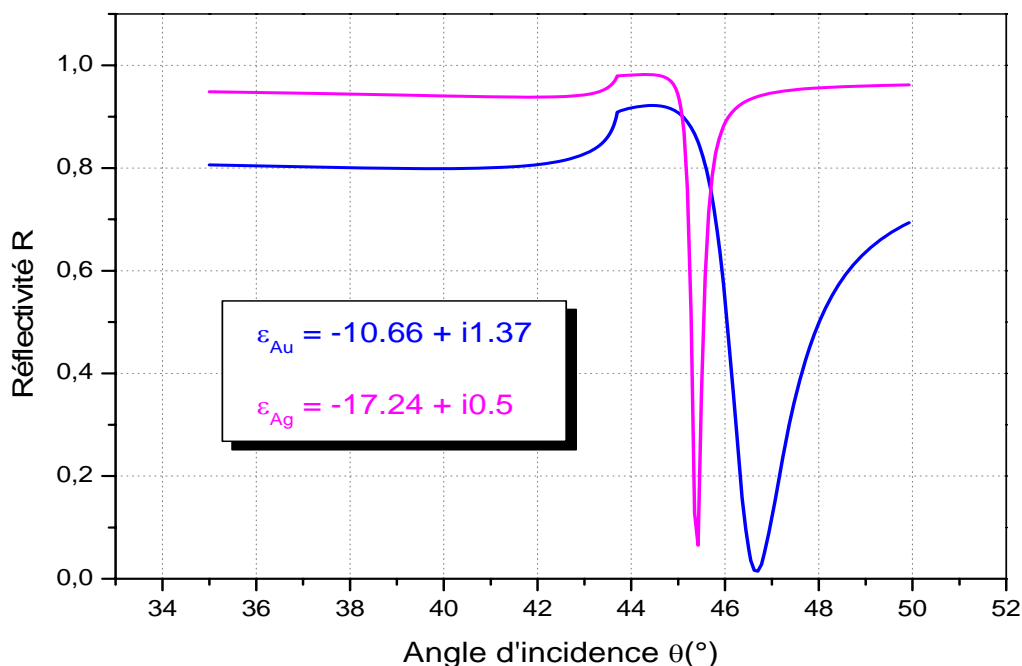


Fig. II.6: simulations numériques des réponses d'un dispositif ATR dont la couche métallique est successivement de l'or, et de l'argent. Les permittivités incidente et émergente sont $\varepsilon_p = 2.1$ et $\varepsilon_d = 1$. la longueur d'onde vaut 617.5nm.

La permittivité des métaux employés étant complexe, nous étudierons son influence par l'intermédiaire de ses parties réelle, ε_r , et imaginaire, ε_i . Ainsi, une

variation de la partie réelle de la permittivité complexe du métal influence la position du pic de résonance (Fig. II.6). Une augmentation de $|\varepsilon_r|$ déplace le pic de résonance vers une position angulaire plus petite. La Fig. II.6 montre également que l'évolution de la valeur de ε_r affecte la largeur du pic de résonance. Lorsque $|\varepsilon_r|$ devient important par rapport à ε_i , la condition $|\varepsilon_r| \gg \varepsilon_i$, nécessaire à une bonne résonance de plasmons de surface, est d'autant mieux vérifiée.

2.2.5 Influence de la longueur d'onde

Après l'épaisseur du métal, la permittivité diélectrique des milieux incident et émergent, la nature du métal, le dernier paramètre du dispositif ATR pouvant influencer la résonance est la longueur d'onde du faisceau incident.

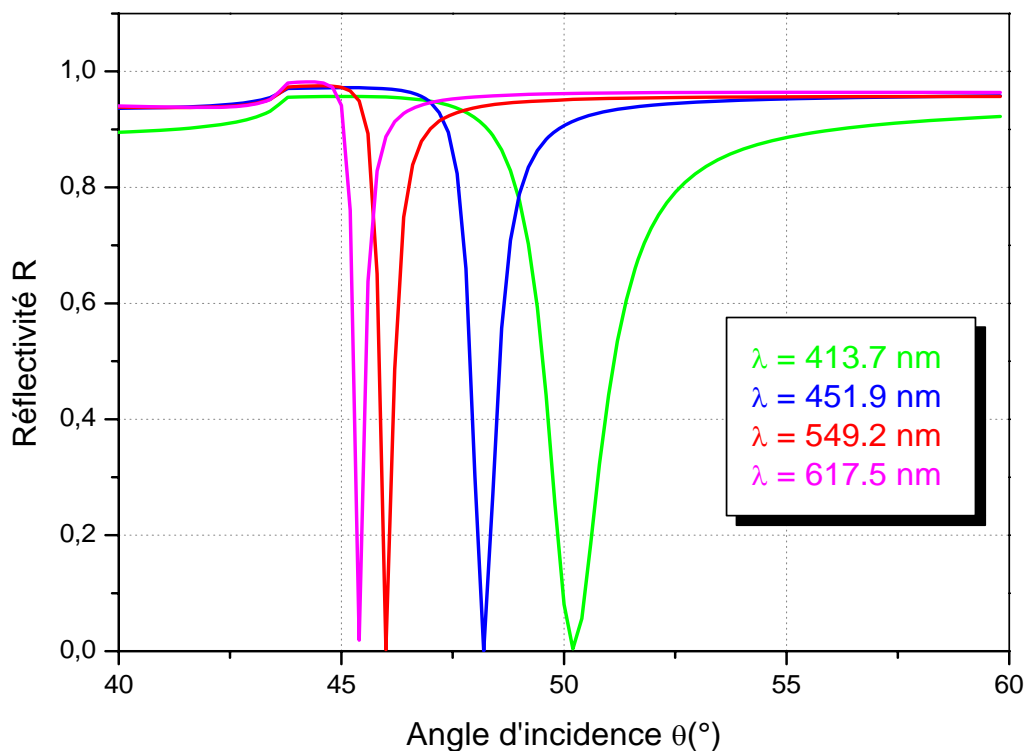


Fig. II.7: Simulations numériques de l'évolution de la sélectivité angulaire du dispositif ATR pour différentes valeurs de la longueur d'onde λ . Les permittivités incidente et émergente sont $\varepsilon_p = 2.1$ et $\varepsilon_d = 1$.

Les simulations numériques montrent qu'une augmentation de λ déplace l'angle de résonance, θ , vers les petites incidences. On constate également que la largeur du pic de résonance diminue. Fig. II.7.

3. conclusion

L'intérêt dans l'étude de la structure de Kretschmann est de déterminer l'épaisseur du matériau utilisé fiable à la mise en évidence de la résonance plasmonique. Dans ce qui suit nous suggérons un autre modèle améliorant la précédente géométrie pour décrire les propriétés des modes plasmoniques qui sont contrôlés de plus sur les propriétés optiques des matériaux et un milieu diélectrique intermédiaire. Nous exploitons en particulier la zone du champ évanescent de la géométrie de Kretschmann que l'on perturbe par la présence d'un milieu métallique peu ou fortement absorbant par rapport au métal de la première interface (cf. fig.II.1). Ainsi, des modes plasmoniques sont générés dans différents ordres. Nous exploitons en fait la propriété de sensibilité des modes plasmoniques au changement d'indice du milieu environnant le diélectrique dans la configuration de Kretschmann.

Les résultats sont reportés dans le chapitre qui suit.

CHAPITRE III

Caractérisation d'une microcavité à parois métalliques

Table des matières

1. Elaboration d'une microcavité à deux miroirs métalliques.....	56
1.1 Calcul de la réflectivité aux interfaces.....	57
1.1.1 Expressions du champ électrique.....	57
1.1.2 Application des conditions de continuité.....	59
2. Simulation numérique SPR de la microcavité.....	62
2.1 Optimisation de l'épaisseur de la couche métallique.....	63
2.1.1. Interfaces : Prisme / Argent / diélectrique	63
2.1.2. Interfaces : Prisme / Or / diélectrique	65
2.2 Analyse d'une microcavité symétrique.....	68
2.2.1 Interfaces : Prisme / Argent / Gap / Argent	68
2.2.2 Interfaces : Prisme / Or / Gap / Or	72
2.3 Analyse d'une microcavité antisymétrique.....	74
2.3.1 Premier cas : contribution faible en absorption pour les deux miroirs	74
2.3.2 Deuxième cas : contribution importante en absorption pour :	75
- Le miroir UP	75
- Le miroir DOWN	76
2.3.3 Troisième cas : contribution très importante en absorption pour :	76
- Le miroir UP	76
- Le miroir DOWN	77
3. Régimes de fonctionnement de la microcavité élaborée	78
4. Influence de la nature du milieu gap de la microstructure élaborée	79
- Synthèse sur les résultats obtenus	80

1. Elaboration d'une microcavité à deux miroirs métalliques (structure à trois interfaces)

Dans le chapitre précédent nous avons rappelé la configuration géométrique suggérée par Kretschmann – Raether permettant de mettre en évidence la résonance plasmonique générée sur une interface métal /diélectrique. Il s'agit du phénomène du confinement des PS relatif aux caractéristiques optiques de l'interface. Dans ce qui suit nous nous intéressons à montrer les effets de la résonance plasmonique sur une structure multicouche. La géométrie de la structure élaborée est décrite par le schéma de la figure III.1

Considérons maintenant comme illustré sur la figure III.1 un empilement de quatre milieux, de permittivités respectives ϵ_p , ϵ_{m1} , ϵ_g , et ϵ_{m2} .

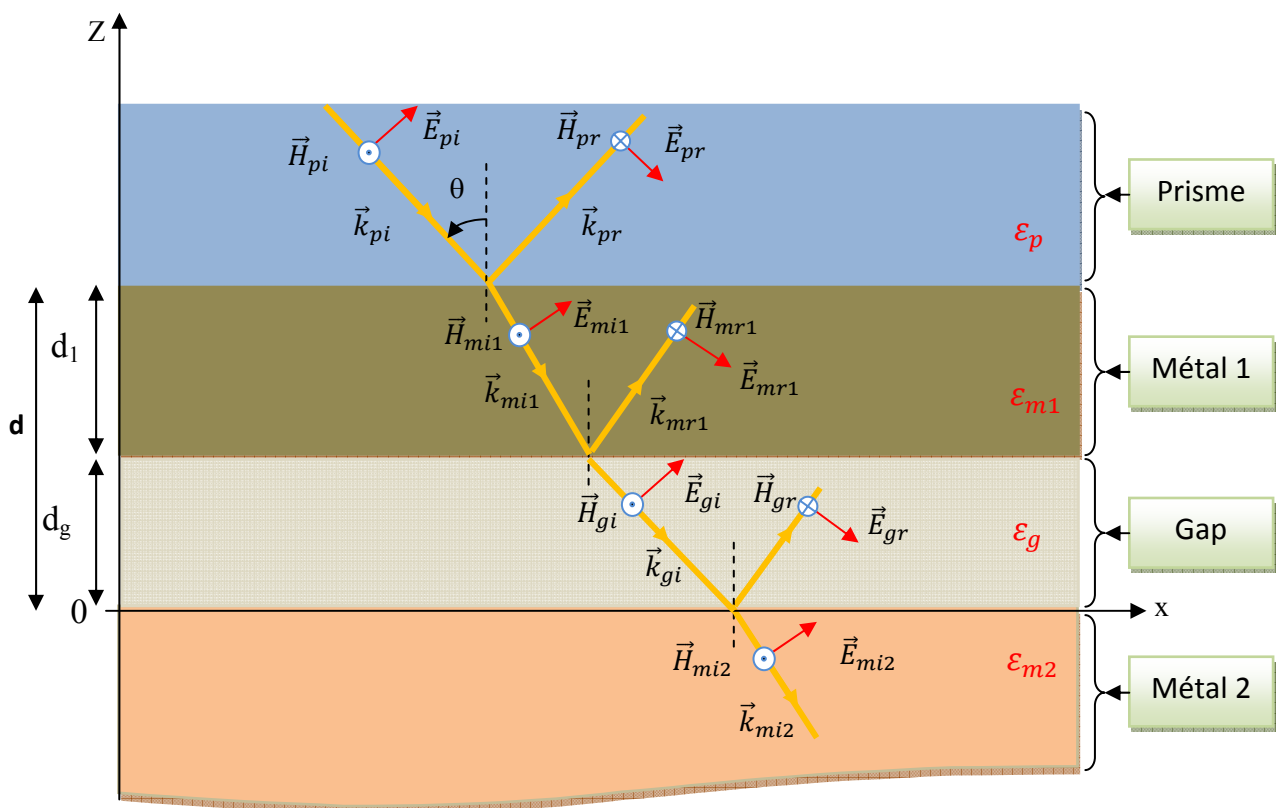


Fig. III.1 : Géométrie et propagation d'une onde électromagnétique plane, de polarisation TM (p) : (structure à trois interfaces).

1.1 Calcul de la réflectivité aux interfaces :

Nous considérons que l'onde électromagnétique incidente est monochromatique de pulsation ω , polarisé transverse magnétique, faisant un angle θ avec l'axe Z .

L'onde se propage, et subit une réflexion à l'interface $Z = d$, le reste pénètre dans le premier miroir (métal 1) puis se réfléchit sur l'interface $Z = dg$, où une partie pénètre à son tour dans le gap, une partie de celle-ci se réfléchit sur la deuxième interface $Z = 0$, et l'autre partie est transmise dans le deuxième miroir (métal 2).

1.1.1 Expressions du champ électrique

Nous allons écrire les expressions du champ électrique \vec{E} dans les quatre milieux, en tenant compte des conditions de continuité aux interfaces.

✚ Dans le milieu P ($Z \geq d = d_1 + d_g$) :

$$\vec{E}_p = \vec{E}_i + \vec{E}_r$$

$$\vec{E}_p = \left(\vec{E}_{pi} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} + \vec{E}_{pr} e^{i\vec{k}'\cdot\vec{r}'} \right) e^{-i\omega t} \quad \text{III.1}$$

avec :

$$\vec{k}\cdot\vec{r} = k_x x - k_{zp}(z-d) \quad , \quad k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_p} \sin\theta$$

$$\vec{k}'\cdot\vec{r}' = k_x x + k_{zp}(z-d) \quad , \quad k_{zp} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_p} \cos\theta$$

donc :

$$\vec{E}_p = \left(\vec{E}_{pi} e^{i(k_x x - k_{zp}(z-d))} + \vec{E}_{pr} e^{i(k_x x + k_{zp}(z-d))} \right) e^{-i\omega t} \quad \text{III.2}$$

avec :

$$\vec{E}_{pi} = E_{px} (1, 0, k_x/k_{zp})$$

$$\vec{E}_{pr} = r_p E_{px} (-1, 0, k_x/k_{zp})$$

donc :

$$\vec{E}_p = \left[E_{px} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ k_x/k_{zp} \end{pmatrix} e^{i(k_x x - k_{zp}(z-d))} + r_p E_{px} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ k_x/k_{zp} \end{pmatrix} e^{i(k_x x + k_{zp}(z-d))} \right] e^{-i\omega t} \quad \text{III.3}$$

✚ **Dans le miroir 1 (métal 1) ($d_g \leq Z \leq d$) :**

$$\vec{E}_{m1} = (\vec{E}_{m1i} e^{i(k_x x - k_{zm1}(z-d_g))} + \vec{E}_{m1r} e^{i(k_x x + k_{zm1}(z-d_g))}) e^{-i\omega t} \quad III.4$$

avec :

$$\vec{E}_{m1i} = E_{m1x}(1, 0, k_x/k_{zm1})$$

$$\vec{E}_{m1r} = r_{m1} E_{m1x}(-1, 0, k_x/k_{zm1}), \quad k_{zm1} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{m1}} \cos\theta_{m1} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{m1} - \varepsilon_p \sin^2\theta}$$

donc :

$$\vec{E}_{m1} = \left[E_{m1x} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ k_x/k_{zm1} \end{pmatrix} e^{i(k_x x - k_{zm1}(z-d_g))} + r_{m1} E_{m1x} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ k_x/k_{zm1} \end{pmatrix} e^{i(k_x x + k_{zm1}(z-d_g))} \right] e^{-i\omega t} \quad III.5$$

✚ **Dans le gap ($0 \leq Z \leq d_g$) :**

$$\vec{E}_g = (\vec{E}_{gi} e^{i(k_x x - k_{zg} z)} + \vec{E}_{gr} e^{i(k_x x + k_{zg} z)}) e^{-i\omega t} \quad III.6$$

avec :

$$\vec{E}_{gi} = E_{gx}(1, 0, k_x/k_{zg})$$

$$\vec{E}_{gr} = r_g E_{gx}(-1, 0, k_x/k_{zg}), \quad k_{zg} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_g} \cos\theta_g = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_g - \varepsilon_p \sin^2\theta}$$

donc :

$$\vec{E}_g = \left[E_{gx} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ k_x/k_{zg} \end{pmatrix} e^{i(k_x x - k_{zg} z)} + r_g E_{gx} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ k_x/k_{zg} \end{pmatrix} e^{i(k_x x + k_{zg} z)} \right] e^{-i\omega t} \quad III.7$$

✚ **Dans le miroir 2 (métal 2) ($Z \leq 0$) :**

$$\vec{E}_{m2} = \vec{E}_{m2i} e^{i(k_x x - k_{zm2} z)} e^{-i\omega t} \quad III.8$$

avec :

$$\vec{E}_{m2i} = E_{m2x}(1, 0, k_x/k_{zm2})$$

$$k_{zm2} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{m2}} \cos\theta_{m2} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{m2} - \varepsilon_p \sin^2\theta}$$

donc :

$$\vec{E}_{m2} = E_{m2x} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ k_x/k_{zm2} \end{pmatrix} e^{i(k_x x - k_{zm2} z)} e^{-i\omega t} \quad III.9$$

1.1.2 Application des conditions de continuité

Ecrivons maintenant les conditions de continuité de la composante tangentielle de \vec{E} et de la composante normale de \vec{D} ($\vec{D} = \varepsilon\vec{E}$) respectivement aux interfaces : milieu P-miroir1, miroir1-gap, et gap-miroir2, autrement dit pour $Z = d$, $Z = d_g$, et $Z = 0$.

↳ Pour $Z = d = d_1 + d_g$:

$$\vec{E}_p = \vec{E}_{m1}$$

et $\varepsilon_p \vec{E}_p = \varepsilon_{m1} \vec{E}_{m1}$

▪ $\vec{E}_p = \vec{E}_{m1}$:

$$(E_{px} e^{i k_x x} - r_p E_{px} e^{i k_x x}) e^{-i \omega t} = (E_{m1x} e^{i(k_x x - k_{zm1}(d-d_g))} - r_{m1} E_{m1x} e^{i(k_x x + k_{zm1}(d-d_g))}) e^{-i \omega t}$$

$$E_{px} - r_p E_{px} = E_{m1x} e^{-k_{zm1}(d-d_g)} - r_{m1} E_{m1x} e^{i k_{zm1}(d-d_g)}$$

$$E_{px}(1 - r_p) = E_{m1x}(e^{-k_{zm1}(d-d_g)} - r_{m1} e^{i k_{zm1}(d-d_g)}) \quad III.10$$

▪ $\varepsilon_p \vec{E}_p = \varepsilon_{m1} \vec{E}_{m1}$:

$$\varepsilon_p \left(E_{px} \frac{k_x}{k_{zp}} e^{i k_x x} + r_p E_{px} \frac{k_x}{k_{zp}} e^{i k_x x} \right) e^{-i \omega t} = \varepsilon_{m1} \left(E_{m1x} \frac{k_x}{k_{zm1}} e^{i(k_x x - k_{zm1}(d-d_g))} + r_{m1} E_{m1x} \frac{k_x}{k_{zm1}} e^{i(k_x x + k_{zm1}(d-d_g))} \right) e^{-i \omega t}$$

$$\varepsilon_p \left(\frac{E_{px}}{k_{zp}} + r_p \frac{E_{px}}{k_{zp}} \right) = \varepsilon_{m1} \left(\frac{E_{m1x}}{k_{zm1}} e^{i k_{zm1}(d-d_g)} + r_{m1} \frac{E_{m1x}}{k_{zm1}} e^{i k_{zm1}(d-d_g)} \right)$$

$$\varepsilon_p E_{px} k_{zm1} (1 + r_p) = \varepsilon_{m1} E_{m1x} k_{zp} (e^{i k_{zm1}(d-d_g)} + r_{m1} e^{i k_{zm1}(d-d_g)}) \quad III.11$$

↳ Pour $Z = d_g$:

$$\vec{E}_{m1} = \vec{E}_g$$

et $\varepsilon_{m1} \vec{E}_{m1} = \varepsilon_g \vec{E}_g$

▪ $\vec{E}_{m1} = \vec{E}_g$:

$$(E_{m1x} e^{i k_x x} - r_{m1} E_{m1x} e^{i k_x x}) e^{-i \omega t} = (E_{gx} e^{i(k_x x - k_{zg} d_g)} - r_g E_{gx} e^{i(k_x x + k_{zg} d_g)}) e^{-i \omega t}$$

$$E_{m1x} - r_{m1} E_{m1x} = E_{gx} e^{-i k_{zg} d_g} - r_g E_{gx} e^{i k_{zg} d_g}$$

$$E_{m1x}(1 - r_{m1}) = E_{gx}(e^{-i k_{zg} d_g} - r_g e^{i k_{zg} d_g}) \quad III.12$$

$$\begin{aligned}
 & \bullet \quad \varepsilon_{m1} \vec{E}_{m1} = \varepsilon_g \vec{E}_g : \\
 & \varepsilon_{m1} \left(E_{m1x} \frac{k_x}{k_{zm1}} e^{i k_x x} + r_{m1} E_{m1x} \frac{k_x}{k_{zm1}} e^{i k_x x} \right) e^{-i \omega t} = \varepsilon_g \left(E_{gx} \frac{k_x}{k_{zg}} e^{i(k_x x - k_{zg} d_g)} + r_g E_{gx} \frac{k_x}{k_{zg}} e^{i(k_x x + k_{zg} d_g)} \right) e^{-i \omega t} \\
 & \varepsilon_{m1} \left(\frac{E_{m1x}}{k_{zm1}} + r_{m1} \frac{E_{m1x}}{k_{zm1}} \right) = \varepsilon_g \left(\frac{E_{gx}}{k_{zg}} e^{i k_{zg} d_g} + r_g \frac{E_{gx}}{k_{zg}} e^{i k_{zg} d_g} \right) \\
 & \varepsilon_{m1} E_{m1x} k_{zg} (1 + r_{m1}) = \varepsilon_g E_{gx} k_{zm1} (e^{i k_{zg} d_g} + r_g e^{i k_{zg} d_g}) \tag{III.13}
 \end{aligned}$$

↳ Pour $Z = 0$:

$$\begin{aligned}
 & \vec{E}_g = \vec{E}_{m2} \\
 \text{et} \quad & \varepsilon_g \vec{E}_g = \varepsilon_{m2} \vec{E}_{m2} \\
 & \bullet \quad \vec{E}_g = \vec{E}_{m2} \\
 & (E_{gx} e^{i k_x x} - r_g E_{gx} e^{i k_x x}) e^{-i \omega t} = E_{m2x} e^{i k_x x} e^{-i \omega t} \\
 & E_{gx} (1 - r_g) = E_{m2x} \tag{III.14}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & \bullet \quad \varepsilon_g \vec{E}_g = \varepsilon_{m2} \vec{E}_{m2} \\
 & \varepsilon_g \left(E_{gx} \frac{k_x}{k_{zg}} e^{i k_x x} - r_g E_{gx} \frac{k_x}{k_{zg}} e^{i k_x x} \right) e^{-i \omega t} = \varepsilon_{m2} E_{m2x} \frac{k_x}{k_{zm2}} e^{i k_x x} e^{-i \omega t} \\
 & \varepsilon_g \left(\frac{E_{gx}}{k_{zg}} + r_g \frac{E_{gx}}{k_{zg}} \right) = \frac{\varepsilon_{m2} E_{m2x}}{k_{zm2}} \\
 & \varepsilon_g E_{gx} k_{zm2} (1 + r_g) = \varepsilon_{m2} E_{m2x} k_{zg} \tag{III.15}
 \end{aligned}$$

A partir des équations III.10, III.11, III.12, III.13, III.14, III.15, on va calculer les coefficients de réflexion respectivement pour les trois interfaces : $Z = d = (d_1 + d_g)$, $Z = d_g$, et $Z = 0$.

$$\begin{aligned}
 \frac{III.10}{III.11} & \Rightarrow \frac{E_{px} (1 - r_p)}{\varepsilon_p E_{px} k_{zm1} (1 + r_p)} = \frac{E_{m1x} (e^{-k_{zm1}(d-d_g)} - r_{m1} e^{i k_{zm1}(d-d_g)})}{\varepsilon_{m1} E_{m1x} k_{zp} (e^{-i k_{zm1}(d-d_g)} + r_{m1} e^{i k_{zm1}(d-d_g)})} \\
 & \Rightarrow \frac{(1 - r_p)}{\varepsilon_p k_{zm1} (1 + r_p)} = \frac{(1 - r_{m1} e^{2i k_{zm1}(d-d_g)})}{\varepsilon_{m1} k_{zp} (1 + r_{m1} e^{2i k_{zm1}(d-d_g)})}
 \end{aligned}$$

on pose : $A = r_{m1} e^{2i k_{zm1}(d-d_g)}$

donc :

$$(1 - r_p)\varepsilon_{m1} k_{zp}(1 + A) = \varepsilon_p k_{zm1}(1 + r_p)(1 - A)$$

$$r_p = \frac{\varepsilon_{m1} k_{zp}(1 + A) - \varepsilon_p k_{zm1}(1 - A)}{\varepsilon_{m1} k_{zp}(1 + A) + \varepsilon_p k_{zm1}(1 - A)} \quad III.16$$

$$\frac{III.12}{III.13} \Rightarrow \frac{E_{m1x}(1 - r_{m1})}{\varepsilon_{m1} E_{m1x} k_{zg}(1 + r_{m1})} = \frac{E_{gx}(e^{-ik_{zg}d_g} - r_g e^{ik_{zg}d_g})}{\varepsilon_g E_{gx} k_{zm1}(e^{ik_{zg}d_g} + r_g e^{ik_{zg}d_g})}$$

$$\Rightarrow \frac{(1 - r_{m1})}{\varepsilon_{m1} k_{zg}(1 + r_{m1})} = \frac{(1 - r_g e^{2ik_{zg}d_g})}{\varepsilon_g k_{zm1}(1 + r_g e^{2ik_{zg}d_g})}$$

on pose : $G = r_g e^{2ik_{zg}d_g}$

donc :

$$(1 - r_{m1})\varepsilon_g k_{zm1}(1 + G) = \varepsilon_{m1} k_{zg}(1 + r_{m1})(1 - G)$$

$$r_{m1} = \frac{\varepsilon_g k_{zm1}(1 + G) - \varepsilon_{m1} k_{zg}(1 - G)}{\varepsilon_g k_{zm1}(1 + G) + \varepsilon_{m1} k_{zg}(1 - G)} \quad III.17$$

$$\frac{III.14}{III.15} \Rightarrow \frac{E_{gx}(1 - r_g)}{\varepsilon_g E_{gx} k_{zm2}(1 + r_g)} = \frac{E_{m2x}}{\varepsilon_{m2} E_{m2x} k_{zg}}$$

$$\Rightarrow \frac{(1 - r_g)}{\varepsilon_g k_{zm2}(1 + r_g)} = \frac{1}{\varepsilon_{m2} k_{zg}}$$

$$\Rightarrow (1 - r_g)\varepsilon_{m2} k_{zg} = \varepsilon_g k_{zm2}(1 + r_g)$$

$$r_g = \frac{\varepsilon_{m2} k_{zg} - \varepsilon_g k_{zm2}}{\varepsilon_{m2} k_{zg} + \varepsilon_g k_{zm2}} \quad III.18$$

On pourra alors calculer la réflectivité du système définie par :

$$R = |r_p|^2 \quad III.19$$

2. Simulation numérique SPR de la microcavité

Pour mettre en évidence, le plasmon de surface dans cette configuration, plaçons nous dans un cas particulier où on va réaliser une cavité constitué de quatre couches : le prisme, l'argent et l'or qui représentent les deux miroirs de la microcavité symétrique où asymétrique selon la configuration étudiée, le gap constitué par l'air ambiant.

Nous pourrions déplacer l'angle de résonance, comme nous avons vu précédemment dans ce manuscrit, en variant des paramètres tels l'épaisseur du métal sa nature ainsi que la nature de l'onde incidente et le matériau présent dans le gap et son épaisseur.

Nous présentons les résultats d'analyse de la lumière réfléchi (par rapport à l'angle d'incidence) pour différentes dispositions excité par une onde électromagnétique dans le domaine visible.

2.1 Optimisation de l'épaisseur de la couche métallique

Au chapitre II nous avons vu que l'épaisseur de la couche métallique influe sur le couplage d'énergie entre l'onde incidente extérieure et le plasmon. Pour d_{opt} , nous avons constaté que la réflectivité tombe à son minimum ($R \approx 0$). C'est cette condition que nous allons étudier pour différentes longueurs d'onde : 331.8nm, 549.2nm, 617.5nm, et 1088.8nm,. Pour ces longueurs d'onde, Johnson et Christy (voir annexe A) [43] donnent une estimation des valeurs de $\epsilon_m(\lambda)$ que nous reportons dans le tableau suivant :

λ (nm)		617.5	549.2	331.8	1088.8
ϵ_m	Ag	-17.24 + i 0.5	-12.86 + i 0.433	-0.66 + i 0.28	-60.76 + i 0.62
	Au	-10.66 + i 1.37	-4.95 + i 5.11	-1.2 + i 5.76	-51.05 + i 3.86

Tableau III.1 Dépendance de la permittivité diélectrique pour l'Or et l'Argent en fonction de la longueur d'onde.

Dans ce tableau nous voulons illustrer les caractéristiques des parois de la microcavité en particulier la contribution d'une forte où d'une faible absorption traduite par la partie imaginaire de la fonction diélectrique (ϵ_i).

Note : remarquons que l'argent à toujours une faible absorption, chose qui est différente dans le cas de l'Or.

2.1.1 Interface : p / Ag / d

❖ $\lambda = 1088.8$ nm

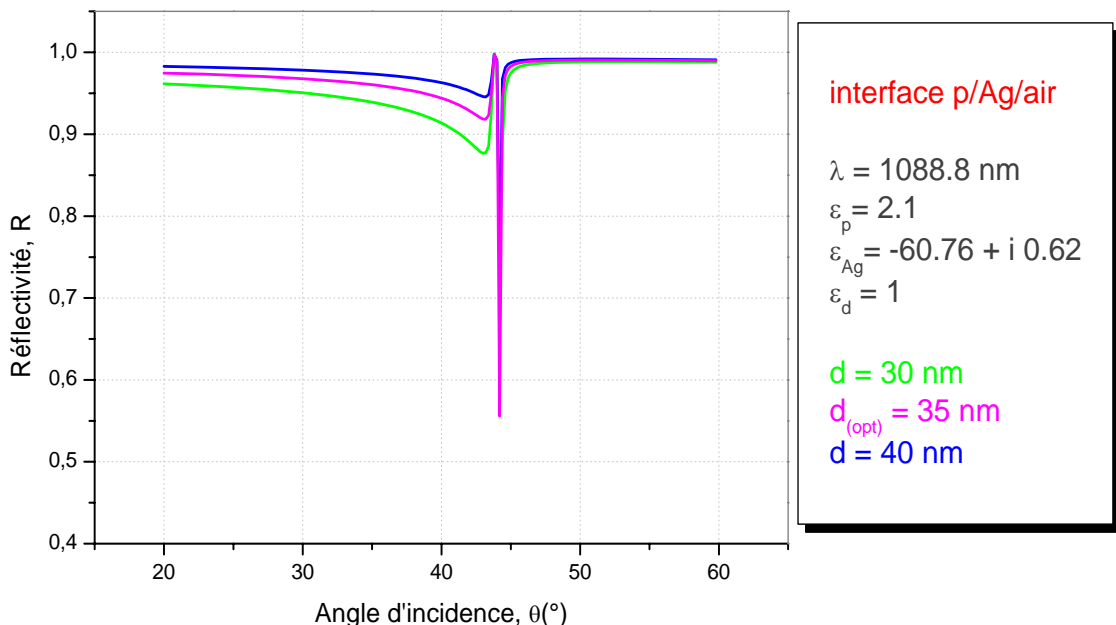


Fig. III.2 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à trois couches (interface : **prisme-Ag-air**) pour différentes épaisseurs de la couche d'argent. La longueur d'onde vaut **1088.8 nm**. L'épaisseur optimale du système considéré vaut **$d_{opt} = 35$ nm**.

❖ $\lambda = 617.5 \text{ nm}$

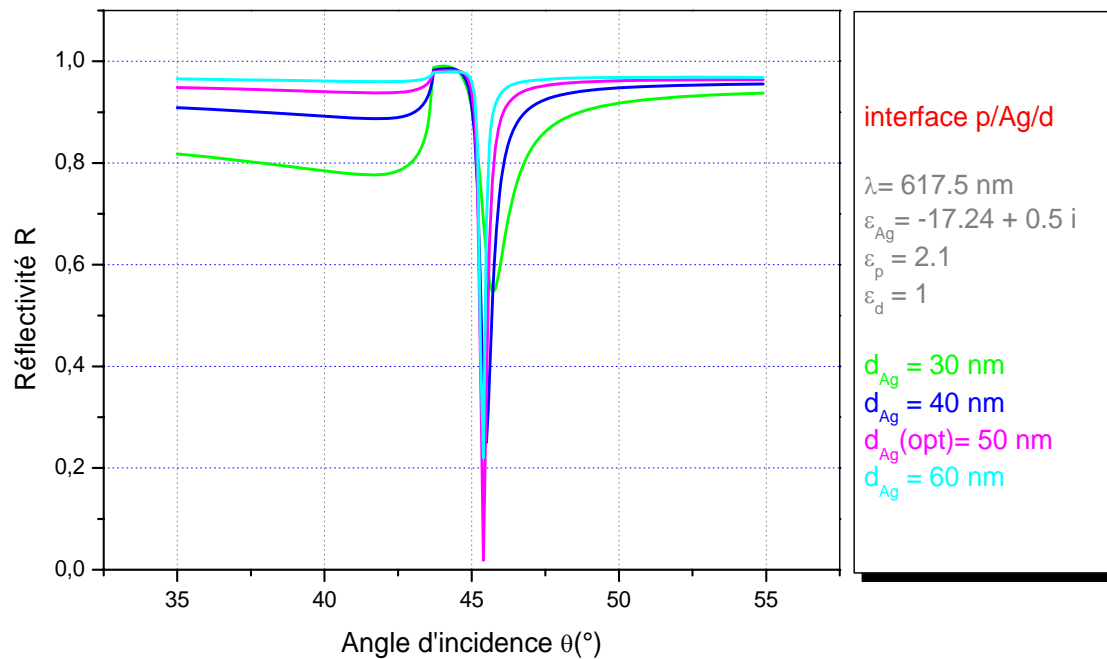


Fig. III.3: Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à trois couches (interface : **prisme-Ag-air**) pour différentes épaisseurs de la couche d'argent. La longueur d'onde vaut **617.5 nm**. L'épaisseur optimale du système considéré vaut $d_{opt} = 50 \text{ nm}$.

❖ $\lambda = 549.2 \text{ nm}$

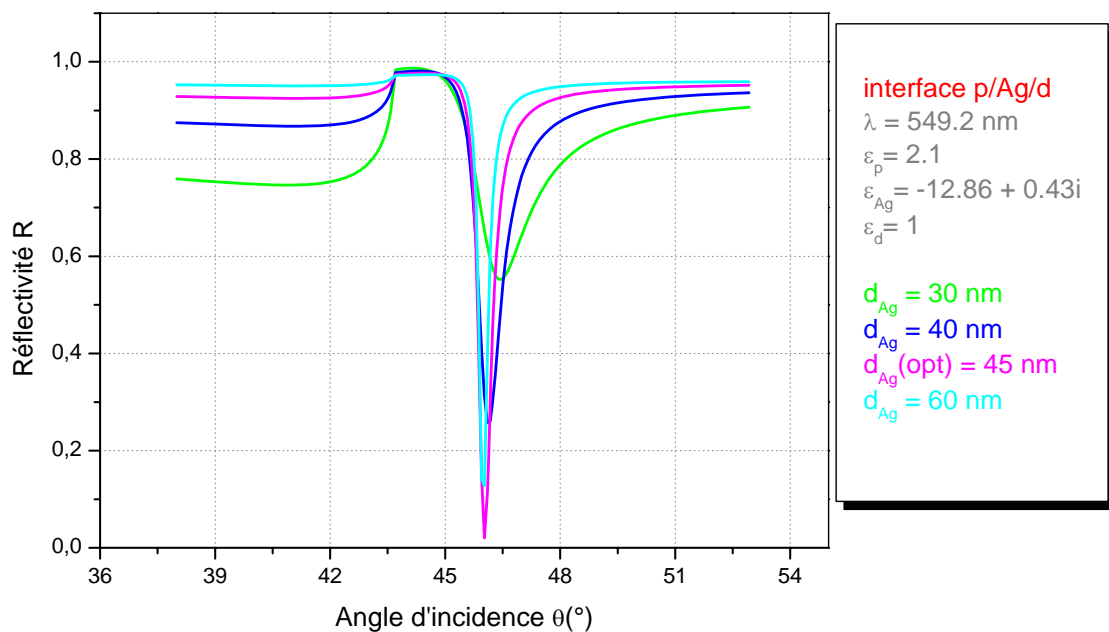


Fig. III.4 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à trois couches (interface : **prisme-Ag-air**) pour différentes épaisseurs de la couche d'argent. La longueur d'onde vaut **549.2 nm**. L'épaisseur optimale de l'échantillon du système considéré vaut $d_{opt} = 45 \text{ nm}$.

❖ $\lambda = 331.8 \text{ nm}$

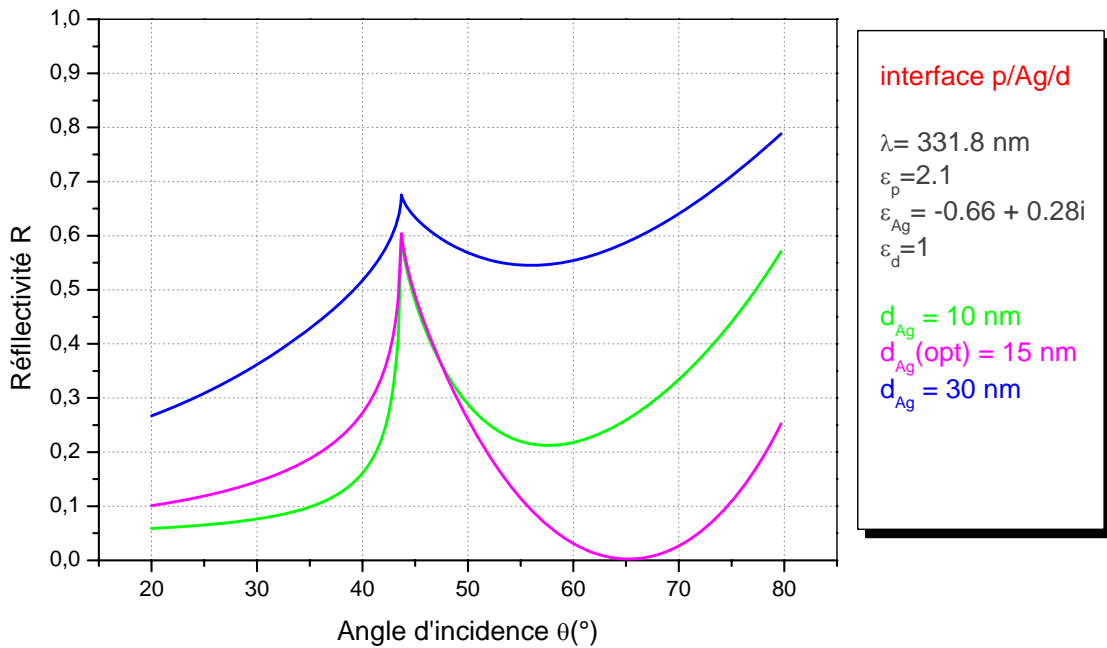


Fig. III.5 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à trois couches (interface : **prisme-Ag-air**) pour différentes épaisseurs de la couche d'argent. La longueur d'onde vaut **331.8 nm**. L'épaisseur optimale de l'échantillon du système considéré vaut $d_{opt} = 15 \text{ nm}$.

2.1.2 Interface : p / Au/ d

❖ $\lambda = 1088.8 \text{ nm}$

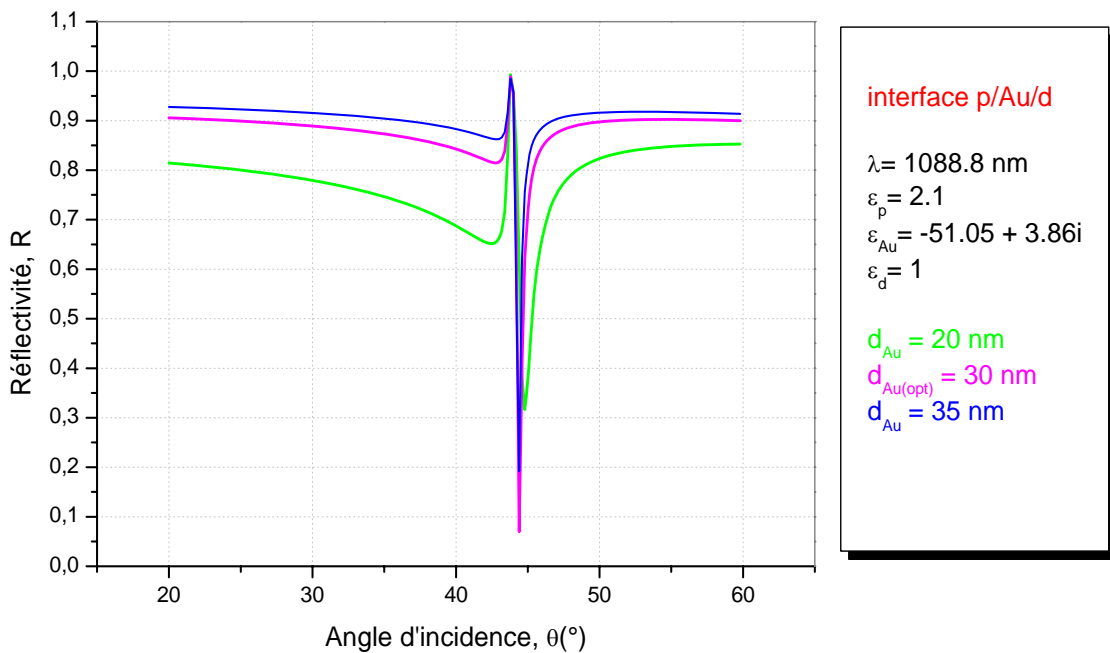


Fig. III.6 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à trois couches (interface : **prisme-Au-air**) pour différentes épaisseurs de la couche d'or. La longueur d'onde vaut **1088.8 nm**. L'épaisseur optimale de l'échantillon du système considéré vaut $d_{opt} = 30 \text{ nm}$.

❖ $\lambda = 617.5 \text{ nm}$

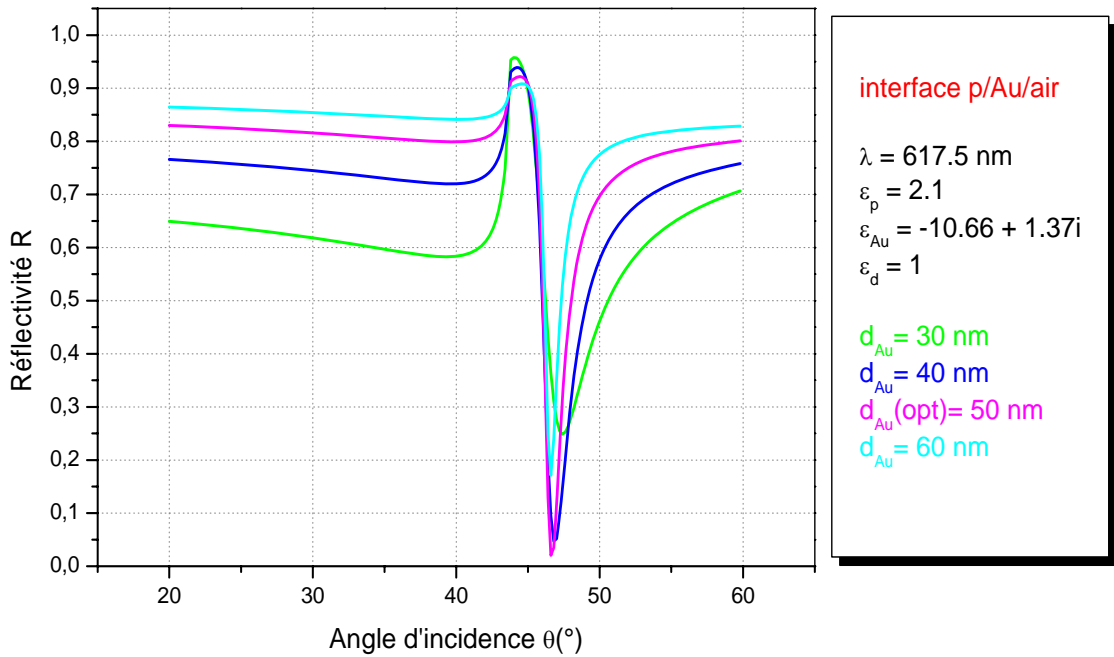


Fig. III.7 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à trois couches (interface : **prisme-Au-air**) pour différentes épaisseurs de la couche d'or. La longueur d'onde vaut **617.5 nm**. L'épaisseur optimale de l'échantillon du système considéré vaut $d_{opt} = 50 \text{ nm}$.

❖ $\lambda = 549.2 \text{ nm}$

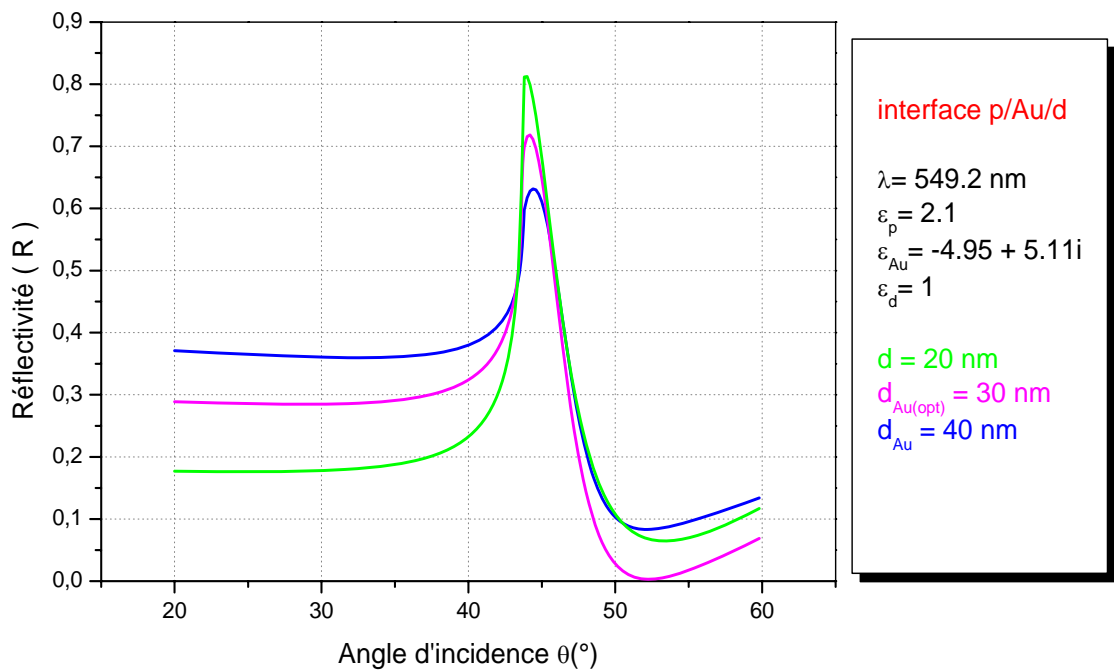


Fig. III.8 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à trois couches (interface : **prisme-Au-air**) pour différentes épaisseurs de la couche d'or. La longueur d'onde vaut **549.2 nm**. L'épaisseur optimale de l'échantillon du système considéré vaut $d_{opt} = 30 \text{ nm}$.

❖ $\lambda = 331.8 \text{ nm}$

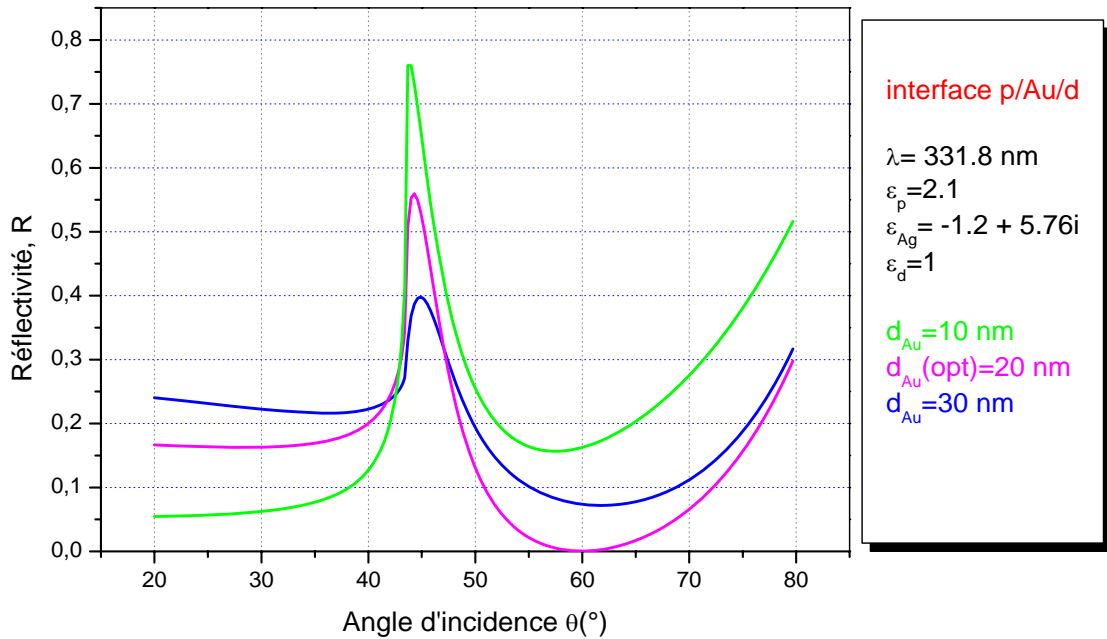


Fig. III.9: Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à trois couches (interface : **prisme-Au-air**) pour différentes épaisseurs de la couche d'or. La longueur d'onde vaut **549.2 nm**. L'épaisseur optimale de l'échantillon du système considéré vaut $d_{opt} = 20 \text{ nm}$.

Commentaire :

Dans cette suite de résultats nous avons reproduit la configuration de Kretschmann dont l'analyse analytique nous permet de localiser la résonance plasmonique pour le cas de l'Or et l'Argent (séparément) optimisée sur l'épaisseur du film métallique pour une longueur d'onde donnée.

La caractéristique principale qui diffère l'Or et l'Argent est la sélectivité angulaire large (fine).

2.2 Analyse d'une microcavité symétrique

2.2.1 Interface : p / Ag / gap / Ag

Dans cette section, nous considérons une structure constituant une microcavité symétrique constituée de deux parois métalliques en Argent.

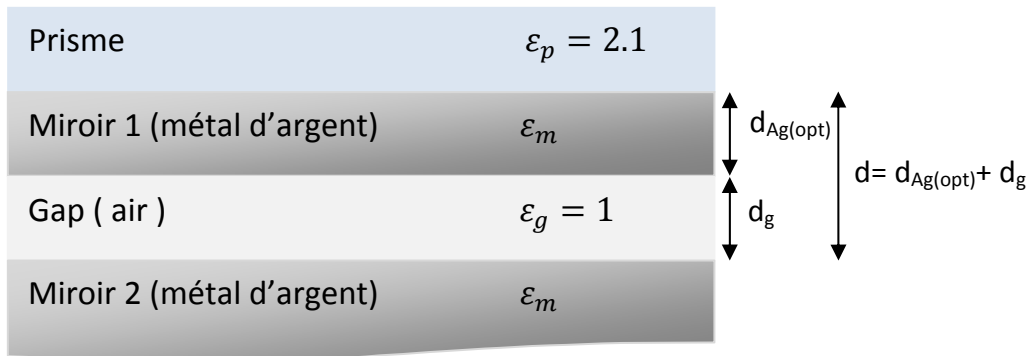


Fig. III.10: Géométrie d'une microcavité symétrique constituée de deux parois métalliques en Argent

❖ $\lambda = 617.5 \text{ nm}$

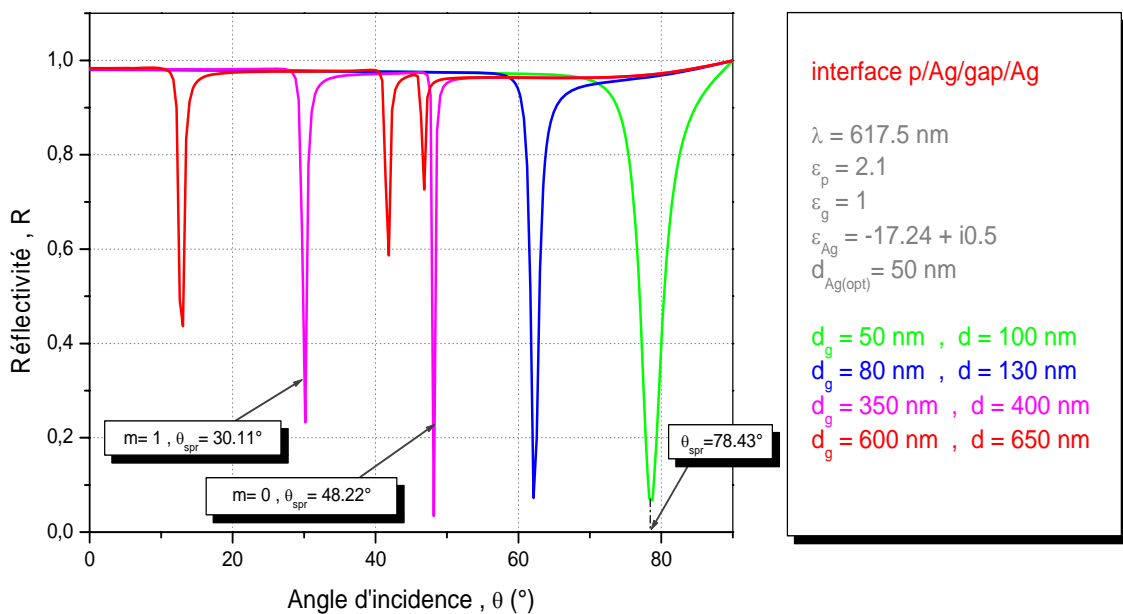


Fig. III.11: Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Ag-gap-Ag**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

Pour l'excitation des modes plasmons, le régime de fonctionnement de la microcavité est conditionné sur l'épaisseur du milieu diélectrique interne (gap) relativement à la longueur d'onde. Autrement dit, pour une épaisseur du gap de l'ordre sub-longueur d'onde la microcavité piège un seul plasmon (résonance angulaire) à caractère évanescent manipulé sur l'espacement $d_g = d_{opt}$ et qui se décale

angulairement par l'augmentation de d_g (Cf. Figure III.12). Cette interprétation est clairement apparente dans les résultats de la fig. III.11.

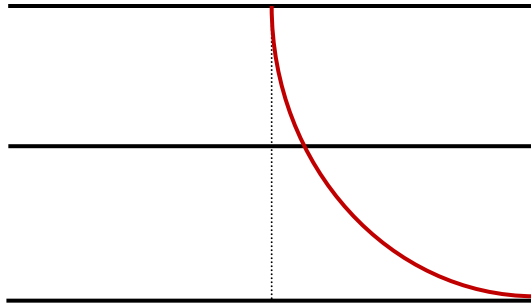


Figure III.12 : Représentation schématique du caractère évanescent du mode plasmon de surface pour une épaisseur du gap sub-longueur d'onde.

Dès que le rapport d_g/λ augmente, la cavité retrouve un fonctionnement Fabry-Pérot à multiples modes compétitifs (Cf. Figure III.11). En effet, car en augmentant d_g le mode de propagation est modifié par apparition de différents ordres de résonance des plasmons de surface. Le premier, correspondant à $\theta_{\text{spr max}} = 48.22^\circ$ nettement supérieur à la réflexion totale $\theta_c = 43.8^\circ$ donc avec un décalage $\delta\theta = \theta_{\text{spr max}} - \theta_c = 4.42^\circ$

Le mode $m = 0$ de la microcavité identifié à la structure de Kretschmann apparaît à une résonance angulaire plasmonique plus éloigné. Des modes compétitifs du plasmon sont générés au fur et à mesure qu'il est manipulé la dimension du gap ; i.e., $m=0, m=0, 1, m=0, 1, 2, \dots$ etc. il est à remarquer que les amplitudes des pics de résonance du plasmon sont affectées par les pertes d'énergie de l'onde électromagnétique incidente. A titre d'exemple, en ce référent à la figure III.11 pour le mode d'ordre $m = 2$ et $d_g = 600 \text{ nm}$ le taux de réflectivité perdu est estimé à 4.5 % .

Ces caractéristiques sont fortement dépendant des paramètres géométriques et optiques fixés, et en particulier le rapport d_g/λ .

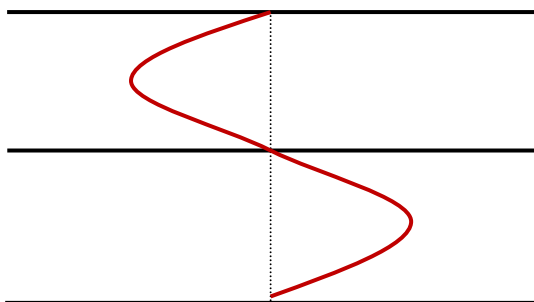


Fig. III.13(a)

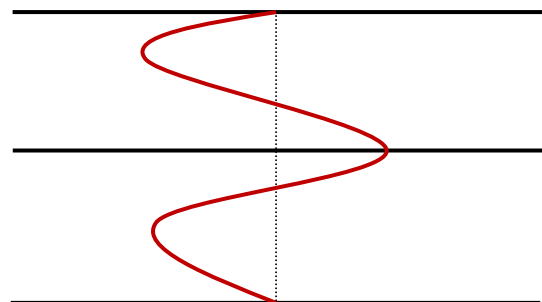


Fig. III.13 (b)

Figure III.13 : Représentation schématique des ordres associés aux modes des plasmons de la microcavité relativement au rapport d_g/λ

- (a) modes plasmons d'ordre $m = 0$ et $m = 1$ pour
- (b) modes plasmons d'ordre $m = 0, m = 1$ et $m = 2$

Dans l'intervalle angulaire $\delta\theta = 27.31^\circ$ associé à la dimension de d_g dans l'intervalle **50-200 nm** la microcavité fonctionne de façon identique à la configuration de Kretschmann. Au delà de cette ordre de **$d_g > 200$ nm** la microcavité piège différents modes plasmons pour fonctionner comme une cavité Fabry-Pérot (Cf. Figure III.14).

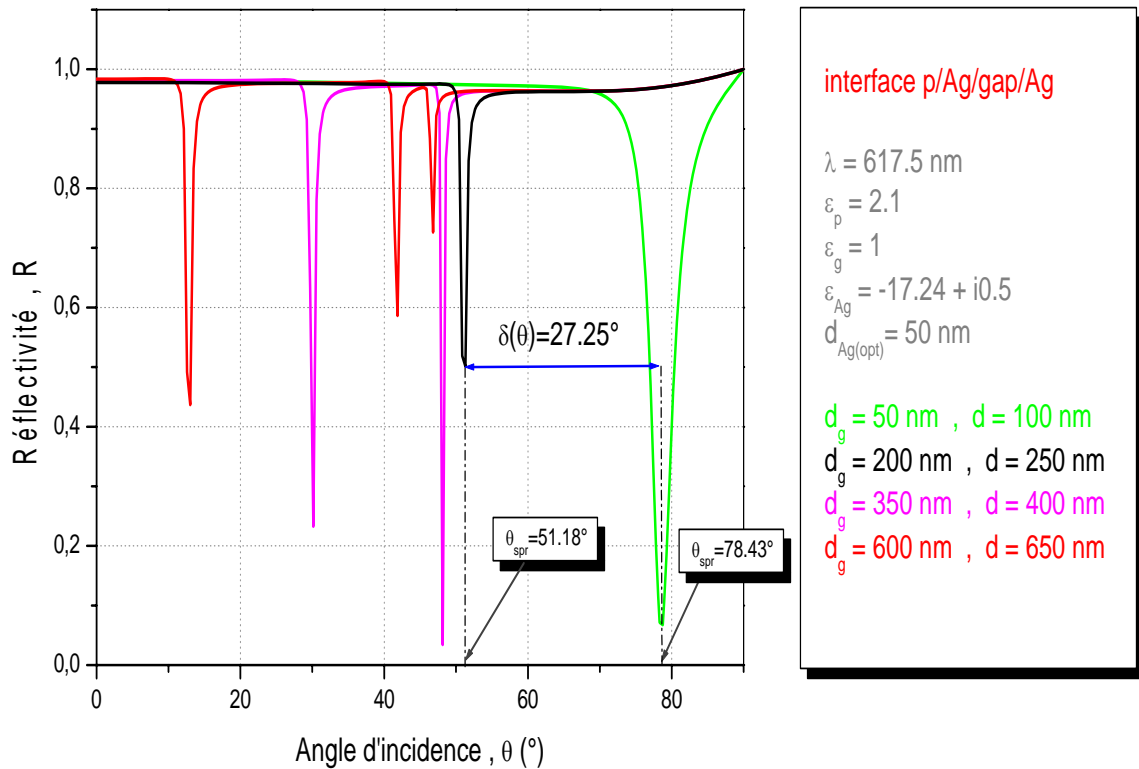


Fig. III.14 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Ag-gap-Ag**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

Ce dispositif instrumental est fortement employé en pratique pour un asservissement en fréquences des sources Laser. Nous allons étendre son application pour donner quelques mesures physiques sur la durée de vie du photon à l'intérieur de la microcavité, mesure de la force de Raby et l'intervalle spectral libre. Ce dernier est nécessaire pour étalonner des spectres des systèmes. Les détails de cette aspect seront reportés dans le chapitre IV.

❖ $\lambda = 549.2 \text{ nm}$

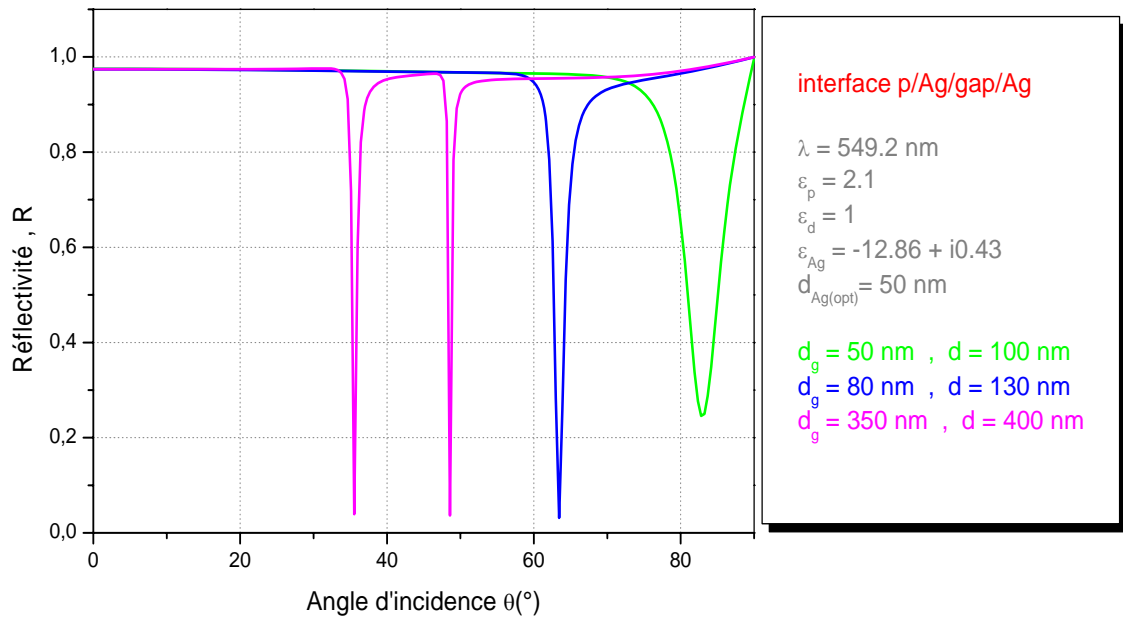


Fig. III.15 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Ag-gap-Ag**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

❖ $\lambda = 331.8 \text{ nm}$

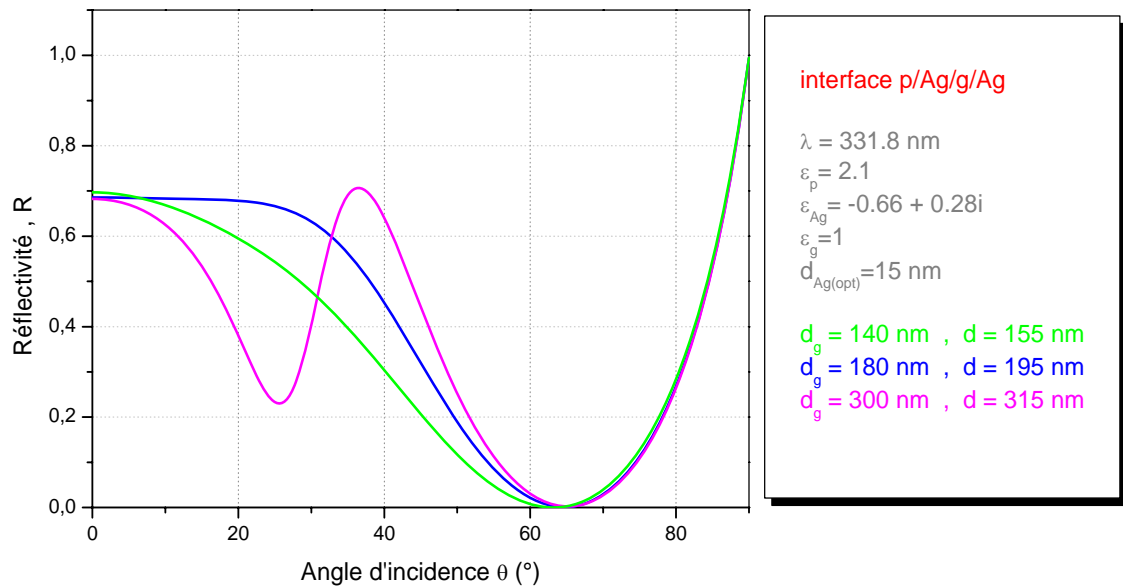


Fig. III.16 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Ag-gap-Ag**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

La comparaison systématique des deux données représentées dans les figures III.15 et III.16 fait voir que la longueur d'onde dans le spectre visible vert le rouge améliore la finesse des pics résonnants du plasmon et la sélectivité de l'écart angulaire de leur différents ordres m_i .

2.2.2 Interface : p / Au / gap / Au

Dans cette section, nous considérons une structure constituant une microcavité symétrique constituée de deux parois métalliques en Or.

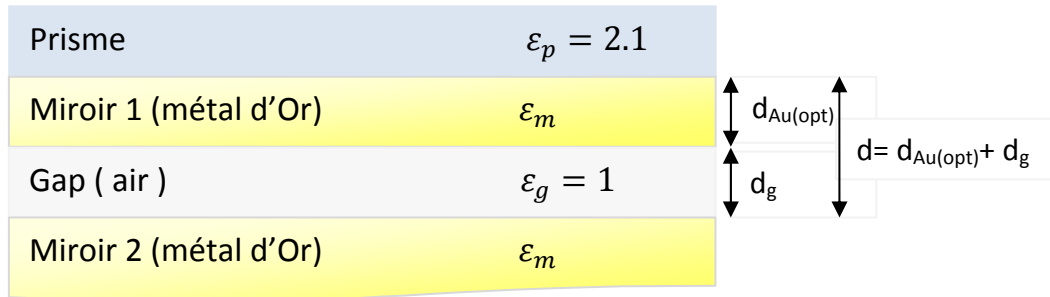


Fig. III.17: Géométrie d'une microcavité symétrique constituée de deux parois métalliques en Or

❖ $\lambda = 617.5 \text{ nm}$

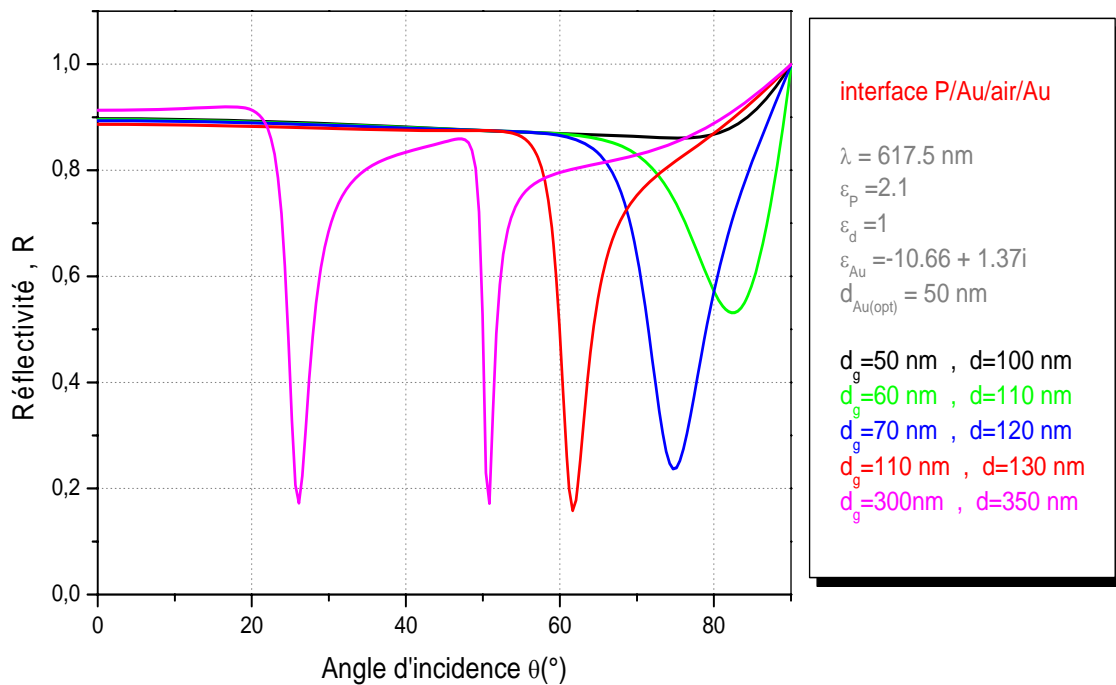


Fig. III.18 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Au-gap-Au**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

❖ $\lambda = 549.2 \text{ nm}$

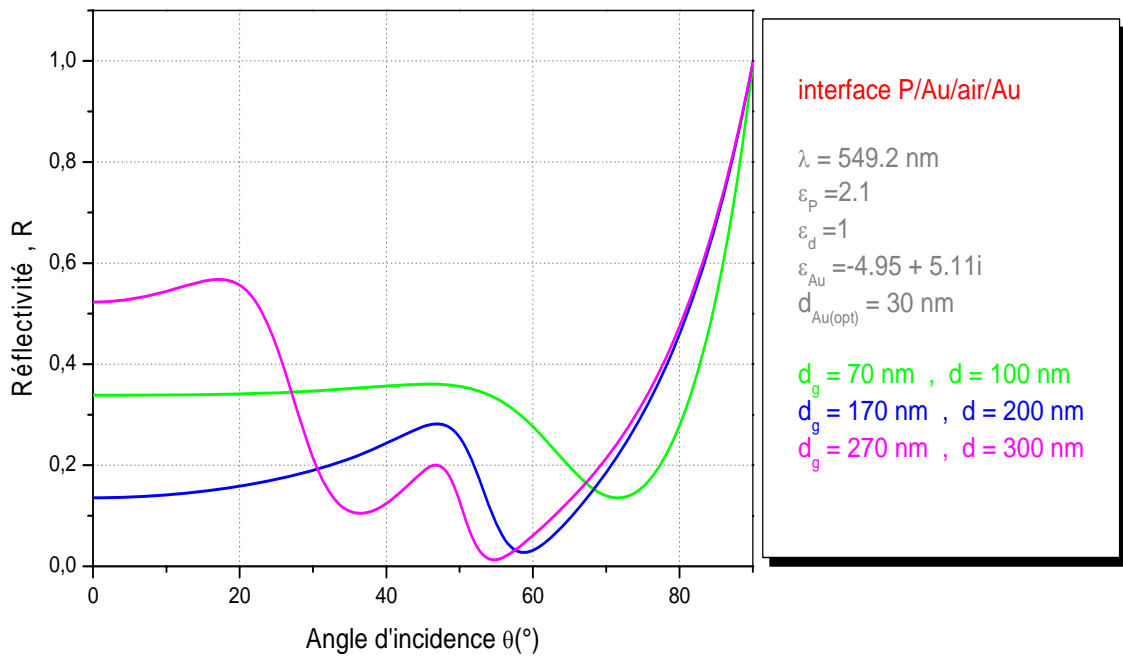


Fig. III.19 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Au-gap-Au**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

❖ $\lambda = 331.8 \text{ nm}$

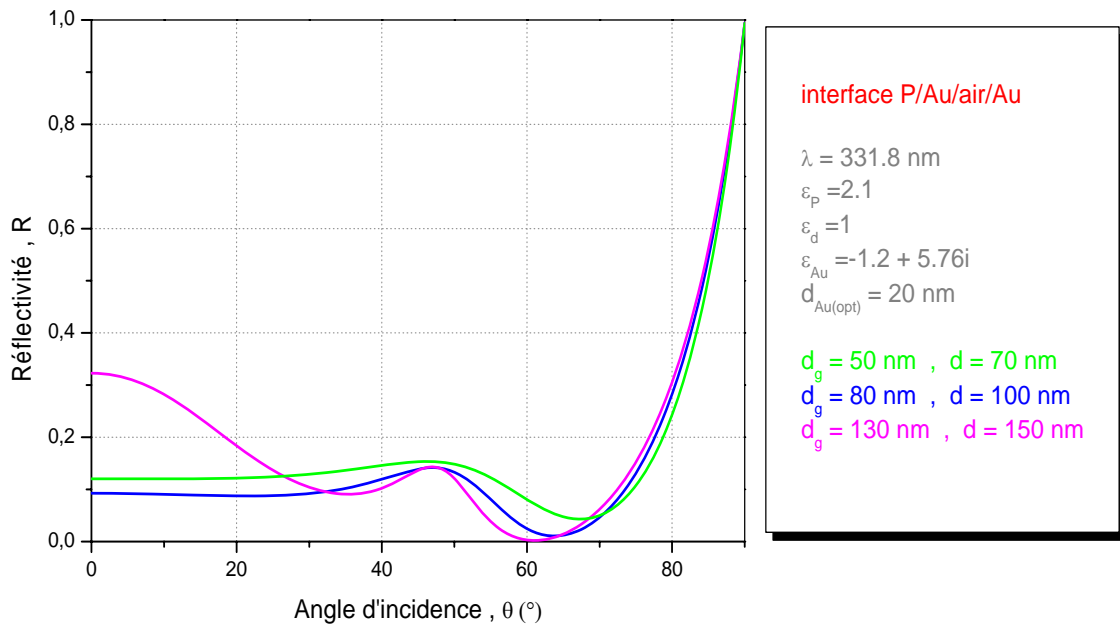


Fig. III.20 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Au-gap-Au**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

En comparant les données des figures III.18, III.19, et III.20, pour une microcavité avec deux parois en Or, il est privilégié d'irradier la structure dans le spectre visible vers le rouge. Dans ce cas les pics de résonance des modes plasmons ne sont pas affectés par le phénomène d'absorption.

2.3 Cavité antisymétrique

Dans cette section, nous considérons une structure constituant une microcavité où nous intervertissons les miroirs dans les deux possibilités indiquées comme suite :

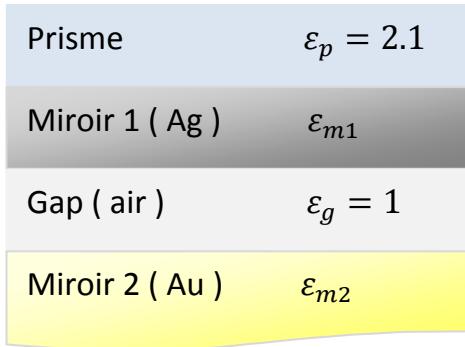


Fig. III.21 (a)

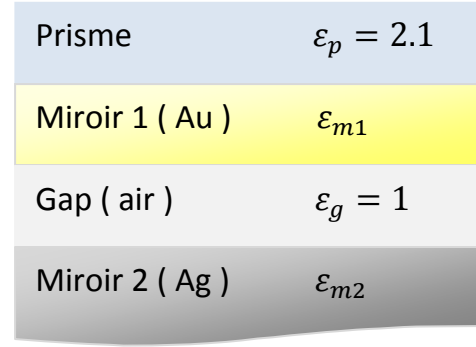


Fig. III.21 (b)

Fig. III.21: Géométrie d'une microcavité asymétrique constituée de deux parois métalliques.(a) interface P/Ag/gap/Au, (b) interface P/Au/gap/Ag.

❖ Premier cas : contribution faible en absorption pour les deux miroirs :

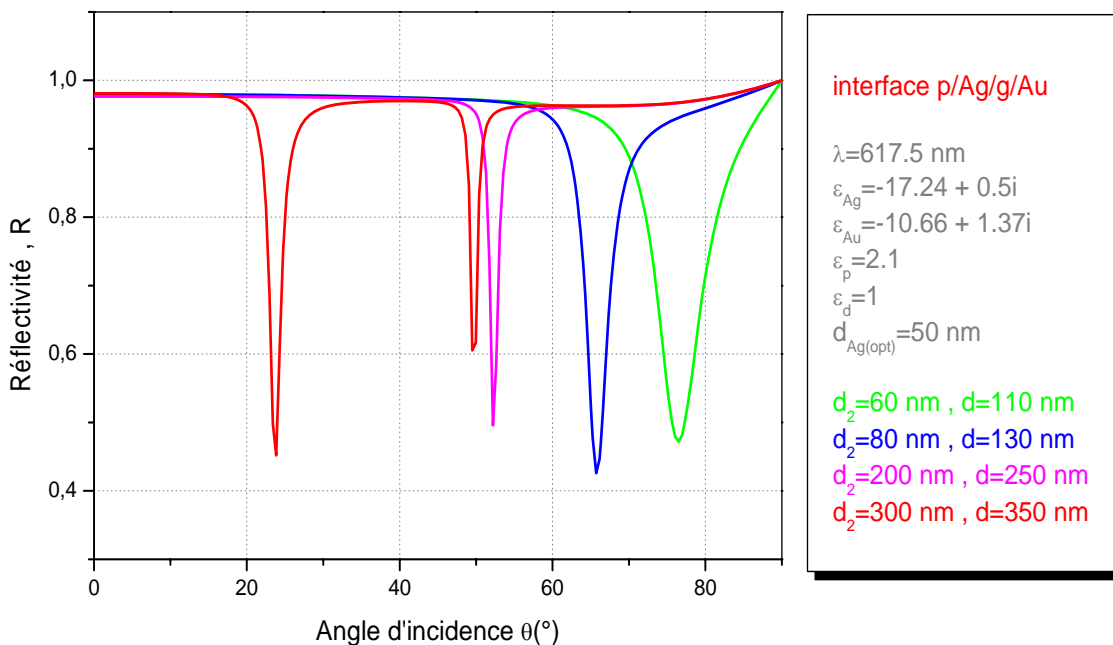


Fig. III.22: Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Ag-gap-Au**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

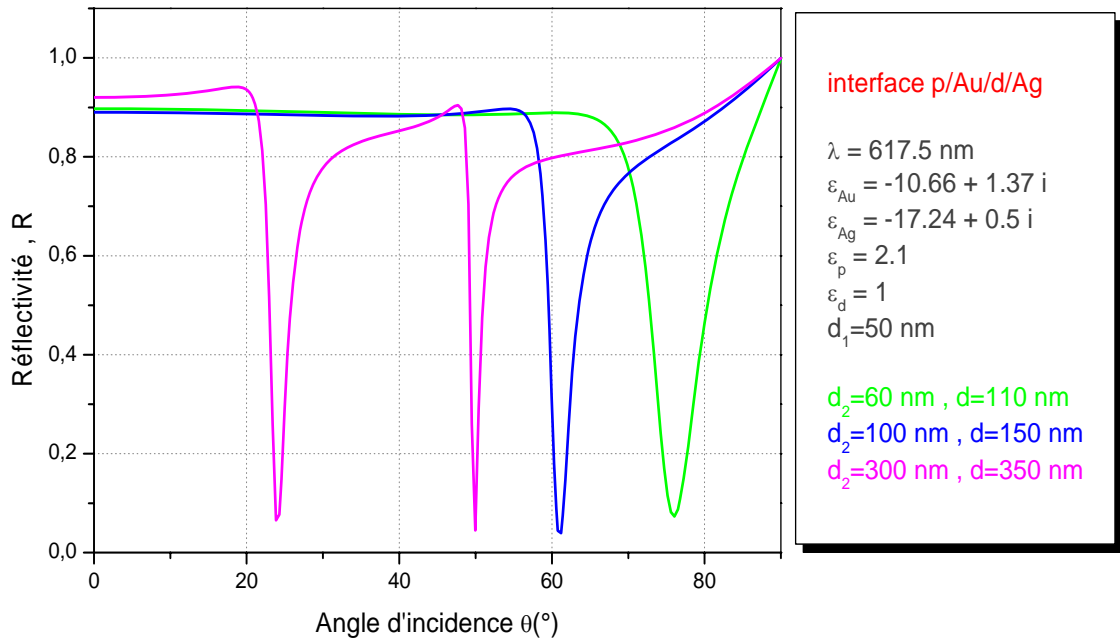


Fig. III.23 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Ag-gap-Au**) pour différentes épaisseurs du gap **dg**.

❖ Deuxième cas : contribution importante en absorption pour :

a) le miroir UP :

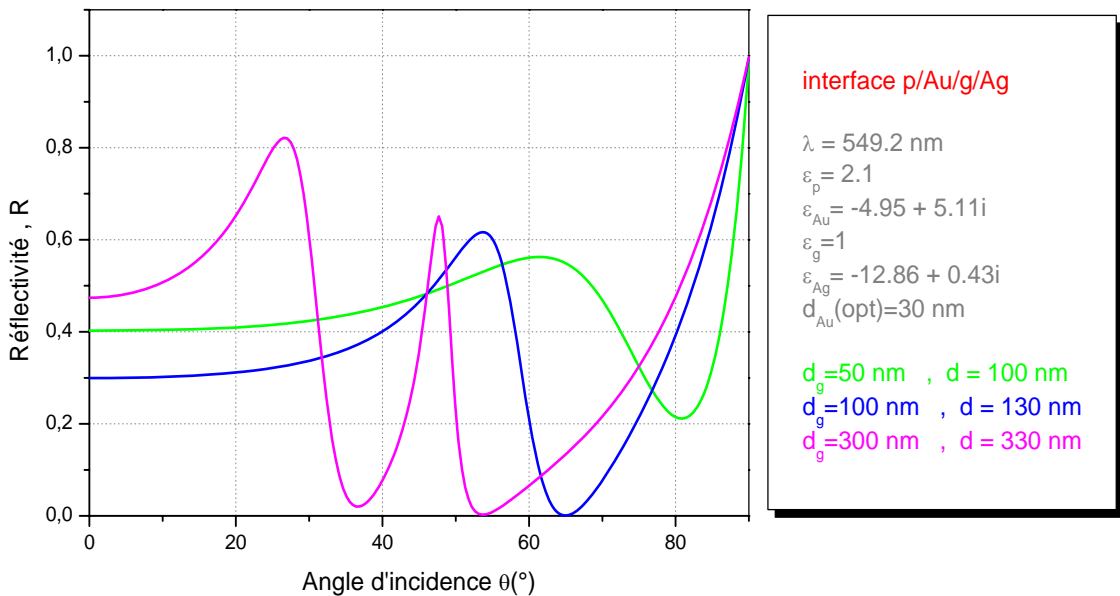


Fig. III.24 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Au-gap-Ag**) pour différentes épaisseurs du gap **dg**.

b) le miroir DOWN :

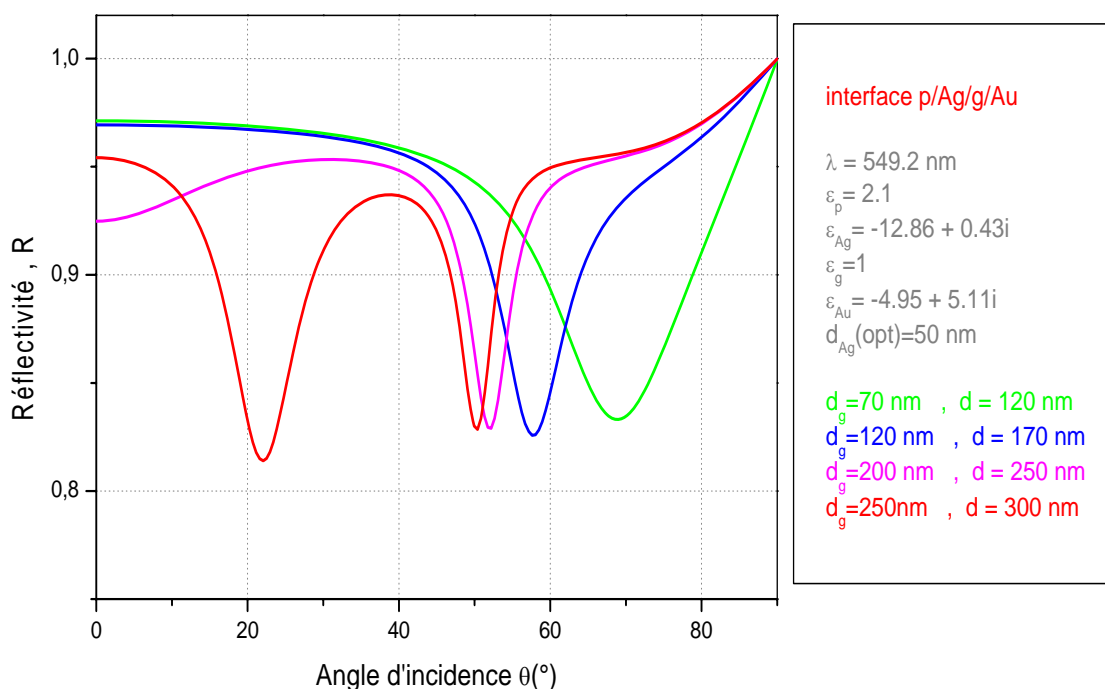


Fig. III.25 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Ag-gap-Au**) pour différentes épaisseurs du gap **dg**.

❖ Troisième cas : contribution très importante en absorption pour :

a) le miroir UP :

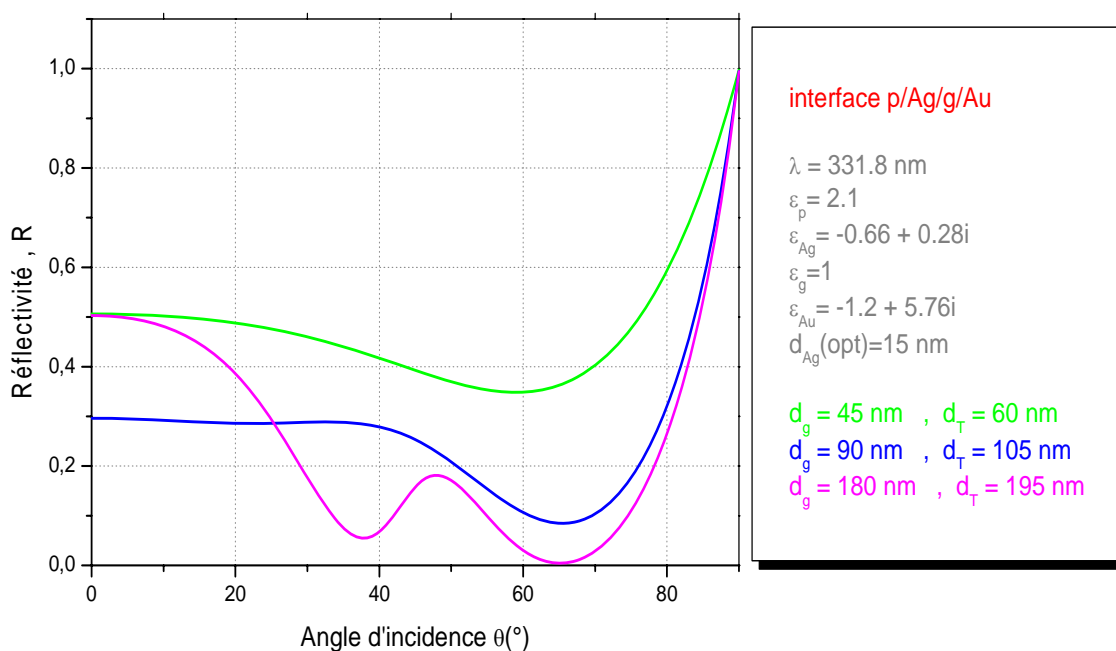


Fig. III.26 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Ag-gap-Au**) pour différentes épaisseurs du gap **dg**.

b) le miroir DOWN :

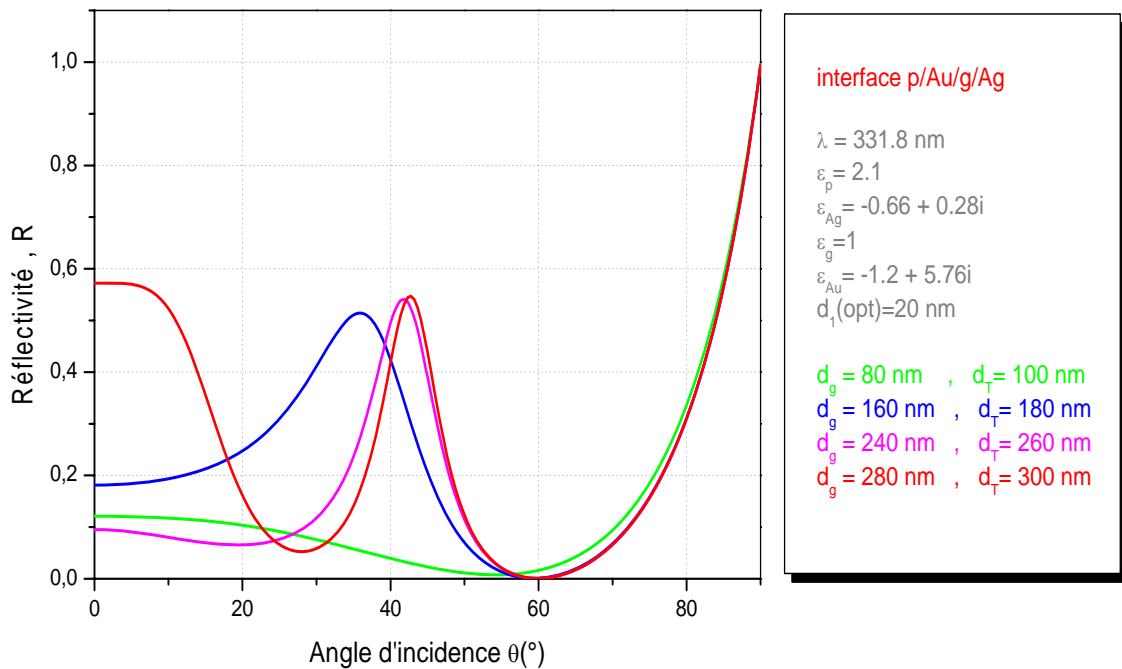


Fig. III.27 : Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Au-gap-Ag**) pour différentes épaisseurs du gap **dg**.

Pour une microstructure hétérogène des miroirs en Or et l'Argent, la longueur d'onde dans l'UV dégrade la finesse des pics de la résonance plasmonique. Par contre pour une longueur d'onde vers le rouge, le miroir down améliore le transfert énergétique aux plasmons du fait de sa faible contribution en absorption. Cette propriété reste valable même dans le spectre infrarouge (voir données figures .B.1 et B.2 en annexe B).

3. Régimes de fonctionnement de la microcavité élaborée :

L'étude analytique développée dans la partie 2.2.1 pour la réponse de la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence, la résonance plasmonique associée est localisée dans les conditions paramétriques de la microstructure indiquées dans la fenêtre de la figure III.11. Nous constatons que la microstructure fonctionne sous deux régimes différents :

Pour une épaisseur dans l'intervalle $50nm \leq d_g \leq 200nm$, (voir tableau III.2) la microstructure fonctionne de façon équivalente à la structure conventionnelle de Kretschmann-Raether ; c.à.d. la microcavité ne piège qu'un seul plasmonique d'ordre $m=0$ localisé dans l'intervalle angulaire $(78.43^\circ \leq \theta_{ps} \leq 51.08^\circ)$. Le comportement de ce dernier admet une dépendance décroissante par rapport à l'épaisseur du gap(cf.fig.III.28).

dg (nm)	50	60	70	80	90	120	150	200
θ_{SPR} (°)	78.43	69.81	65.25	62.15	59.94	55.70	53.61	51.08

Tableau.III.2 : Localisation de la résonance plasmonique selon l'épaisseur du gap.

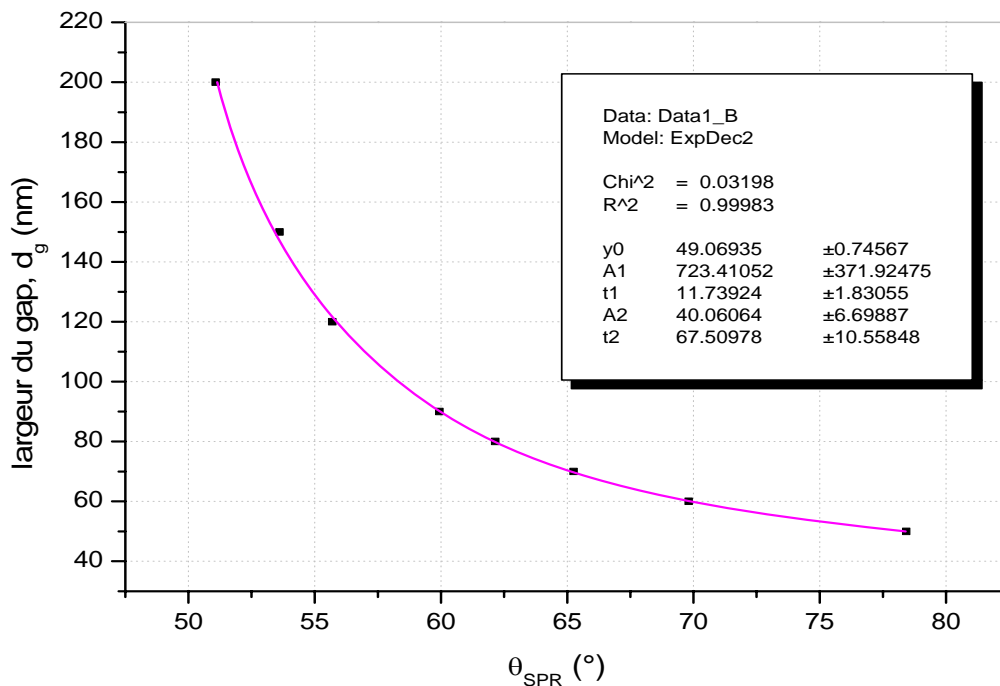


Fig. III.28 : fonctionnement de la microcavité dans le régime Kretschmann-Raether

Au delà du seuil $d_g \geq 200nm$, la microcavité admet un autre régime de fonctionnement (microcavité Fabry-Perot) pour piéger différents ordres m_i des modes plasmons dont la finesse, les écarts angulaires et le taux de transfert d'énergie sont manipulés selon les propriétés optiques des miroirs et la longueur d'onde.

4. Influence de la nature du milieu gap de la microstructure élaborée :

Dans les conditions de la fig.III.11 sur les parois de la microstructure, le régime de fonctionnement de la microcavité peut dépendre fortement de la nature du milieu gap. En considérant différents cas de milieux de permittivité $\epsilon_g = 1, 1.5, 2.1, 3$ les modes plasmons sont contrôlés de façon déterminante comme indiquée par la fig.III.29 Le transfert énergétique est totalement minimisé pour un milieu gap de permittivité importante. Autrement dit, en plus de l'influence de l'épaisseur d_g , la réponse plasmonique est manipulée sur la nature du milieu gap.

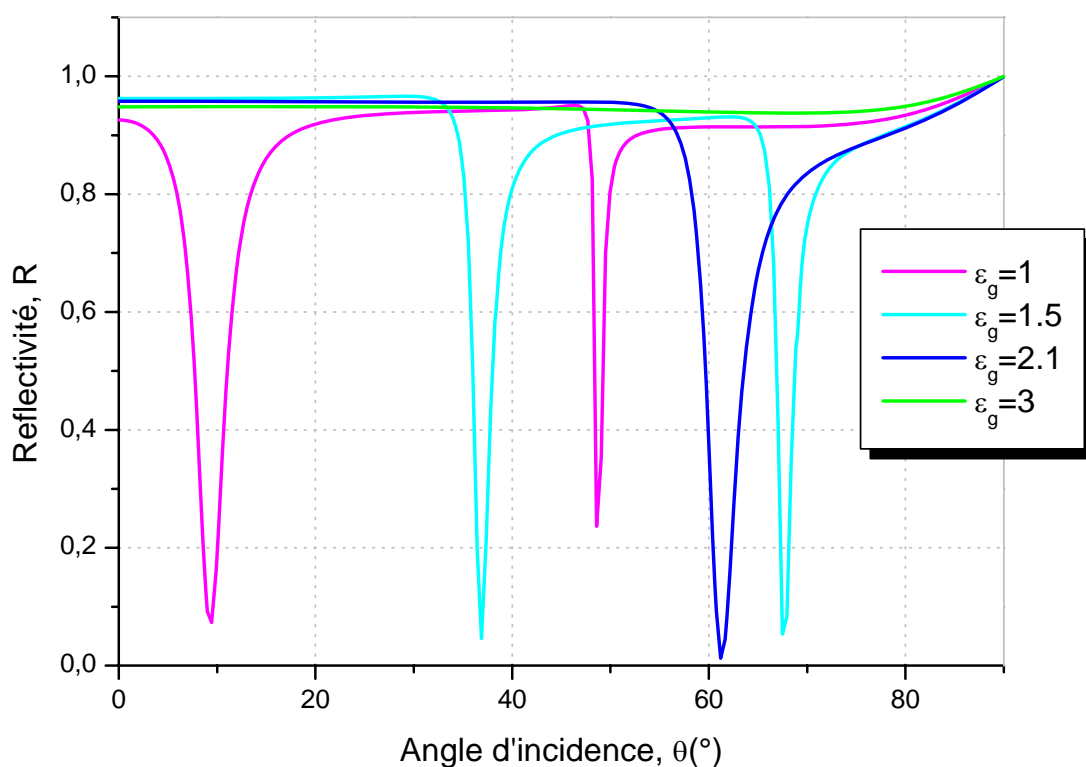


Fig.III.29 : Influence de la nature du milieu gap sur la résonance plasmonique pour une microstructure P/Ag/gap/Ag

Synthèse sur les résultats obtenus

Le premier point à souligner sur l'ensemble des résultats reportés dans ce manuscrit est qu'il existe différents moyens efficaces pour confiner des plasmons polaritons de surface le long des nanostructures (du type métal-diélectrique). Selon notre configuration suggérée qui est basée sur la technique conventionnelle de Kretschmann-Raether, les caractéristiques (résonances angulaires, répartition angulaire et largeurs) des modes plasmons piégés par la microstructure dans une étude angulaire (de l'onde incidente) sont manipulés sur les propriétés optiques des parois et la largeur du gap et sa nature. Ainsi, par l'ensemble de ces paramètres et caractéristiques, les performances de la microstructure sont définies et déterminantes pour des applications en temps que guide d'onde ou biosenseur.

Il est intéressant de rappeler en particulier quelques résultats liés aux performances de la microcavité Fabry-Pérot fonctionnant en modes plasmoniques. Le dit dispositif est déterminant du point de vue résolution par rapport au dispositif de Michelson sur les franges d'interférence. D'abord, nous précisons que les caractéristiques optiques des parois de la microcavité jouent un grand rôle sur la finesse (en rapport avec le facteur de qualité) des modes plasmons-polaritons de surface. Pour une meilleure finesse associée à un fort facteur de qualité, les résultats prédisent le fonctionnement dans l'infrarouge en terme de longueur d'onde, et en considérant le milieu gap comme l'air ambiant. Il est à rappeler que l'épaisseur du gap admet un rapport de proportionnalité avec la longueur d'onde pour faire fonctionner la microcavité sous deux régimes différents spécifiquement repérés par la résonance angulaire plasmonique.

Pour l'emploi d'une structure hétérogène du type Ag/gap/Au, la présence de l'argent favorise le piégeage des modes plasmons de différents ordres m_i du fait de sa faible contribution en absorption.

Les pertes (élargissement sur le creux de la résonance plasmonique) et la finesse sont optimisées sur la longueur d'onde vers l'infrarouge.

CHAPITRE IV

Application de la structure à double miroirs

Table des matières

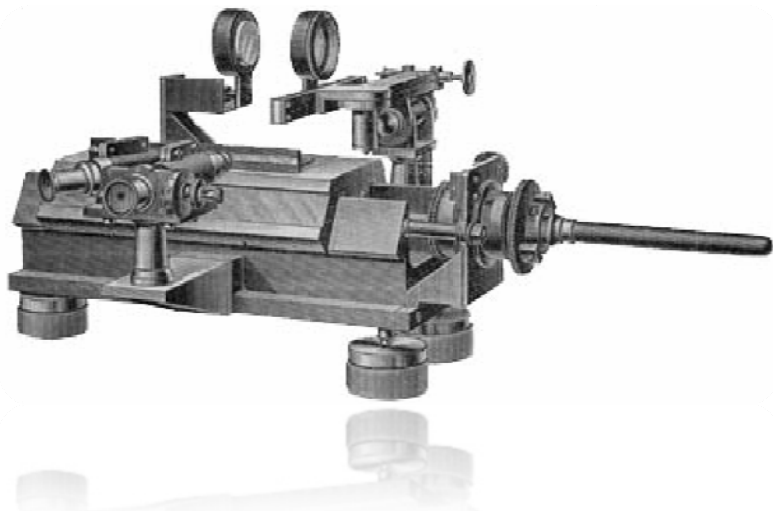
1. Introduction	82
2. généralités	83
3. Principe de l'interféromètre pour une onde monochromatique	84
4. Finesse de l'interféromètre	86
5. Caractérisation d'une microcavité Fabry-Perot	87
5.1 Géométrie de la microcavité et paramètres caractéristiques	87
5.2 Paramètres optiques de la structure	88
5.3 Réponse optique de la microcavité	88
- Mode plasmon d'ordre $m = 0$	88
- Mode plasmon d'ordre $m = 1$	90

1. Introduction

Depuis quelques années, on ne parle presque plus d'Optique, mais de nanophotonique. Le terme de photonique vient du fait que les dispositifs étudiés par cette discipline n'ont plus comme par le passé le but d'améliorer les capacités de l'œil - le propre de l'optique. Au contraire, il s'agit de manipuler la lumière. Le préfixe nano est dû à la taille caractéristique des structures permettant de contrôler la lumière. La nanophotonique est à la frontière entre l'électromagnétisme classique et la physique de la matière condensée.

L'avènement de la technologie dite nano-photonique est entrain de repousser les limites de la miniaturisation jusqu'à des échelles inférieures à la longueur d'onde. C'est un domaine de la recherche en plein essor aux applications prometteuses, par exemple, la création des circuits intégrés dédiés aux domaines des télécommunications optiques, de la biophotonique etc...

L'une des structures de base de l'optique intégrée omniprésente dans tous ces domaines est la cavité résonante de Fabry-Pérot. Cette structure nécessite deux réflecteurs parallèles espacés entre eux d'une certaine distance définissant la longueur de la cavité.



Cavité de Fabry et Pérot en 1926



2. généralités

En optique, une cavité (appelée aussi résonateur) est un milieu dans lequel peut se propager une onde électromagnétique, limitée par des discontinuités de l'espace. Sur ces discontinuités, l'onde est partiellement réfléchi et transmise. Une onde interférera donc avec elle-même, de manière constructive ou destructive, en fonction de ses caractéristiques (longueur d'onde, direction, amplitude, propriétés de la cavité ...).

On peut schématiser une microcavité planaire, comme étant une couche d'épaisseur d et d'indice de réfraction n , confinée entre deux miroirs de coefficients de réflexion R_1 et R_2 , comme le montre la figure IV.1. Cette microcavité est alors dénommée cavité Fabry-Perot.

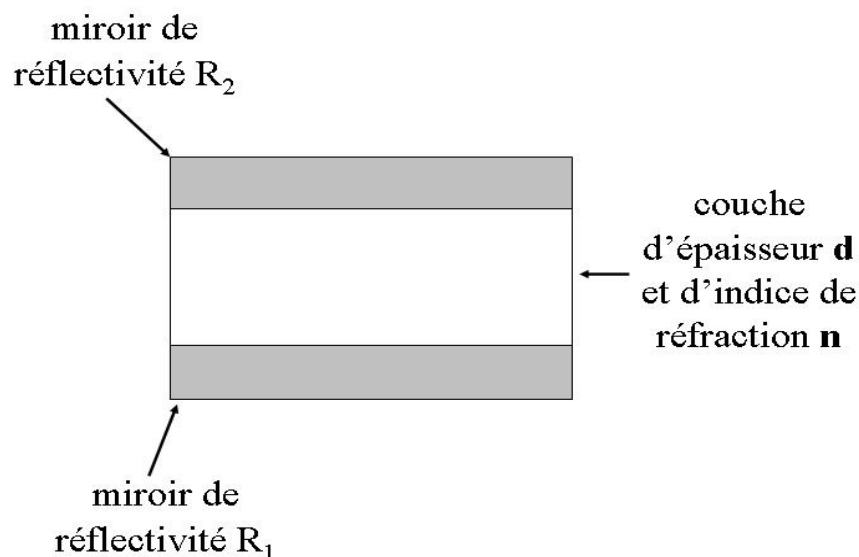


Fig. IV.1: schéma de principe d'une cavité Fabry-Perot

Appelé aussi interféromètre de Fabry-Perot, les deux surfaces de ses miroirs sont partiellement réfléchissantes planes à haut coefficients de réflexion (souvent supérieure à 95%). Il doit son appellation à Charles Fabry et Alfred Perot. La lumière entrante effectue de multiples aller-retour à l'intérieur de cette cavité, et ressort partiellement à chaque réflexion.

3. Principe de l'interféromètre pour une onde monochromatique :

Pour simplifier l'étude, on suppose que l'interféromètre est éclairé par une source de lumière monochromatique. On peut représenter comme sur la figure IV.2, un rayon en particulier, et calculer sa contribution à la lumière sortante.

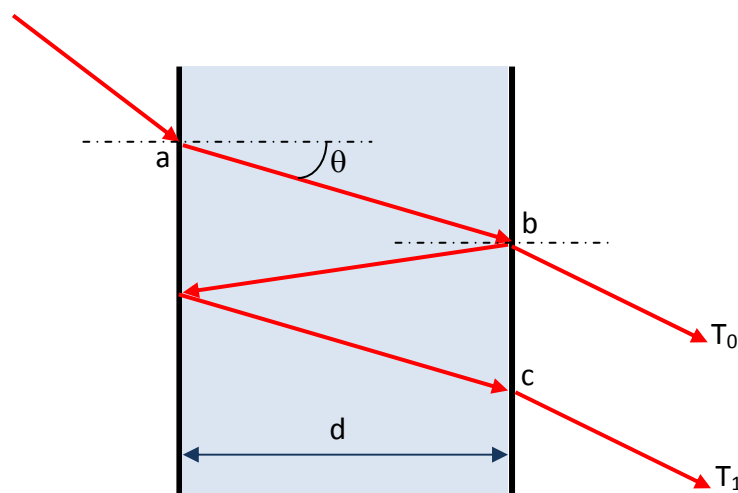


Fig. IV.2: schéma de principe d'un interféromètre Fabry-Perot : les rayons lumineux sont réfléchis à l'intérieur de la cavité, et en ressortent partiellement.

Les rayons sortants par la deuxième surface aux points b et c n'ont pas parcouru la même longueur de trajet (ou chemin optique). Ainsi, ils présentent un déphasage φ l'un par rapport à l'autre, dépendant de l'angle θ . Ces deux rayons interfèrent entre eux ainsi qu'avec tous les autres rayons qui auront été réfléchis plusieurs fois entre les deux surfaces réfléchissantes. Selon la valeur de θ , le rayon est transmis ou pas. On s'aperçoit en fait que seules quelques valeurs de θ permettent de transmettre la lumière du rayon incident. La transmittance est maximale lorsque les ondes se retrouvent en phase après un aller-retour, donnant lieu à des interférences constructives, c'est-à-dire lorsque le chemin optique nd dans la cavité est un multiple entier de la longueur d'onde.

Plus précisément, la transmittance (coefficient de transmission) est donnée par l'expression suivante :

$$T = \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \sin^2\left(\frac{\varphi}{2}\right)} \quad \text{IV.1}$$

où :

$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} \delta$$

et $\delta = 2nd\cos\theta$

donc :

$$\varphi = \frac{4\pi}{\lambda} nd\cos\theta \quad \text{IV.2}$$

- ☞ δ : La différence de marche subie par la lumière après un aller-retour.
- ☞ $R = R_1 = R_2$: Coefficient de réflexion de chaque interface.
- ☞ θ : Angle d'incidence interne.

Notons qu'en pratique, la variation de φ est soit une variation de d , soit de λ , soit de n .

La transmittance en fonction de λ présente des pics séparés de $\delta\lambda$ et d'une largeur $\Delta\lambda$. Cette courbe varie en fonction de l'angle θ . (Fig. IV.3)

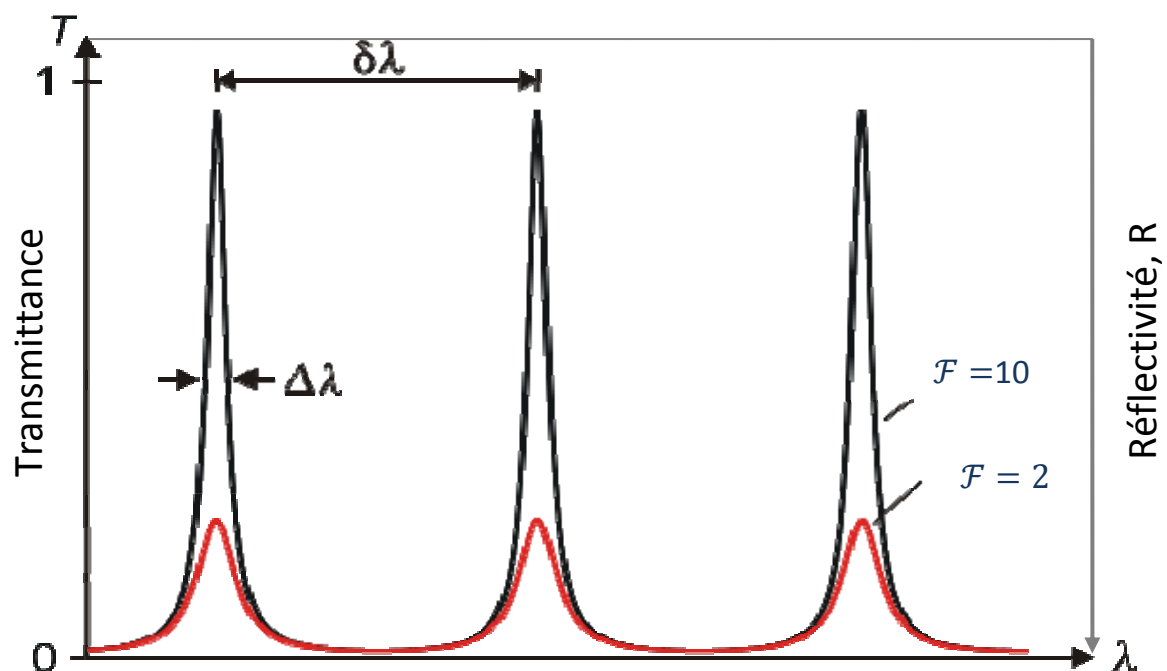


Fig .IV.3 : Courbe de transmittance T de l'interféromètre de Fabry-Perot en fonction de la longueur d'onde.

4. Finesse de l'interféromètre :

Un interféromètre de bonne qualité présente un $\Delta\lambda$ beaucoup plus faible que $\delta\lambda$, pour simplifier on utilise la grandeur suivante, appelée finesse :

$$\mathcal{F} = \frac{\delta\lambda}{\Delta\lambda} = \frac{\delta\varphi}{\Delta\varphi} \quad \text{IV.3}$$

ou encore :

$$\mathcal{F} = \pi \frac{\sqrt{R}}{1 - R} \quad \text{IV.4}$$

La finesse \mathcal{F} est d'autant plus grande que les pics sont étroits. Afin d'augmenter cette finesse, il est possible de rendre les surfaces formant la cavité très réfléchissantes. En effet, on peut montrer, comme l'illustre la courbe de la figure IV.4, que la finesse augmente avec le coefficient de réflexion des surfaces.

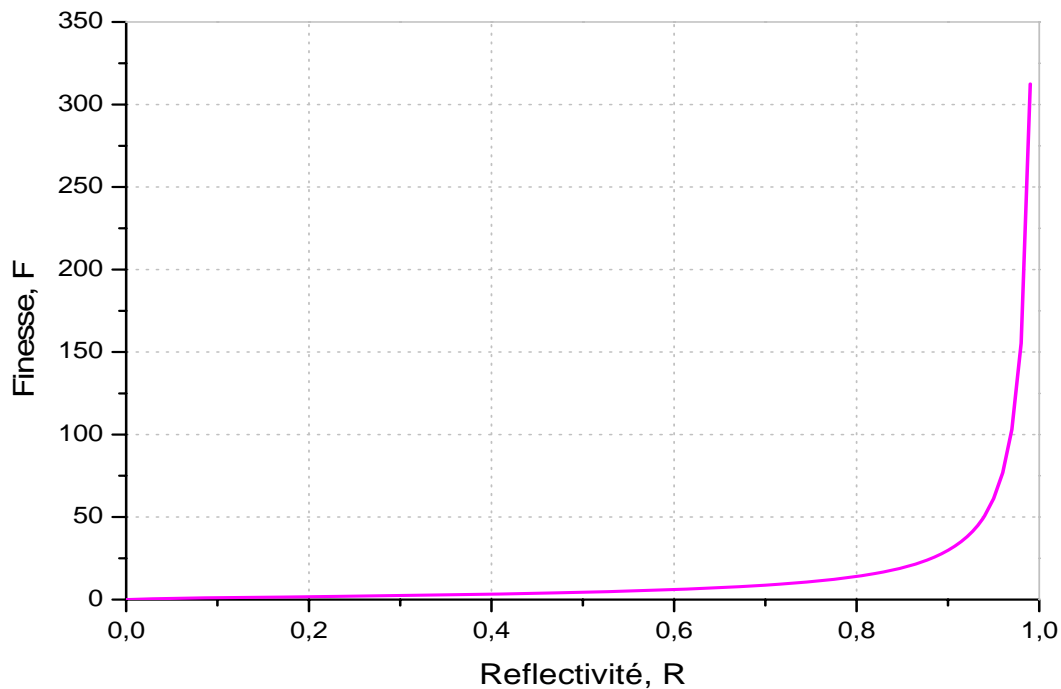


Fig .IV.4: Courbe représentant la finesse d'un interféromètre de Fabry-Pérot en fonction du coefficient de réflexion des miroirs formant la cavité.

Dans le commerce, les interféromètres Fabry-Perot peuvent avoir des finesesses valant quelques dizaines voir quelques centaines. Cette finesse élevée est un atout important de ce type d'interféromètre par rapport à l'interféromètre de Michelson, qui a une finesse de 2.

5. Caractérisation d'une microcavité Fabry-Perot

5.1 Géométrie de la microcavité et paramètres caractéristiques:

Nous tenons à préciser que le couplage du polariton est produit par l'utilisation d'un prisme optique en silice portant le dépôt en couche mince d'un matériau donné (Au ou Ag). Ce dispositif est illustré par la figure (a). Le polariton étant généré à l'interface prisme/métal, son champ évanescent est ensuite modifié par la présence d'une microcavité comme illustrée par la figure (b).

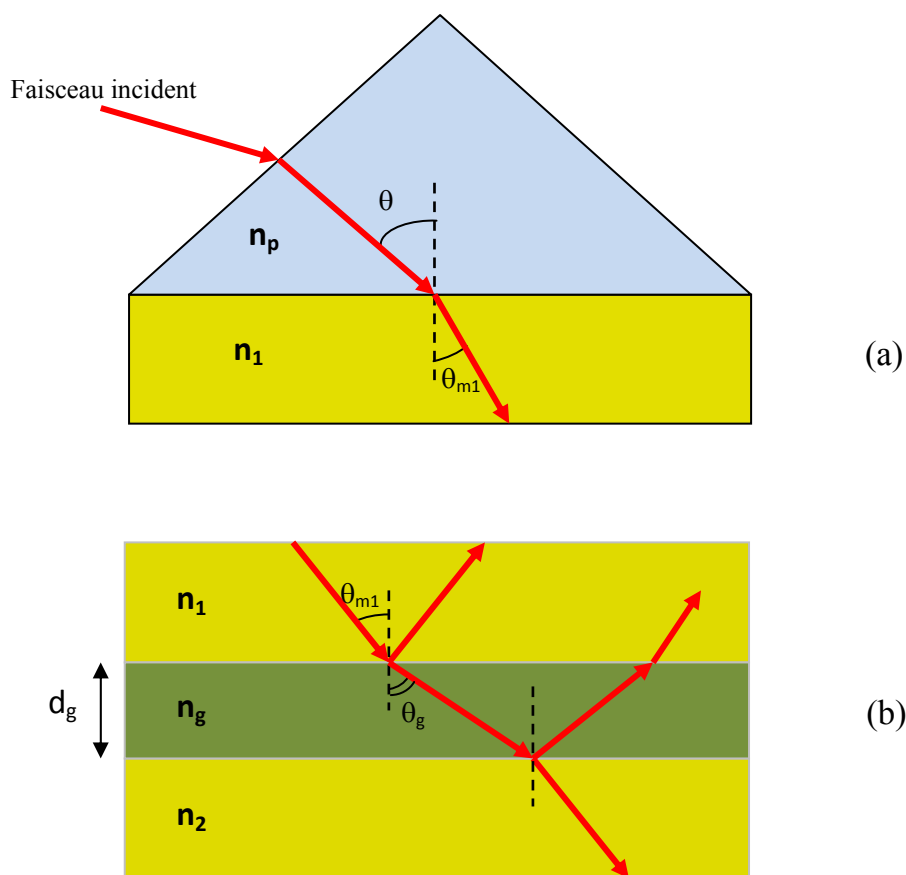


Fig. IV.5 : Schéma illustratif de la microcavité (a) Couplage par prisme optique, (b) miroirs métalliques de la microcavité (Au/gap diélectrique/Au).

En pratique, les deux configurations sont associées pour constituer une structure unique de paramètres n_1 , n_2 , n_g et n_p . Les paramètres sont résumés dans la table. IV.1.

5.2. Paramètres optiques de la structure:

Longueur d'onde		751 nm	
Permittivité du miroir up		$\epsilon_{Au} = -20.61 + i 1.27$	
Indice de réfraction du métal (l'Or)		$n_1 = n_2 = 0.14$	
Indice de réfraction		$n_g = 1$	
Epaisseur du gap		dg = 45 nm	
Les angles de la géométrie	mode m=0	θ_{spr}	48.52°
		θ_{m1}	13.96°
		θ_g	90°
	mode m=1	θ_{spr}	9.22°
		θ_{m1}	2.95°
		θ_g	13.4°
Taux de réflexion (R)	mode m=0	R_1	7.7%
	mode m=1	R_2	14%

Tableau IV.1. Paramètres optiques de la structure illustrée dans la fig. IV.5

5.3 . Réponse optique de la microcavité

En ayant exploité analytiquement l'expression de la réflectivité exprimée par l'équation III.19 évaluée dans les conditions paramétriques indiquées dans la fig. IV. 6, nous obtenons le profil de la réponse angulaire de deux ordres m=0, 1 des modes plasmons de la microcavité. Ainsi, nous procédons aux calculs des différents paramètres tels que la finesse, déphasage, largeur à mi-hauteur, absorbance et durée de vie du photon à l'intérieur de la microcavité.

– Mode plasmon d'ordre m = 0

a) la finesse des piques de résonance

$$\mathcal{F} = \pi \frac{\sqrt{R}}{1 - R}$$

$$\mathcal{F}_0 = \pi \frac{\sqrt{R}}{1 - R} = 3.14 \times \frac{\sqrt{0.14}}{1 - 0.14} = 1.36$$

b) le déphasage

$$\varphi = 2 \cos \theta_g \left(n_g d_g \frac{\omega}{c} \right)$$

avec

$$\omega = \frac{2 \pi c}{\lambda}$$

et

$$\cos \theta_g = \sqrt{1 - \sin^2 \theta_g} = \sqrt{1 - \left(\frac{n_p}{n_g} \sin \theta_{SPR} \right)^2}$$

soit

$$\varphi = \frac{4 \pi}{\lambda} n_g d_g \sqrt{1 - \left(\frac{n_p}{n_g} \sin \theta_{SPR} \right)^2}$$

IV.5

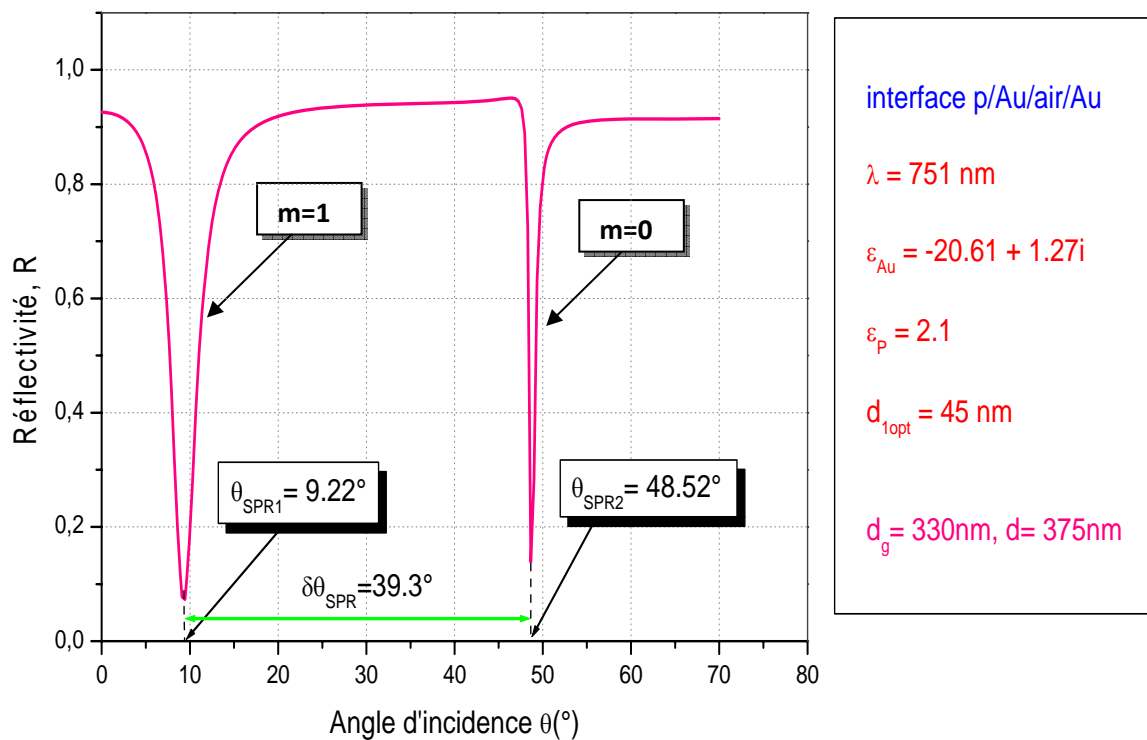


Fig. IV. 6 : Comportement de la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence dans les conditions paramétriques indiquées dans la fenêtre d la figure.

Pour le mode plasmon de surface d'ordre $m=0$ où l'angle plasmon $\theta_{SPR} = 48.52^\circ$ est supérieur à l'angle critique $\theta_c = 43.8^\circ$ c'est-à-dire en régime de réflexion totale, la quantité $\sqrt{1 - \left(\frac{n_p}{n_g} \sin\theta_{SPR}\right)^2}$ dans l'équation IV.5 devient imaginaire, l'onde transmise a un comportement particulier. Elle se propage parallèlement à l'interface et s'atténue exponentiellement dans la direction perpendiculaire à la surface, d'où son nom d'*onde évanescente*.

En conséquence, le terme de déphasage ne peut être calculé.

– **Mode plasmon d'ordre $m = 1$**

a. la finesse des piques de résonance

$$\mathcal{F} = \pi \frac{\sqrt{R}}{1 - R}$$

$$\mathcal{F}_1 = \pi \frac{\sqrt{R}}{1 - R} = 3.14 \times \frac{\sqrt{0.077}}{1 - 0.077} = 0.94$$

b. le déphasage

$$\varphi = 2 \cos\theta_g \left(n_g d_g \frac{\omega}{c} \right)$$

$$\varphi = \frac{4\pi}{\lambda} n_g d_g \sqrt{1 - \left(\frac{n_p}{n_g} \sin\theta_{SPR}\right)^2}$$

$$\varphi = \frac{4\pi}{751} \times 1 \times 45 \times \sqrt{1 - \left(\frac{1.45}{1} \sin 9.22\right)^2}$$

$$\varphi = 0.66$$

c. largeur à mi hauteur

$$\Gamma_c = \frac{\hbar c}{n_g d_g \cos\theta_g} \frac{1 - R}{\sqrt{R}} \quad \text{IV.6}$$

$$\Gamma_c = \frac{6.62 \times 10^{-34} \times 3 \times 10^8}{2 \times \pi \times 1 \times 45 \times 10^{-9} \times \cos 13.4} \frac{1 - 0.077}{\sqrt{0.077}}$$

$$\Gamma_c = 2.4 \times 10^{-18} \text{ s}^{-1}$$

d. la durée de vie du photon

$$\tau_{ph} = \frac{\hbar}{\Gamma_c} \quad IV.7$$

$$\tau_{ph} = \frac{6.62 \times 10^{-34}}{2 \times \pi \times 2.4 \times 10^{-18}} = 4.39 \times 10^{-17} s$$

e. l'absorbance

En tenant compte des expressions des intensités lumineuses au voisinage des interfaces de la microcavité, nous exprimons l'absorbance par :

$$A = -\log \frac{I_t}{I_i} \quad IV.8$$

où l'intensité transmise I_t est reliée à l'intensité incidente I_i par la relation :

$$I_t = I_i \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \sin^2 \frac{\varphi}{2}} \quad IV.9$$

Soit

$$A = -\log \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \sin^2 \frac{\varphi}{2}}$$

avec

$$\varphi = \frac{4\pi}{\lambda} d_g \cos \theta_g$$

donc :

$$A = -\log \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \sin^2 \left(\frac{2\pi}{\lambda} d_g \cos \theta_g \right)} \quad IV.10$$

$$A = 1.4 \times 10^{-5}$$

Conclusion générale

Dans ce mémoire nous avons reporté l'étude analytique des propriétés des plasmons de surface sur des films métalliques de géométrie plane disposés dans la configuration conventionnelle de Kretschmann. Cette dernière constitue un dispositif de base pour observer la résonance des plasmons de surface résultante d'une excitation par une onde évanescente d'un mode d'oscillation collective d'électrons libres à la surface d'une mince couche métallique. La dite structure se base sur la technique de réflexion totale atténuée (ATR). Pour un petit détail de terminologie, nous précisons qu'il est désormais introduit la notion de plasmon-polariton de surface. Un polariton désigne un mode couplé entre un photon et une autre particule (électron, plasmon, phonon, ...). Dans la désignation plasmon-polariton de surface c'est la notion de mode couplé entre une onde électromagnétique et une oscillation des électrons libres à la surface d'un métal. La fréquence d'oscillation de ces modes est alors exprimée par la relation de dispersion pour un vecteur d'onde donné. Les plasmons-polaritons de surface également appelés plus brièvement plasmons de surface, sont des phénomènes d'une interface (métal-diélectrique) de part et d'autre de laquelle le champ présente un caractère évanescent (décroissance exponentielle en s'écartant de l'interface). La caractéristique principale à laquelle est reconnue l'étude des plasmons est que leur énergie est très fortement localisée au niveau de l'interface. Cette propriété remarquable a ouvert un grand nombre d'applications plus courantes en plasmonique pour citer la détection, l'émission et le guidage optique. Pour se faire, différents moyens existent pour exciter les plasmons –polaritons avec une onde électromagnétique sur des structures. Parmi ces moyens dont la technique classique repose sur la réflexion totale, nous avons présenté une nouvelle configuration basée sur la constitution du guide métal-diélectrique-métal de dimension finie. Les performances du guide permettant la

propagation des modes plasmons –polaritons sont améliorés selon les propriétés des matériaux et de la géométrie du guide. Finalement, ce type de guide se classe parmi les applications les plus courantes en plasmonique dans les domaines de la détection, l'émission et le guidage optique.

Annexes

Constantes optiques de l'Argent et l'Or - P.B.Johnson et R.W.Christy-

valeurs : λ , ϵ_r , ϵ_i pour l'Argent Ag							
E(ev)	E(j)	$\lambda(m)$	$\lambda(A^\circ)$	n	k	ϵ_r	ϵ_i
0,64	1,024E-19	1,93945E-06	19394,53	0,24	14,08	-198,19	6,76
0,77	1,232E-19	1,61201E-06	16120,13	0,15	11,85	-140,40	3,56
0,89	1,424E-19	1,39466E-06	13946,63	0,13	10,10	-101,99	2,63
1,02	1,632E-19	1,21691E-06	12169,12	0,09	8,828	-77,93	1,59
1,14	1,824E-19	1,08882E-06	10888,16	0,04	7,795	-60,76	0,62
1,26	2,016E-19	9,85119E-07	9851,19	0,04	6,992	-48,89	0,56
1,39	2,224E-19	8,92986E-07	8929,86	0,04	6,312	-39,84	0,50
1,51	2,416E-19	8,2202E-07	8220,20	0,04	5,727	-32,80	0,46
1,64	2,624E-19	7,5686E-07	7568,60	0,03	5,242	-27,48	0,31
1,76	2,816E-19	7,05256E-07	7052,56	0,04	4,838	-23,40	0,39
1,88	3,008E-19	6,60239E-07	6602,39	0,05	4,483	-20,09	0,45
2,01	3,216E-19	6,17537E-07	6175,37	0,06	4,152	-17,24	0,50
2,13	3,408E-19	5,82746E-07	5827,46	0,05	3,858	-14,88	0,39
2,26	3,616E-19	5,49226E-07	5492,26	0,06	3,586	-12,86	0,43
2,38	3,808E-19	5,21534E-07	5215,34	0,05	3,324	-11,05	0,33
2,50	4E-19	4,965E-07	4965,00	0,05	3,093	-9,56	0,31
2,63	4,208E-19	4,71958E-07	4719,58	0,05	2,869	-8,23	0,29
2,75	4,4E-19	4,51364E-07	4513,64	0,04	2,657	-7,06	0,21
2,88	4,608E-19	4,3099E-07	4309,90	0,04	2,462	-6,06	0,20
3,00	4,8E-19	4,1375E-07	4137,50	0,05	2,275	-5,17	0,23
3,12	4,992E-19	3,97837E-07	3978,37	0,05	2,070	-4,28	0,21
3,25	5,2E-19	3,81923E-07	3819,23	0,05	1,864	-3,47	0,19
3,37	5,392E-19	3,68323E-07	3683,23	0,07	1,657	-2,74	0,23
3,50	5,6E-19	3,54643E-07	3546,43	0,10	1,419	-2,00	0,28
3,62	5,792E-19	3,42887E-07	3428,87	0,14	1,142	-1,28	0,32
3,74	5,984E-19	3,31885E-07	3318,85	0,17	0,829	-0,66	0,28
3,87	6,192E-19	3,20736E-07	3207,36	0,81	0,392	0,50	0,64
3,99	6,384E-19	3,1109E-07	3110,90	1,13	0,616	0,90	1,39
4,12	6,592E-19	3,01274E-07	3012,74	1,34	0,964	0,87	2,58
4,24	6,784E-19	2,92748E-07	2927,48	1,39	1,161	0,58	3,23
4,36	6,976E-19	2,8469E-07	2846,90	1,41	1,264	0,39	3,56
4,49	7,184E-19	2,76448E-07	2764,48	1,41	1,331	0,22	3,75
4,61	7,376E-19	2,69252E-07	2692,52	1,38	1,372	0,02	3,79
4,74	7,584E-19	2,61867E-07	2618,67	1,35	1,387	-0,10	3,74
4,86	7,776E-19	2,55401E-07	2554,01	1,33	1,393	-0,17	3,71
4,98	7,968E-19	2,49247E-07	2492,47	1,31	1,389	-0,21	3,64
5,11	8,176E-19	2,42906E-07	2429,06	1,30	1,378	-0,21	3,58
5,23	8,368E-19	2,37333E-07	2373,33	1,28	1,367	-0,23	3,50
5,36	8,576E-19	2,31576E-07	2315,76	1,28	1,357	-0,20	3,47
5,48	8,768E-19	2,26505E-07	2265,05	1,26	1,344	-0,22	3,39
5,60	8,96E-19	2,21652E-07	2216,52	1,25	1,342	-0,24	3,36
5,73	9,168E-19	2,16623E-07	2166,23	1,22	1,336	-0,30	3,26
5,85	9,36E-19	2,12179E-07	2121,79	1,20	1,325	-0,32	3,18
5,98	9,568E-19	2,07567E-07	2075,67	1,18	1,312	-0,33	3,10
6,10	9,76E-19	2,03484E-07	2034,84	1,15	1,296	-0,36	2,98
6,22	9,952E-19	1,99558E-07	1995,58	1,14	1,277	-0,33	2,91
6,35	1,016E-18	1,95472E-07	1954,72	1,12	1,255	-0,32	2,81
6,47	1,0352E-18	1,91847E-07	1918,47	1,10	1,232	-0,31	2,71
6,60	1,056E-18	1,88068E-07	1880,68	1,07	1,212	-0,32	2,59

valeurs : λ , ϵ_r , ϵ_i pour l'Or (Au)

$E(\text{ev})$	$E(j)$	$\lambda(\text{m})$	$\lambda(\text{A}^\circ)$	n	k	ϵ_r	ϵ_i
0,64	1,024E-19	1,9395E-06	19394,53	0,92	13,78	-189,04	25,36
0,77	1,232E-19	1,612E-06	16120,13	0,56	11,21	-125,35	12,56
0,89	1,424E-19	1,3947E-06	13946,63	0,43	9,515	-90,35	8,18
1,02	1,632E-19	1,2169E-06	12169,12	0,35	8,145	-66,22	5,70
1,14	1,824E-19	1,0888E-06	10888,16	0,27	7,15	-51,05	3,86
1,26	2,016E-19	9,8512E-07	9851,19	0,22	6,35	-40,27	2,79
1,39	2,224E-19	8,9299E-07	8929,86	0,17	5,663	-32,04	1,93
1,51	2,416E-19	8,2202E-07	8220,20	0,16	5,083	-25,81	1,63
1,64	2,624E-19	7,5686E-07	7568,60	0,14	4,542	-20,61	1,27
1,76	2,816E-19	7,0526E-07	7052,56	0,13	4,103	-16,82	1,07
1,88	3,008E-19	6,6024E-07	6602,39	0,14	3,697	-13,65	1,04
2,01	3,216E-19	6,1754E-07	6175,37	0,21	3,272	-10,66	1,37
2,13	3,408E-19	5,8275E-07	5827,46	0,29	2,863	-8,11	1,66
2,26	3,616E-19	5,4923E-07	5492,26	0,43	2,455	-5,84	2,11
2,38	3,808E-19	5,2153E-07	5215,34	0,62	2,081	-3,95	2,58
2,50	4E-19	4,965E-07	4965,00	1,04	1,833	-2,28	3,81
2,63	4,208E-19	4,7196E-07	4719,58	1,31	1,849	-1,70	4,84
2,75	4,4E-19	4,5136E-07	4513,64	1,38	1,914	-1,76	5,28
2,88	4,608E-19	4,3099E-07	4309,90	1,45	1,948	-1,69	5,65
3,00	4,8E-19	4,1375E-07	4137,50	1,46	1,958	-1,70	5,72
3,12	4,992E-19	3,9784E-07	3978,37	1,47	1,952	-1,65	5,74
3,25	5,2E-19	3,8192E-07	3819,23	1,46	1,933	-1,60	5,64
3,37	5,392E-19	3,6832E-07	3683,23	1,48	1,895	-1,40	5,61
3,50	5,6E-19	3,5464E-07	3546,43	1,5	1,866	-1,23	5,60
3,62	5,792E-19	3,4289E-07	3428,87	1,48	1,871	-1,31	5,54
3,74	5,984E-19	3,3189E-07	3318,85	1,48	1,883	-1,36	5,57
3,87	6,192E-19	3,2074E-07	3207,36	1,54	1,898	-1,23	5,85
3,99	6,384E-19	3,1109E-07	3110,90	1,53	1,893	-1,24	5,79
4,12	6,592E-19	3,0127E-07	3012,74	1,53	1,889	-1,23	5,78
4,24	6,784E-19	2,9275E-07	2927,48	1,49	1,878	-1,31	5,60
4,36	6,976E-19	2,8469E-07	2846,90	1,47	1,869	-1,33	5,49
4,49	7,184E-19	2,7645E-07	2764,48	1,43	1,847	-1,37	5,28
4,61	7,376E-19	2,6925E-07	2692,52	1,38	1,803	-1,35	4,98
4,74	7,584E-19	2,6187E-07	2618,67	1,35	1,749	-1,24	4,72
4,86	7,776E-19	2,554E-07	2554,01	1,33	1,688	-1,08	4,49
4,98	7,968E-19	2,4925E-07	2492,47	1,33	1,631	-0,89	4,34
5,11	8,176E-19	2,4291E-07	2429,06	1,32	1,577	-0,74	4,16
5,23	8,368E-19	2,3733E-07	2373,33	1,32	1,536	-0,62	4,06
5,36	8,576E-19	2,3158E-07	2315,76	1,30	1,497	-0,55	3,89
5,48	8,768E-19	2,2651E-07	2265,05	1,31	1,46	-0,42	3,83
5,6	8,96E-19	2,2165E-07	2216,52	1,3	1,427	-0,35	3,71
5,73	9,168E-19	2,1662E-07	2166,23	1,30	1,387	-0,23	3,61
5,85	9,36E-19	2,1218E-07	2121,79	1,30	1,35	-0,13	3,51
5,98	9,568E-19	2,0757E-07	2075,67	1,30	1,304	-0,01	3,39
6,10	9,76E-19	2,0348E-07	2034,84	1,33	1,277	0,14	3,40
6,22	9,952E-19	1,9956E-07	1995,58	1,33	1,251	0,20	3,33
6,35	1,016E-18	1,9547E-07	1954,72	1,34	1,226	0,29	3,29
6,47	1,0352E-18	1,9185E-07	1918,47	1,32	1,203	0,30	3,18
6,60	1,056E-18	1,8807E-07	1880,68	1,28	1,188	0,23	3,04

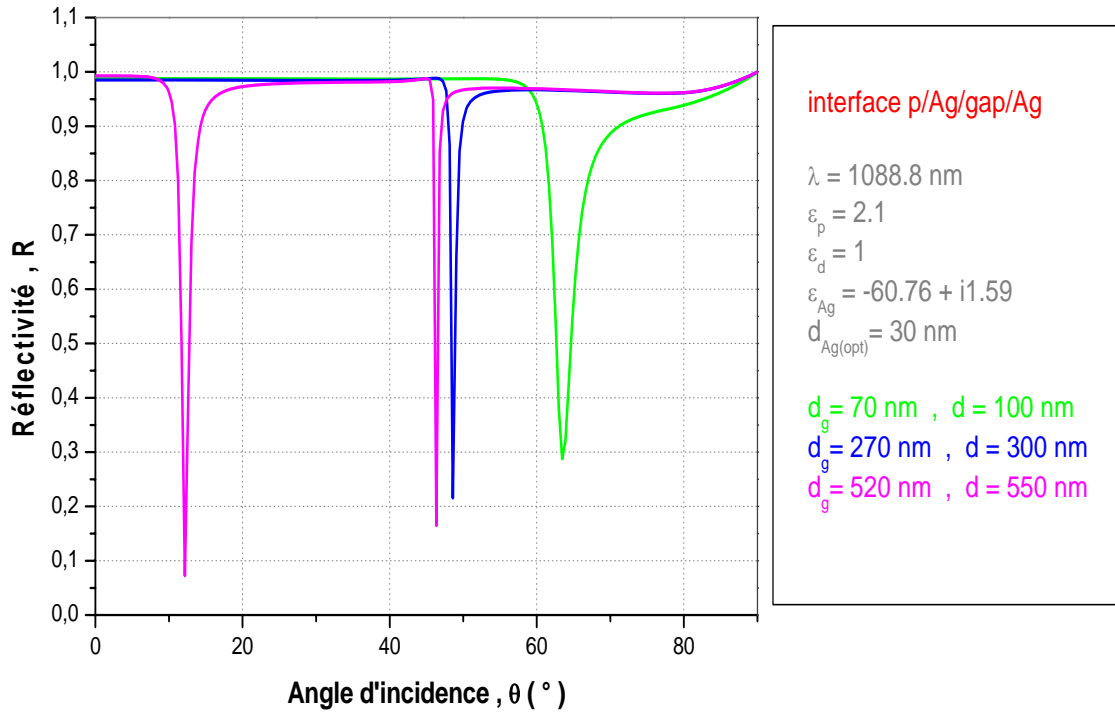


Fig.B.1: Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Ag-gap-Ag**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

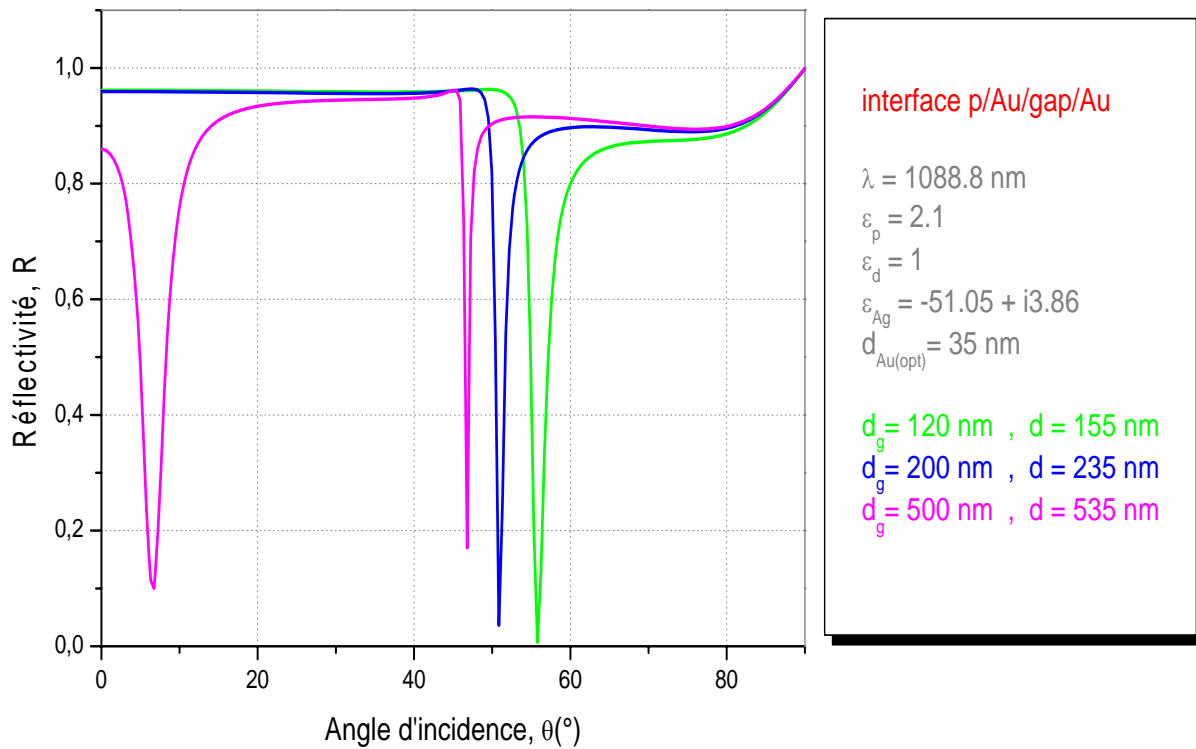


Fig. B.2: Simulations numériques de la sélectivité angulaire de la structure à quatre couches (interface : **prisme-Au-gap-Au**) pour différentes épaisseurs du gap d_g .

Résumé. Nous avons étudié les modes de résonance générés dans une microcavité dont les parois sont des milieux matériels espacés d'un milieu gap. Les caractéristiques de ces modes de surface sont contrôlées de façon déterminante sur la nature et l'épaisseur du milieu gap. Cette structure élaborée depuis la configuration typique de Kretschmann-Raether confine les modes plasmoniques de différents ordres. Cependant, la manipulation de ces modes est fortement sensible à l'épaisseur du milieu gap puisque la microcavité admet deux régimes de fonctionnement. Autrement dit, pour une épaisseur du milieu gap notée d_g dans l'ordre de grandeur inférieur à λ (longueur d'onde de l'onde électromagnétique incidente), la microcavité ne piège qu'un seul ordre de mode plasmonique. Dans la condition où $d_g = \frac{\lambda}{2}$ plusieurs ordres m_i de modes plasmoniques sont excités et répartis angulairement. La caractérisation de telle structure fonctionne comme une microcavité F-P qui sert comme un dispositif pour l'asservissement en fréquence des sources Lasers.

Mots clés : modes de résonance, microcavité, caractérisation de structure.

Abstract . We report the study of resonant modes generated in a microcavity where dielectric walls are materials separated by a dielectric gap. Surface modes characteristics are efficiently controlled on the nature and the thickness of the dielectric gap. The elaborated structure from the typical Kretschmann-Raether configuration confine plasmonique modes of different orders. However, the manipulation of these modes are strongly sensitive to the dielectric gap thickness because the microcavity admits two functioning regime. Otherwise for thickness d_g of the gap more less than the wavelength, λ of the incident wave; the microcavity tripe one order of the plasmonique mode. In the condition of $d_g = \frac{\lambda}{2}$ several orders m_i of plasmonique modes are excited and angularly reparted. The characterization of such structure has a role of Fabry-Perot microcavity which can be used as device to look Laser sources in frequency.

Key words. Resonant modes, Microcavity, Structure characterization.

المخلص: العمل الوارد في هذه المذكرة يتعلق بدراسة أنماط التجاوب المتولدة داخل تجويف جدرانه عبارة عن أوساط مادية يفصل بينها فجوة. مميزات أنماط التجاوب هذه متعلقة تحديدا بطبيعة و سمك الوسط الذي يتواجد بالفجوة. هذا التركيب المطابق لنموذج كريتشمان-ريذر (Kretschmann-Raether) يسمح بحصر و حبس أنماط تجاوب بلاسمونية ذات رتب مختلفة. غير أن التحكم بكفاءة في هذه الأنماط يتعلق بشكل أساسي بسمك الوسط الذي يشكل الفجوة بحيث يمكن للتجويف أن يشتغل بنظامين. بعبارة أخرى، عندما يكون سمك الفجوة و الذي نرسم له بـ d_g أصغر من طول الموجة λ (طول الموجة الكهرومغناطيسية الواردة)، فإن التجويف لا يمكنه أن يحبس إلا رتبة واحدة للنمط البلاسموني. أما في الحالة التي يكون فيها $d_g = \frac{\lambda}{2}$ ، أي أن سمك الفجوة يساوي نصف طول الموجة تتولد مجموعة من رتب الأنماط البلاسمونية ذات توزيع زاوي.

ميزة مثل هذه التركيب أنها تعمل كتجويف فابري-بيرو (Fabry-Perot) و الذي يستخدم كتجهيز للتحكم في تردد منابع الليزر.

الكلمات المفتاحية: أنماط التجاوب، تجويف، ميزة التركيب.