



HAL
open science

Nanoantennes plasmoniques

Florian Bigourdan

► **To cite this version:**

Florian Bigourdan. Nanoantennes plasmoniques. Optique [physics.optics]. Institut d'Optique Graduate School, 2014. Français. NNT : 2014IOTA0020 . tel-01143865

HAL Id: tel-01143865

<https://pastel.hal.science/tel-01143865>

Submitted on 20 Apr 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

INSTITUT D'OPTIQUE GRADUATE SCHOOL

ÉCOLE DOCTORALE ONDES ET MATIERE

DISCIPLINE Physique

THÈSE

pour l'obtention du grade de Docteur en science de l'Institut d'Optique
Graduate School

préparée au Laboratoire Charles Fabry

soutenue le 18/12/2014

par

Florian BIGOURDAN

Nanoantennes plasmoniques

Directeur de thèse : Jean-Jacques GREFFET – Institut d'Optique

Composition du jury :

Présidente du jury : Béatrice DAGENS – Institut d'Electronique Fondamentale

Rapporteurs : Nicolas BONOD – Institut Fresnel

Antoine MOREAU – Institut Pascal

Examineurs : Lukas NOVOTNY – ETH Zurich

Elizabeth BOER-DUCHEMIN – Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay

Membre invité : Philippe ADAM – DGA/DS/MRIS

Résumé

Dans ce travail de thèse, on s'intéresse aux applications des concepts d'antenne pour la manipulation de la lumière. Aux fréquences optiques, les antennes métalliques font intervenir des modes de surfaces dit "plasmoniques" permettant une forte interaction lumière/matière dans des volumes hautement confinés. Pour tirer partie de cette propriété, on s'intéressera à trois applications des antennes plasmoniques. D'abord dans le cadre des sources de photons uniques, on présentera une étude théorique et expérimentale des performances d'émetteurs uniques en présence d'une antenne planaire métallique. Nous proposerons ensuite une stratégie pour améliorer les performances de l'antenne. Puis dans le cadre de la génération électrique de lumière par effet tunnel inélastique, on analysera la modification des propriétés de rayonnement en présence d'un petit cylindre métallique. Cette analyse ouvre la voie à la conception de sources électriques intégrées de plasmons de surface. Enfin dans le cadre de la détection de molécules en faible quantité, on étudiera théoriquement l'interaction d'un faisceau infrarouge avec une couche de molécules résonnantes déposées sur un miroir métallique nanostructuré.

Abstract

The work of this thesis has been devoted to a few applications of antenna concepts for the manipulation of light. In the optical range, surface modes called surface plasmon polaritons take place in the vicinity of metallic antennas, enabling a strong light/matter interaction within highly confined volumes. In order to take advantage of this property, three applications of plasmonic antennas will be investigated. First, in the case of single-photon sources, both theoretical and experimental studies of single-emitters performance when coupled to a planar metallic antenna will be presented. A strategy to enhance its performance will be studied theoretically. Then, in the case of electrical generation of light by inelastic electron tunneling, we will analyse the modification of radiation properties close to a metallic nano-rod. This analysis paves the way towards the design of integrated, compact electrical sources of surface plasmons. Finally, in the case of detecting a weak quantity of molecules, the interaction between an infrared light beam and a sub-nanometric layer of resonant molecules deposited on a nanostructured metallic mirror will be studied.

"Y yo, mínimo ser,
ebrio del gran vacío
constelado,
a semejanza, a imagen
del misterio,
me sentí parte pura
del abismo,
rodé con las estrellas,
mi corazón se desató en el viento."

Extrait de "La Poesia", *Memorial de Isla Negra*, Pablo Neruda, 1964.

Remerciements

Pour le lecteur de ce manuscrit, tout commence par ces quelques pages. Pour moi, l'aventure de la thèse se termine ici. Si la tradition veut que j'exprime mes remerciements à mon entourage de ces trois dernières années, nulle ne me forcera à le faire. Non pas que je ne souhaite pas le faire, bien au contraire. Mais quand bien même trouver les mots justes semblerait un défi sans issue triomphante, je vais malgré tout m'y consacrer avec grand plaisir au travers de ces quelques lignes.

Car du plaisir, de la passion, des découvertes, des rires et des émotions, j'en ai eu à vos côtés. Cette aventure n'aurait probablement jamais commencé sans une première découverte. Car avant d'être doctorant, j'ai eu la chance de suivre à l'IOGS les cours d'électromagnétisme puis de physique statistique de Jean-Jacques Greffet et de François Marquier. Leur vision profonde des phénomènes physiques et la pédagogie légendaire avec laquelle ils transmettent leur savoir m'ont laissé admiratif. Lorsque plus tard j'ai suivi le cours d'optique dans les milieux complexes de Rémi Carminati, ancien doctorant de Jean-Jacques, j'ai compris que travailler à leur côté m'apporterait une richesse incommensurable.

Et je n'ai pas été déçu du voyage ! Si je n'ai pas été un des élèves les plus brillants, j'ai pu du moins m'abreuver à cette source intarissable de connaissances passionnantes, autant physiques que culturelles. Alors, Jean-Jacques et François, je vous remercie tous les deux, pour votre dévotion à l'enseignement et à la beauté de la recherche, à faire en sorte que des gens comme moi puissent comprendre la nature qui nous entoure. Vous avez su raviver en moi l'enfant émerveillé, et pour cela ma reconnaissance est sans borne. Votre disponibilité, votre patience, votre soutien respectif et vos précieux conseils ont fait de cette thèse une expérience des plus enrichissantes.

Une seconde découverte au début de ma thèse m'a porté vers le haut. Un homme singulier aux compétences et à la rigueur incroyables. Un homme d'une extrême gentillesse, disponible pour tous et qui ne travaille que par passion des mathématiques. Je veux bien sûr parler de Jean-Paul Hugonin. Jean-Paul, si tu ne te considères pas comme un bon enseignant, à tes côtés j'ai énormément appris. Et je ne m'avance pas trop pour m'autoriser à dire qu'une lignée d'élèves te porte une telle reconnaissance. Ton plaisir partagé de discuter et de résoudre des énigmes et des problèmes "mathématiques" me manquera autant que ton amitié.

Chaque chercheur du groupe a apporté sa pierre à "l'édifice" de cette thèse. Philippe Lallane, avec qui j'ai eu la chance de collaborer le temps d'un article. Christophe Sauvan, qui m'a apporté sa rigueur, son esprit critique et pertinent qui m'ont guidé dans mes recherches et avec qui j'ai pris plaisir à travailler ces derniers temps. Henri Benisty, après avoir été un enseignant de qualité, tu as toujours eu la faculté de nous épater par l'immensité de ton savoir lors des repas et autres pauses cafés. Philippe Ben-Abdallah, qui a toujours pour

moi la taquinerie du jour. Ioanna Moldovan et Anne-Lise Coutrot qui, en plus d'être des chercheuses/ingénieurs de qualité, apportent la touche féminine nécessaire à ce groupe, et qui ont été pour moi de bons conseils.

Bien sûr, je n'oublierai pas mes différents camarades doctorants et post-docs : Simon, Benjamin, Mathieu, Anthony, Nir, Riccardo, Giovanni, Daniele, Marie-Christine et Nick. Il serait trop long de décrire ici ce qui vous rend chacun spécial. Et vous conviendrez que je suis bavard. Alors, malgré moi, je me limiterai à dire que votre interaction a contribué à faire de cette aventure une expérience humainement fructueuse.

Si le Laboratoire Charles Fabry, et le groupe NAPHEL en particulier, m'ont permis de rencontrer des personnes admirables, c'est sans compter celles qui ne font pas parties de notre laboratoire. Car aux prémices de ma thèse, j'ai eu la chance de collaborer et de découvrir des chercheurs provenant de laboratoires différents et qui m'ont très vite fait confiance lors de nos différentes interactions, malgré ma candeur d'esprit. Si je dois remercier Laurent Coolen de l'INSP, Benoît Dubertret de l'ESPCI ou encore Chérif Belacel qui était à l'époque en thèse au LPN et à l'INSP, pour leurs précieuses contributions à cette première collaboration, j'admets avoir davantage interagi avec Pascale Senellart et Agnès Maître, qui m'ont toujours soutenu au cours de ces trois années. Je suis très heureux d'avoir pu vous découvrir et croiser votre chemin.

Cette thèse ne serait pas terminée sans l'aval de chercheurs de renoms, pour qui j'étais un parfait inconnu mais qui ont tout de même pris le temps de juger la qualité de mes travaux. Ainsi, je souhaite remercier l'ensemble des membres de mon jury de thèse pour m'avoir fait cet honneur. D'abord mes deux rapporteurs, Antoine Moreau et Nicolas Bonod, qui ont dû analyser avec rigueur ce manuscrit, et qui ont été d'une gentillesse inespérée. Ensuite la présidente de mon jury Béatrice Dagens, ainsi que mes deux examinateurs Elisabeth Boer-Duchemin et Lukas Novotny, mais également Philippe Adam de DGA qui avait accepté mon invitation. Je vous remercie tous les six, certains d'entre-vous ont parcouru des centaines de kilomètres pour me consacrer quelques heures de votre temps. Vos commentaires, vos questions pertinentes et vos compliments m'ont beaucoup touché. J'ai toujours eu beaucoup d'appréhension pour ce jour décisif, et grâce à vous, je ne me suis jamais senti aussi à l'aise à l'oral. Vous avez contribué à faire de ce 18 Décembre 2015, une journée qui restera pour moi mémorable et exceptionnelle.

Je souhaite remercier trois enseignants qui m'ont tiré vers le haut. M. Bertrand, Mme Bonnefont et Mme Nottey qui m'ont donné l'envie de poursuivre des études scientifiques.

J'ai également une pensée toute particulière pour les deux encadrants de mon apprentissage, qui m'ont accueilli aux côtés de leurs collègues au CEA CESTA. Edouard et Vincent ont pris beaucoup de temps pour m'apporter le pragmatisme nécessaire pour devenir un bon ingénieur, et pour m'avoir très vite accepté malgré mes inepties. Je les en remercie beaucoup.

Enfin (et oui, il y a une fin!). Je souhaite remercier ma famille et mes amis. Ils m'ont toujours considéré comme un professeur Nimbus, aussi loufoque et incompréhensible qu'un professeur Tournesol, mais tous, à leur manière, m'ont accepté malgré ma folie et ma passion pour la Science.

Jannine, mon amie, ma fiancée, mon souffle de Joie, ma compagne d'une vie, je te dédie ces dernières lignes, pour commencer de nouvelles aventures trépidantes à tes côtés.

Table des matières

Introduction	11
1 Les méthodes numériques pour la modélisation d'antennes	15
1.1 Introduction	15
1.2 La symétrie E-H des équations de Maxwell	17
1.3 La méthode modale de Fourier pour l'analyse 2D	18
1.3.1 Les règles de factorisation dans l'espace de Fourier	18
1.3.2 La décomposition modale dans une couche	20
1.3.3 Les matrices S des champs tangentiels	22
1.3.4 La méthode modale de Fourier aperiodique	24
1.3.5 Les transformations de coordonnées réelles non-linéaires	26
1.4 Méthode modale de Fourier aperiodique pour l'analyse 3D d'objet de révolution	29
1.4.1 Définition du problème et principes de la méthode	30
1.4.2 Solutions dans une couronne radialement homogène	31
1.4.3 Résolution d'un problème de rayonnement avec une source dipolaire	35
1.4.4 Exemples	36
1.4.5 Discussions	43
1.4.6 Le cas d'une source centrée	45
1.5 Conclusion	45
1.6 Annexe	46
1.6.1 La matrice M	46
1.6.2 La matrice S	47
1.6.3 La matrice O	48
2 Les antennes patch métalliques pour des sources de photons uniques	49
2.1 Introduction	50
2.2 Quelques propriétés fondamentales des Quantum Dots	54
2.3 Plasmonique: augmenter le débit avec une large bande passante	56
2.3.1 L'effet Purcell	56
2.3.2 Plasmon, Quenching et cavité MIM	59
2.4 L'antenne patch : rayonner à haut débit et de façon directive.	64
2.4.1 Principes de l'antenne patch	64
2.4.2 Modification de l'émission spontanée	65
2.4.3 La directivité de l'antenne patch	69
2.5 Cas limites de l'effet Purcell	70
2.5.1 Cas limite: $\tau_{excitation} > 1/\gamma_{emetteur}$	70
2.5.2 Cas limite : $\gamma_{emetteur} > \gamma_{cav}$	70
2.5.3 Cas limite : le couplage fort	70

2.6	Passage à l'expérience	71
2.6.1	Les QDs de CdSe/CdS	71
2.6.2	La technique de fabrication	74
2.6.3	Propriétés spectrales et temporelles	77
2.6.4	Mesure de diagramme de rayonnement	79
2.7	Efficacité de l'antenne	83
2.8	Conclusion	84
3	Améliorer les performances des antennes patch	87
3.1	Expression générale du rendement radiatif d'une antenne	88
3.2	L'antenne patch: du visible vers le proche IR	91
3.2.1	Augmenter la longueur de propagation du mode plasmonique	92
3.2.2	Augmenter les pertes radiatives	98
3.2.3	Changer de matériaux?	101
3.3	L'antenne patch-bull's eye	102
3.4	L'antenne patch métallo-diélectrique	105
3.4.1	La stratégie diélectrique pour un patch infini	105
3.4.2	L'antenne patch hybride: le meilleur des deux mondes	108
3.5	Conclusion	111
4	Une antenne plasmonique pour une source électrique efficace de rayonnement	113
4.1	Introduction	113
4.2	Modélisation	117
4.3	Résultats numériques	118
4.4	Analyse des mécanismes physiques	120
4.5	Conclusion	124
4.6	Annexe	125
4.6.1	Décomposition sur une base modale cylindrique	125
4.6.2	L'intégrale de Lorentz pour le calcul de l'amplitude d'un mode.	126
4.6.3	Estimation de la puissance rayonnée dans le plasmon de surface	129
5	Nanoantennes pour la détection de molécules	131
5.1	Introduction	131
5.2	Le résonateur de Helmholtz optique	132
5.3	Effet d'un dépôt d'une couche de CO solide	137
5.4	Application à la détection de molécules	142
5.5	Limites de la modélisation	146
5.6	Conclusion	147
5.7	Annexe	149
5.7.1	Modèle LC du système de détection	149
5.7.2	Le régime de grande épaisseur	152
	Conclusion générale et perspectives	155
	Références	159

Introduction

Ce manuscrit de thèse s'inscrit dans le cadre de la nanophotonique, c'est-à-dire l'étude de l'interaction de la lumière et de la matière à l'échelle du nanomètre. En particulier, on s'intéresse aux applications du concept d'antenne pour la manipulation de la lumière. Ce concept, originaire du domaine des ondes radio, décrit des dispositifs contrôlant l'émission ou la réception d'une onde. Depuis la proposition pionnière de Dieter Pohl (Pohl 2000), de nombreux groupes de recherche ont appliqué ce concept dans le domaine électromagnétique visible. Plusieurs revues des différentes applications et de l'état de l'art des antennes optiques au début de ma thèse peuvent être trouvées dans les références (Novotny et Van Hulst 2011; Biagioni *et al.* 2012; Agio 2012). Trois spécificités les caractérisent.

D'abord, les antennes optiques doivent posséder une taille caractéristique de l'ordre du micron. Il faut donc faire appel aux techniques de fabrication des micro- voire nanotechnologies pour concevoir de tels objets.

Ensuite, pour qu'une source de lumière ou un absorbeur, tel qu'un atome ou une molécule, interagisse efficacement avec cette antenne, il faut que la distance qui les sépare soit très faible par rapport à la longueur d'onde. Dans le cas d'une antenne métallique, la source de lumière doit être placée à une distance minimale de l'antenne; autrement, elle peut perdre son énergie en chauffant le métal plutôt qu'en rayonnant de la lumière. Ainsi, pour que l'émetteur ou l'absorbeur profite au mieux des propriétés de l'antenne, il faut pouvoir contrôler très précisément la distance qui les sépare, avec une précision de l'ordre du nanomètre. Au chapitre 2, une technique de fabrication issue de collaborations est proposée, permettant de positionner un émetteur unique dans une antenne avec une précision de quelques nanomètres.

Enfin, les matériaux, et notamment les métaux, possèdent des propriétés différentes en optique par rapport aux ondes radio. Dans le cas des ondes radio, les métaux sont considérés comme des conducteurs parfaits. En conséquence, les ondes ne pénètrent pas l'antenne. La physique qui les gouvernent ainsi que les stratégies de conception des antennes radio sont relativement simples et bien établies, et généralement quelques formules suffisent à décrire leurs performances. Dans le cas de la lumière, on ne peut plus considérer les métaux comme des conducteurs parfaits : les ondes pénètrent le métal de ces antennes. Il n'existe pas de formules simples à appliquer, et il est généralement nécessaire d'utiliser des logiciels de simulation numérique pour connaître les propriétés des antennes et les optimiser pour une application donnée. Le domaine qui étudie l'interaction entre de petits objets métalliques et la lumière s'appelle la plasmonique. Lorsque la lumière interagit avec un objet métallique, une oscillation collective des électrons libres du métal peut s'établir, induisant des variations très intenses du champ électrique, localisées dans le champ proche de l'objet. On appelle "plasmon polariton" cette oscillation collective.

Ce manuscrit se concentre sur quatre grandes thématiques. On distingue notamment :

- des méthodes de simulations numériques,
- une antenne pour des sources de photons uniques,
- une antenne pour le contrôle du rayonnement émis par effet tunnel inélastique,
- une antenne pour la détection de molécule.

Pour concevoir numériquement une antenne optique, il faut pouvoir concilier la modélisation (i) d'un émetteur / absorbeur, généralement petit devant la longueur d'onde, localisé à $\sim 10\text{nm}$ de l'antenne (ii) d'une antenne dont au moins l'une des dimensions est de l'ordre de la longueur d'onde $\sim 1\mu\text{m}$ (iii) de champs évanescents présentant de grandes discontinuités. Ce problème est difficile à traiter numériquement, et le chapitre 1 propose notamment une méthode qui a été développée au cours de ces trois années. Plus précisément, le chapitre 1 décrit deux méthodes modales qui ont été utilisées pour l'ensemble des travaux de ce manuscrit. L'une pour la modélisation de réseaux lamellaires 2D. L'autre pour la modélisation d'objets à symétrie cylindrique, en présence d'une source ponctuelle.

Ensuite, les chapitres 2 et 3 abordent la problématique des sources de photons uniques. Ces sources trouvent des applications dans les domaines de la manipulation de l'information quantique. Afin de traiter un grand débit d'informations, on souhaite savoir dans quelle mesure une antenne peut augmenter la cadence d'émission. On souhaite également collecter tous les photons émis et on se propose de voir si une antenne peut apporter une plus grande directivité à une telle source. Enfin, pour des applications pratiques, il est souhaitable que la source produise un photon unique à la demande. Il faut donc qu'un signal d'excitation de la source mène la plupart du temps à la production d'un photon unique. Se pose alors le problème de savoir si une antenne peut contrôler les propriétés d'émission, sans induire de trop grandes pertes. Le chapitre 2 analyse des résultats expérimentaux d'une antenne planaire métallique couplée à des sources de photons uniques. Les antennes métalliques introduisent des pertes, et le chapitre 3 fait l'étude théorique de stratégies permettant d'améliorer ces antennes. Notamment, on souhaite savoir à quel point une structure hybride, associant une antenne diélectrique à l'antenne métallique, est capable d'améliorer le rendement de cette antenne.

Le chapitre 4 aborde la problématique de l'émission de photons et de plasmons de surface par effet tunnel inélastique, à la jonction entre deux électrodes métalliques. Le pompage électrique de ces sources est une caractéristique très attrayante permettant d'envisager des sources de plasmons intégrées. Toutefois, ces sources souffrent d'une efficacité extrêmement faible et d'un large spectre d'émission, ce qui a limité l'étendue de ses applications jusqu'à maintenant. Dans le chapitre 4, on explore le potentiel des nanoantennes plasmoniques pour améliorer ces sources électriques de plasmons.

Dans le domaine optique, la sensibilité des résonances plasmoniques à des variations d'indices de réfraction au voisinage de structures métalliques est souvent utilisée pour la détection. Toutefois, l'absence de résonances des molécules aux longueurs d'onde optiques empêche de déterminer le type de molécules présentes, du moins sans faire appel à des ligands spécifiques. Des résonances de molécules apparaissent dans l'infrarouge, ce qui a permis le développement d'un certain nombre de techniques spectroscopiques pour analyser la signature spectrale des molécules. Le chapitre 5 analyse la diffraction de la lumière infrarouge par une antenne sur laquelle est déposée une fine couche de molécules réson-

nantes. Cette antenne peut permettre de concentrer le flux incident dans un volume très petit devant la longueur d'onde, ce qui peut exalter fortement la réponse des molécules présentes dans ce volume. Dans le chapitre 5, on étudie le potentiel de cette antenne pour la détection de molécules en faible quantité.

Chapitre 1

Les méthodes numériques pour la modélisation d'antennes

1.1 Introduction

L'analyse numérique et la conception de dispositifs photoniques à hautes performances nécessitent des outils de simulation efficaces de champs vectoriels. La flexibilité et la généralité des méthodes de discrétisation, telles que les méthodes des différences finies (Taflov et Hagness 2005) ou les méthodes des éléments finis (Obayya 2011) en font généralement des méthodes de premier choix. La figure 1.1 donne un exemple de maillage et de résolution d'un problème électromagnétique complexe.

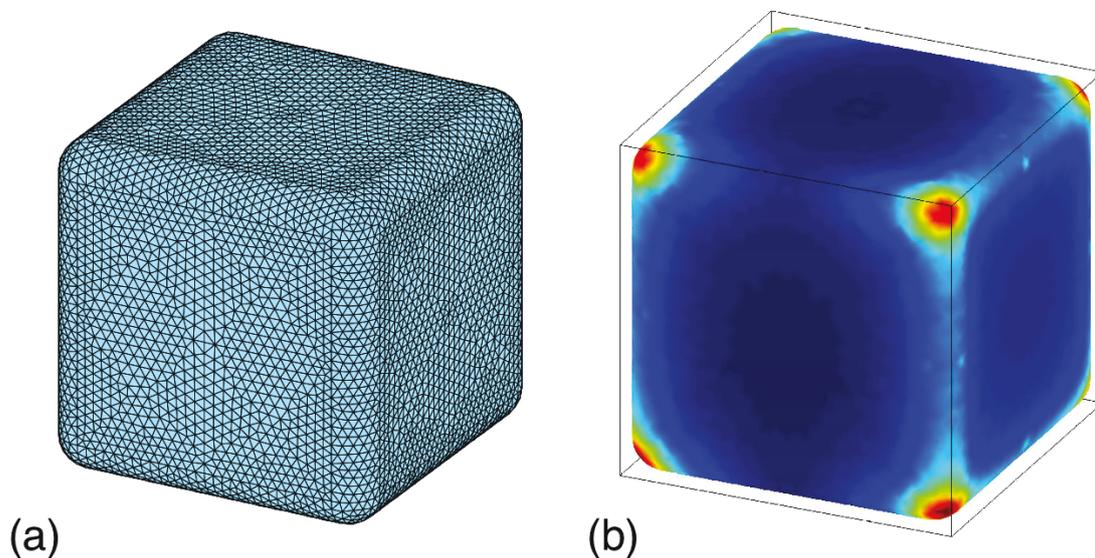


FIGURE 1.1 – *Calcul par méthode des éléments finis du champ proche 3D d'un nanocube aux arêtes arrondies et éclairé par une onde plane. Le calcul a été réalisé par Mondher Besbes. (a) Maillage utilisé pour le calcul. (b) Cartographie 3D du champ proche.*

Dans le cadre spécifique de ma thèse, le concept d'antenne est appliqué aux ondes optiques dans ses deux aspects fondamentaux : (i) contrôler l'émission de lumière par une source ponctuelle, (ii) contrôler la réception de lumière par quelques molécules. Ces deux aspects

sont intimement liés par le théorème de réciprocité. D'une manière générale, l'antenne fait la médiation efficace entre des objets très petits devant la longueur d'onde et des ondes propagatives dont l'évolution spatiale est régie par la longueur d'onde. Ainsi, deux grandeurs critiques à la conception d'antennes rendent leur modélisation délicate.

Tout d'abord, le couplage entre une antenne et une source (ou un récepteur) impose une distance très petite devant la longueur d'onde entre ces deux objets. Se faisant, l'essentiel des propriétés d'émission ou d'absorption de molécules est contrôlé par les propriétés de l'antenne. Par conséquent, la physique de ce couplage est décrite par le champ proche de ces objets, de sorte qu'un grand nombre d'ondes évanescentes entre en jeu. Dans le cadre des antennes optiques, ce couplage requiert un calcul très précis à l'échelle du nanomètre au voisinage de la source ou du récepteur.

Ensuite, l'antenne doit pouvoir se coupler efficacement aux ondes propagatives d'une part, et être généralement directive d'autre part. Le couplage nécessite un bon recouvrement spatial entre des modes de l'antenne et des ondes propagatives, et la directivité de l'antenne est régie par la diffraction de ses modes. Par conséquent, l'une des grandeurs géométriques de l'antenne doit être de l'ordre de la longueur d'onde.

Outre ces deux grandeurs critiques, l'utilisation de métaux ajoute des difficultés supplémentaires. Comme nous le verrons au chapitre 2, l'existence de modes plasmoniques aux fréquences optiques permet d'obtenir des champs très confinés. Cela introduit (i) des modes dont la propagation peut être vite atténuée, (ii) des discontinuités de champ très grandes aux interfaces, ce qui est difficile à traiter numériquement.

En résumé, la modélisation électromagnétique d'une antenne plasmonique se caractérise par la nécessité de prendre en compte deux échelles de longueurs très différentes tout en décrivant correctement les champs dans des structures métalliques absorbantes et dispersives. Ce sont des contraintes très sérieuses qui imposent des traitements adaptés. Les méthodes modales constituent des alternatives majeures et bien connues. Ces méthodes se basent généralement sur les principes suivants : on ramène un problème 2D ou 3D à un problème 1D en décomposant les champs sur une base de fonctions complètes. Puis dans la dimension restante, on définit des couches comme étant des sections invariantes par translation. On résout alors un problème aux vecteurs propres pour chaque couche. On nomme ces vecteurs propres des "modes". La connaissance de ces modes permet de propager analytiquement les champs dans chaque couche. Enfin, on utilise la continuité de certaines composantes des champs pour relier les modes d'une couche à l'autre et on impose les conditions aux limites pour conclure la résolution du problème. On parle de méthode semi-analytique, car on résout numériquement un problème aux vecteurs propres. Du fait de leur semi-analyticité, les méthodes modales peuvent réduire drastiquement le coût en terme de temps de calcul et apportent une bonne compréhension physique des processus de propagation d'ondes dans le dispositif analysé.

Les méthodes modales de Fourier sont reconnues pour être des méthodes efficaces, fiables et précises, en décomposant les champs sur une base modale de structures périodiques utilisant les séries de Fourier. Etant donnée la problématique des antennes, cette décomposition en ondes planes est particulièrement adaptée au cadre de ma thèse. Outre l'aspect semi-analytique de la méthode, l'utilisation de transformations de coordonnées non-linéaires dans la direction de décomposition de Fourier peut permettre notamment de réconcilier la modélisation des ondes propagatives avec celle des ondes évanescentes qui sont localisées

dans des volumes d'intérêt très confinés.

Dans ce chapitre, nous présentons dans un premier temps les fondements décrivant la méthode modale de Fourier pour des structures 2D en coordonnées cartésiennes. La méthode est utilisée pour l'obtention des résultats du chapitre 5 dans le cadre du SEIRA, pour lequel on étudie la réponse à une onde plane d'un réseau d'antennes couplées à une fine couche de molécules. Cela nous permettra ensuite d'introduire une méthode modale de Fourier en coordonnées cylindriques que j'ai développée au cours de ma thèse ((a) Bigourdan *et al.* 2014). Cette dernière méthode est à l'origine de la majorité des résultats des chapitres 2 à 4. Mais tout d'abord, je rappelle la propriété de symétrie des équations de Maxwell pour les champs E et H, afin de l'utiliser comme outil de simplification dans ce chapitre.

1.2 La symétrie E-H des équations de Maxwell

En premier lieu, on introduit les équations de Maxwell en régime harmonique $e^{-i\omega t}$, en présence de sources dipolaires électrique et magnétique :

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \times \vec{H} = -i\omega\epsilon\vec{E} + \vec{j}_E \cdot \delta(\vec{r} - \vec{r}_s), \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} = i\omega\mu\vec{H} + \vec{j}_H \cdot \delta(\vec{r} - \vec{r}_s), \end{cases} \quad (1.1)$$

où \vec{E} et \vec{H} sont respectivement les champs électrique et magnétique, ϵ et μ sont respectivement la permittivité électrique et la perméabilité magnétique locales, \vec{j}_E et \vec{j}_H sont respectivement les amplitudes des densités de courant dipolaires électrique et magnétique. Dans ce chapitre, on utilisera la symétrie des équations de Maxwell entre les champs \vec{E} et \vec{H} , résumée par le processus à deux étapes suivant :

1. On applique les changements de variables : $\vec{H}' = i\vec{H}$ et $\vec{j}'_E = i\vec{j}_E$. Ils permettent de se débarrasser du nombre imaginaire pur i ainsi que de la différence de signe entre les deux équations de (1.1). On réécrit alors les équations de la sorte :

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \times \vec{H}' = \omega\epsilon\vec{E} + \vec{j}'_E \cdot \delta(\vec{r} - \vec{r}_s), \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} = \omega\mu\vec{H}' + \vec{j}_H \cdot \delta(\vec{r} - \vec{r}_s), \end{cases} \quad (1.2)$$

2. On remarque ensuite que les deux équations de (1.2) sont respectivement symétriques par les échanges $\vec{H}' \Leftrightarrow \vec{E}$, $\epsilon \Leftrightarrow \mu$ et $\vec{j}'_E \Leftrightarrow \vec{j}_H$.

Ainsi, toutes les équations et la forme générale des résultats obtenus pour le champ électrique \vec{E} peuvent généralement être appliquées au nouveau champ magnétique \vec{H}' en suivant le processus à deux étapes précédent et *vice versa*. En particulier, dans ce chapitre toute quantité X_H liée au nouveau champ magnétique \vec{H}' possède sa version symétrique X_E pour le champ électrique \vec{E} . Cet outil est particulièrement intéressant pour restreindre l'analyse aux équations essentielles et gagner en temps. Nous pouvons désormais introduire les différents algorithmes de ce chapitre.

1.3 La méthode modale de Fourier pour l'analyse 2D

La méthode modale de Fourier, également dénommée RCWA pour l'anglais *Rigorous Coupled-Wave Analysis*, prend son origine au début des années 80 et a été développée pour l'analyse de réseaux de diffraction (Knop 1978; Moharam et Gaylord 1981; Moharam et Gaylord 1982; Moharam *et al.* 1995). La convergence de la méthode a été drastiquement améliorée au milieu des années 90 (Lalanne et Morris 1996; Granet et Guizal 1996), en introduisant de nouvelles règles de factorisation dans l'espace de Fourier. On rappellera dans un premier temps ces règles en partie 1.3.1. L'utilisation de l'algorithme de matrices S (Li 1996a) a permis la propagation numérique stable et précise des modes. Ces avancées ont abouti à la méthode modale de Fourier actuelle (Lalanne et Silberstein 2000) détaillée en partie 1.3.2. Nous introduisons en partie 1.3.3 un nouvel algorithme de matrices S modulaires et versatiles ((a) Bigourdan *et al.* 2014). La méthode RCWA a été étendue à l'analyse de structures apériodiques (Silberstein *et al.* 2001) en appliquant le concept de couche absorbante parfaitement adaptée (*Perfectly Matched Layer*, PML) (Berenger 1994) puis de transformations de coordonnées complexes (Hugonin et Lalanne 2005). Nous introduirons brièvement les principes de cette dernière en partie 1.3.4. Enfin, la partie 1.3.5 étudie les bases des transformations de coordonnées réelles non-linéaires pour améliorer la convergence de la méthode (Granet 1999; Ctyroky *et al.* 2010).

1.3.1 Les règles de factorisation dans l'espace de Fourier

Dans la suite, on considère une structure 2D en coordonnées cartésiennes, invariante dans la direction y et périodique dans la direction x (c.f. exemple figure 1.2).

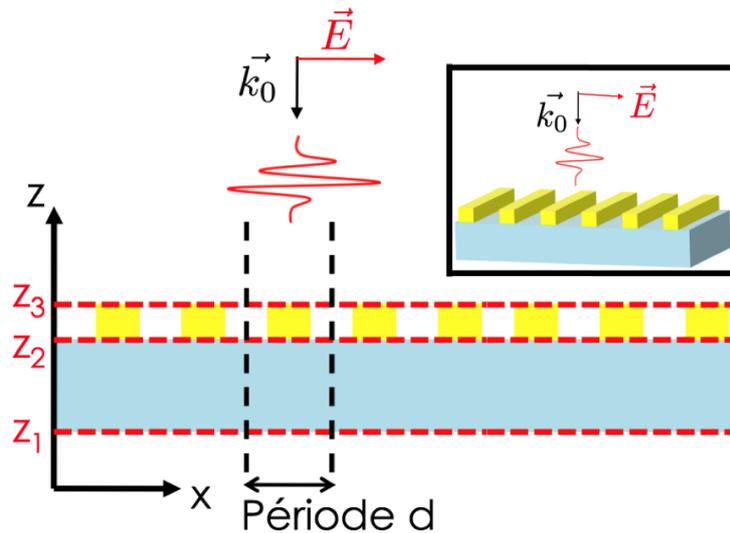


FIGURE 1.2 – Exemple de réseau 2D, défini par sa période d et 5 couches, séparées par 3 interfaces z_1 , z_2 et z_3 .

Cette structure peut posséder des matériaux anisotropes biaxiaux, tels que les permittivités diélectriques et les perméabilités magnétiques soient représentées par une matrice diagonale de coefficients diagonaux tous différents, soit $\epsilon_x \neq \epsilon_z$, $\epsilon_x \neq \epsilon_y \neq \epsilon_z$, $\mu_x \neq \mu_z$ et $\mu_x \neq \mu_y \neq \mu_z$.

La première équation du couple (1.2) sans le terme source devient :

$$\begin{cases} \frac{\partial H'_y}{\partial z} = -\omega\epsilon_x E_x, \\ \frac{\partial H'_x}{\partial z} - \frac{\partial H'_z}{\partial x} = \omega\epsilon_y E_y, \\ \frac{\partial H'_y}{\partial x} = \omega\epsilon_z E_z. \end{cases} \quad (1.3)$$

La symétrie E-H des équations de Maxwell décrite dans la partie 1.2 permet d'établir simplement des équations similaires correspondant à la seconde équation du couple (1.2).

Le fait d'avoir une structure périodique dans la direction x permet d'utiliser le théorème de Floquet-Bloch qui assure que toute composante d'un champ $F(x, z)$ peut être écrite comme une fonction pseudo-périodique de x , $F(x, z) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \tilde{F}_m(z) e^{i\beta_m x}$, où $\beta_m = \beta_0 + m \frac{2\pi}{d}$ et d est la période. De même, dans une couche invariante par translation suivant z , la structuration périodique des permittivités diélectriques et des perméabilités magnétiques permet de les décomposer en série de Fourier sous la forme $f(x) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \tilde{f}_m e^{im \frac{2\pi}{d} x}$. Le système d'équations (1.3) peut donc s'écrire symboliquement :

$$\begin{cases} \frac{\partial \tilde{\mathbf{H}}_y}{\partial z} = -\omega [\epsilon_x] \tilde{\mathbf{E}}_x, \\ \frac{\partial \tilde{\mathbf{H}}_x}{\partial z} - iK \tilde{\mathbf{H}}_z = \omega [\epsilon_y] \tilde{\mathbf{E}}_y, \\ iK \tilde{\mathbf{H}}_y = \omega [\epsilon_z] \tilde{\mathbf{E}}_z. \end{cases} \quad (1.4)$$

où $\tilde{\mathbf{H}}_\alpha$ et $\tilde{\mathbf{E}}_\alpha$ sont des vecteurs de dimension infinie des composantes de Fourier de H'_α et E_α respectivement, $[f]$ est la matrice de Toeplitz de dimension infinie des coefficients de Fourier de f et K est une matrice diagonale de dimension infinie de coefficients $K_{m,m} = \beta_m$.

En pratique, on ne peut utiliser qu'un nombre fini de termes de Fourier dans la décomposition des champs et des caractéristiques électromagnétiques. Lorsqu'on applique les équations (1.4) et leur symétrique "E-H" pour un ordre de troncature de Fourier N donné ($m = -N, \dots, N$), la résolution converge plus lentement lorsqu'on cherche des solutions en polarisation TM (=Transverse Magnétique) par rapport au cas TE (=Transverse Electrique). Ce problème de convergence a rendu la méthode relativement impopulaire pour la résolution de certains problèmes électromagnétiques, jusqu'au milieu des années 90 (Lalanne et Morris 1996; Granet et Guizal 1996), lorsqu'on a découvert qu'à ordre de Fourier fini N , en remplaçant $[\epsilon_x]_N \tilde{\mathbf{E}}_x^N$ par $\left[\frac{1}{\epsilon_x}\right]_N^{-1} \tilde{\mathbf{E}}_x^N$ dans la première équation du système (1.4), la convergence était drastiquement améliorée. D'un point de vue théorique, les deux formulations sont équivalentes lorsqu'on considère une décomposition sur une infinité de composantes de Fourier. Le choix de l'une plutôt que de l'autre posait donc un paradoxe. Quelques mois plus tard, l'explication mathématique rigoureuse fût donnée (Li 1996b) : lorsque deux

fonctions de x possèdent des discontinuités telles que leur produit reste continu (on parlera de discontinuité complémentaire) comme par exemple ϵ_x et E_x dans notre cas, la première formulation $[\epsilon_x]_N \tilde{\mathbf{E}}_x^N$ ne tends pas uniformément vers le produit $[\epsilon_x] \tilde{\mathbf{E}}_x$, contrairement à la seconde formulation $\left[\frac{1}{\epsilon_x}\right]_N^{-1} \tilde{\mathbf{E}}_x^N$.

Ainsi les règles correctes de factorisation dans l'espace de Fourier peuvent être formulées de la façon suivante : dans la direction de décomposition dans la base de Fourier, on regarde quelles sont les fonctions continues et quelles sont les fonctions discontinues. Dans notre cas, les champs électriques E_y , E_z et le champ induction électrique D_x sont continus (de même pour leur symétrique "E-H"). Toutes les permittivités électriques et les champs électrique E_x et inductions électriques D_y et D_z sont discontinus. Ensuite on en déduit les couples de fonctions dont les discontinuités sont complémentaires. Dans notre cas ce sont les couples (ϵ_x, E_x) , $(\frac{1}{\epsilon_y}, D_y)$ et $(\frac{1}{\epsilon_z}, D_z)$. Enfin, pour un ordre de Fourier fini N , on applique à ces couples la règle de factorisation "inverse" énoncée. Dans notre cas, cela revient à remplacer les produits de matrices de dimensions infinies $[\epsilon_x] \tilde{\mathbf{E}}_x$, $[\epsilon_y] \tilde{\mathbf{E}}_y$ et $[\epsilon_z] \tilde{\mathbf{E}}_z$ respectivement par $\left[\frac{1}{\epsilon_x}\right]_N^{-1} \tilde{\mathbf{E}}_x^N$, $[\epsilon_y]_N \tilde{\mathbf{E}}_y^N$ et $[\epsilon_z]_N \tilde{\mathbf{E}}_z^N$ dans les équations (1.4) et leur symétrique "E-H".

Dans la suite, on ne considèrera que des développements de Fourier d'ordre N fini. Par souci de simplicité des notations, on omettra alors les indices et les exposants N correspondant à l'ordre de troncature du développement de Fourier. Dans notre cas, les équations (1.4) deviennent alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial \tilde{\mathbf{H}}_y}{\partial z} = -\omega \left[\frac{1}{\epsilon_x}\right]^{-1} \tilde{\mathbf{E}}_x, \\ \frac{\partial \tilde{\mathbf{H}}_x}{\partial z} - iK \tilde{\mathbf{H}}_z = \omega [\epsilon_y] \tilde{\mathbf{E}}_y, \\ iK \tilde{\mathbf{H}}_y = \omega [\epsilon_z] \tilde{\mathbf{E}}_z. \end{cases} \quad (1.5)$$

Les équations de Maxwell étant correctement formulées dans la base de Fourier, on peut désormais s'intéresser à la décomposition modale des champs.

1.3.2 La décomposition modale dans une couche

Dans cette partie, on considère un ordre de troncature de Fourier N ($m = -N, \dots, N$) pour toutes fonctions de x . Dans la suite, on indexe par la lettre "p" tout intervalle de hauteur $]z_p, z_{p+1}[$, pour lequel les permittivités diélectriques et les perméabilités magnétiques ne dépendent pas de z . On donnera le nom de "couche" à toute section invariante par translation suivant l'axe Oz . En général, à une géométrie donnée est associé un nombre de couches $p = 1, 2, \dots$ telles qu'illustrées par la figure 1.2. Pour chaque couche p , on peut trouver un système d'équations (1.5) et son symétrique "E-H". On manipule alors ces six équations pour obtenir une équation différentielle en z appliquée à un unique vecteur de composantes des champs \vec{E} et \vec{H} tangentiels à chaque couche. Ces composantes étant continues en z , on pourra facilement connecter les modes d'une couche à l'autre. Dans

notre cas, on obtient par exemple les deux équations couplées suivantes :

$$\begin{cases} \frac{\partial \tilde{\mathbf{E}}_y}{\partial z} = -\omega \left[\frac{1}{\mu_x} \right]^{-1} \tilde{\mathbf{H}}_x, \\ \frac{\partial \tilde{\mathbf{H}}_x}{\partial z} = \frac{1}{\omega} Z_H \tilde{\mathbf{E}}_y, \end{cases} \quad (1.6)$$

où la matrice $Z_H = (\omega^2 [\epsilon_y] - K [\mu_z]^{-1} K)$. Dans une couche donnée, les permittivités diélectriques et les perméabilités magnétiques étant constantes, on montre que les champs $\tilde{\mathbf{E}}_y$ et $\tilde{\mathbf{H}}_x$ sont solutions d'une même équation différentielle homogène du second degré à coefficients constants, en combinant les deux équations du couple (1.6) :

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{E}}_y}{\partial z^2} + Z_H \left[\frac{1}{\mu_x} \right]^{-1} \tilde{\mathbf{E}}_y = \mathbf{0} \\ \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{H}}_x}{\partial z^2} + Z_H \left[\frac{1}{\mu_x} \right]^{-1} \tilde{\mathbf{H}}_x = \mathbf{0} \end{cases} \quad (1.7)$$

La première équation concernant le champ E_y , ces équations correspondent aux solutions en polarisation Transverse Electric (TE) puisque nous avons choisi une propagation dans le plan (O, x, z) . Les équations obtenues par symétrie "E-H" correspondent aux solutions en polarisation Transverse Magnétique (TM). Ici, on aurait pu nommer Z_{TE} la matrice qu'on nomme Z_H , mais par souci de cohérence avec la dernière partie de ce chapitre, on a préféré associer la matrice Z au champ dont la composante est suivant la direction de Fourier, x . On diagonalise ensuite la matrice $Z_H \left[\frac{1}{\mu_z} \right]^{-1}$ pour chaque couche. On obtient :

$$Z_H \left[\frac{1}{\mu_z} \right]^{-1} = P_H D_H^2 P_H^{-1}, \quad (1.8)$$

où D_H est une matrice diagonale dont les coefficients sont les racines carrées complexes des valeurs propres, et P_H est la matrice des vecteurs propres associés. Ici, la détermination de la racine carrée complexe d'un nombre complexe a est définie telle que $Im(\sqrt{a}) + Re(\sqrt{a}) > 0$. Cette définition permet notamment de prendre en compte les modes à "fuite" (*Leaky modes*, en anglais). D'après l'argument précédent, on comprend que l'équation (1.8) (et respectivement son symétrique "E-H") constitue l'équation fondamentale des modes TE (respectivement TM). Puisque D_H et P_H sont des matrices indépendantes de z , la seconde équation du couple (1.7) se réduit à :

$$\frac{\partial^2 P_H^{-1} \tilde{\mathbf{H}}_x}{\partial z^2} + D_H^2 P_H^{-1} \tilde{\mathbf{H}}_x = \mathbf{0} \quad (1.9)$$

On en déduit que les solutions de l'équation (1.9) peuvent être décomposées sur une base d'ondes planes, et on définit $B^+(k_z z) = \exp(+ik_z z)$ les modes se propageant vers les z croissants et $B^-(k_z z) = \exp(-ik_z z)$ les modes se propageant vers les z décroissants. Là encore, on choisit ces notations pour faire écho avec la méthode de la dernière partie de ce chapitre. Les solutions de l'équation (1.9) s'écrivent :

$$\tilde{\mathbf{H}}_x = P_H B^+(D_H z) \boldsymbol{\chi}_H^+ + P_H B^-(D_H z) \boldsymbol{\chi}_H^-, \quad (1.10)$$

où $B^\pm(D_H z)$ est une matrice diagonale, χ_H^+ et χ_H^- sont des vecteurs d'inconnues à $2N + 1$ composantes, indépendants de z et définissant les amplitudes des ondes planes dans chaque couche. Elles sont fixées par l'amplitude de la source, la structure complète et les conditions aux limites. D_H apparaît comme la matrice diagonale de la composante longitudinale z des vecteurs d'ondes des modes TE, dans une couche donnée.

A partir de l'expression de $\tilde{\mathbf{H}}_x$ donnée par l'équation (1.10), on déduit de la seconde équation du couple (1.6) l'expression de $\tilde{\mathbf{E}}_y$:

$$\tilde{\mathbf{E}}_y = \omega Z_H^{-1} P_H D_H \{ B^+(D_H z) \chi_H^+ - B^-(D_H z) \chi_H^- \}, \quad (1.11)$$

De même, d'après le symétrique "E-H" de la troisième équation du système (1.5), on obtient d'après l'expression (1.11) de $\tilde{\mathbf{E}}_y$ la décomposition modale de $\tilde{\mathbf{H}}_z$:

$$\tilde{\mathbf{H}}_z = +iK [\mu_z]^{-1} Z_H^{-1} P_H D_H \{ B^+(D_H z) \chi_H^+ - B^-(D_H z) \chi_H^- \}, \quad (1.12)$$

Encore une fois, par symétrie "E-H" des équations de Maxwell (voir partie 1.2), des expressions similaires peuvent être trouvées pour $\tilde{\mathbf{E}}_x$, $\tilde{\mathbf{H}}_y$ et $\tilde{\mathbf{E}}_z$ dans le cas TM. Ayant décomposé toutes les composantes tangentielles des champs sur une base modale, on peut déterminer les matrices reliant les différents modes à ces composantes et notamment écrire l'algorithme sous forme matricielle, ce qui permet de gagner en simplicité et en efficacité de calcul.

1.3.3 Les matrices S des champs tangentiels

D'après la décomposition modale des champs, on peut trouver pour chaque couche les matrices M et O suivantes, de taille $[4(2N + 1)] \times [4(2N + 1)]$, reliant les champs aux amplitudes des modes :

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_x(z) \\ \tilde{\mathbf{E}}_y(z) \\ \tilde{\mathbf{H}}_x(z) \\ \tilde{\mathbf{H}}_y(z) \end{pmatrix} = M(z) \begin{pmatrix} \chi_E^+ \\ \chi_H^+ \\ \chi_E^- \\ \chi_H^- \end{pmatrix}, \quad (1.13)$$

et

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_z(z) \\ \tilde{\mathbf{H}}_z(z) \end{pmatrix} = O(z) \begin{pmatrix} \chi_E^+ \\ \chi_H^+ \\ \chi_E^- \\ \chi_H^- \end{pmatrix}. \quad (1.14)$$

On peut déduire également des résultats précédents une matrice S de "Fourier" (S de l'anglais *Scattering*, diffusion), de taille $[4(2N + 1)] \times [4(2N + 1)]$, qui relie les composantes tangentielles des champs entre deux hauteurs z et $z + \Delta z$ d'une même couche :

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_x(z + \Delta z) \\ \tilde{\mathbf{E}}_y(z + \Delta z) \\ \tilde{\mathbf{H}}_x(z) \\ \tilde{\mathbf{H}}_y(z) \end{pmatrix} = S(\Delta z) \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_x(z) \\ \tilde{\mathbf{E}}_y(z) \\ \tilde{\mathbf{H}}_x(z + \Delta z) \\ \tilde{\mathbf{H}}_y(z + \Delta z) \end{pmatrix}, \quad (1.15)$$

A noter qu'en entrée comme en sortie de cette matrice, les champs concernés sont évalués aux deux ordonnées z et $z + \Delta z$. Cette définition, en fort contraste avec celle de la matrice T (de Transfert) qui ne prend en entrée que des champs (ou les amplitudes des modes, voir discussion suivante) d'une unique ordonnée z pour les "transférer" à une autre ordonnée $z + \Delta z$, est nécessaire pour des raisons de robustesse et de stabilité numériques (Li 1996a). En effet, en utilisant les matrices T, on se retrouve avec des termes en $\exp(-ik_m \Delta z)$ où k_m représente une valeur propre déterminée par l'équation (1.8). Ces valeurs propres possédant une partie imaginaire positive, on a $\exp(-ik_m \Delta z) \propto \exp(+|Im(k_m)|\Delta z)$, croissant avec Δz . Si pour une valeur propre le produit $|Im(k_m)|\Delta z$ est suffisamment grand, manipuler ces matrices nécessite de faire des additions et des soustractions de nombres très grands, considérés comme infinis pour l'ordinateur, et les résultats sont donc impropres à une évaluation numérique stable. Au contraire, cette définition des matrices S (qu'elles relient des champs ou les amplitudes des modes) n'utilise que des termes à exponentielle décroissante, rendant l'algorithme efficace.

La continuité en z des composantes tangentielles x et y des champs, dans une région sans source, définit la matrice S comme un propagateur longitudinal dans une couche donnée. De plus, cette continuité à toute interface permet d'utiliser le "produit de matrices S" (Li 1996a) entre deux couches consécutives afin d'obtenir la matrice S équivalente S_{eq} qui relie les composantes tangentielles des champs de deux couches différentes. Autrement dit, si S_p et S_{p+1} sont des matrices S correspondant respectivement aux couches p et $p + 1$ vides de source, on montre que :

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_x(z_j) \\ \tilde{\mathbf{E}}_y(z_j) \\ \tilde{\mathbf{H}}_x(z_i) \\ \tilde{\mathbf{H}}_y(z_i) \end{pmatrix} = S_{eq}(z_j - z_i, z_i) \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_x(z_i) \\ \tilde{\mathbf{E}}_y(z_i) \\ \tilde{\mathbf{H}}_x(z_j) \\ \tilde{\mathbf{H}}_y(z_j) \end{pmatrix}, \quad (1.16)$$

où $S_{eq}(z_j - z_i, z_i) = S_{p+1}(z_j - z_{p+1}, z_{p+1}) \star S_p(z_{p+1} - z_i, z_i)$, \star représente le "produit de matrices S" défini dans la ref. (Li 1996a), z_i et z_j sont des points respectivement dans la couche p et $p+1$.

Il est important de souligner qu'on utilise ici une définition de matrice S qui relie les composantes de Fourier des champs et non les amplitudes des modes, comme c'est généralement le cas dans la plupart des algorithmes de matrice S. Cette "nouvelle" matrice S de "Fourier" (MSF) est très versatile et peut être appliquée à différentes méthodes modales (Silberstein *et al.* 2001; Lecamp *et al.* 2007; (a) Bigourdan *et al.* 2014). Elle profite de la même stabilité et robustesse que la matrice S modale (MSM) classique (Li 1996a). Contrairement à cette dernière qui dépend de deux couches consécutives, la MSF est modulaire et ne dépend que de sa propre couche puisqu'elle intègre à la fois la propagation dans une couche donnée et les conditions de continuité des champs aux interfaces. En coordonnées cartésiennes, la MSF d'une couche donnée dépend uniquement de la géométrie, de l'épaisseur et des propriétés des matériaux de la couche. Par conséquent, l'analyse de certaines géométries spécifiques profite de ce caractère intrinsèque de la MSF et peut mener à une réduction drastique du temps de calcul nécessaire. Des exemples de cas et de stratégies possibles sont donnés dans la figure (1.3).

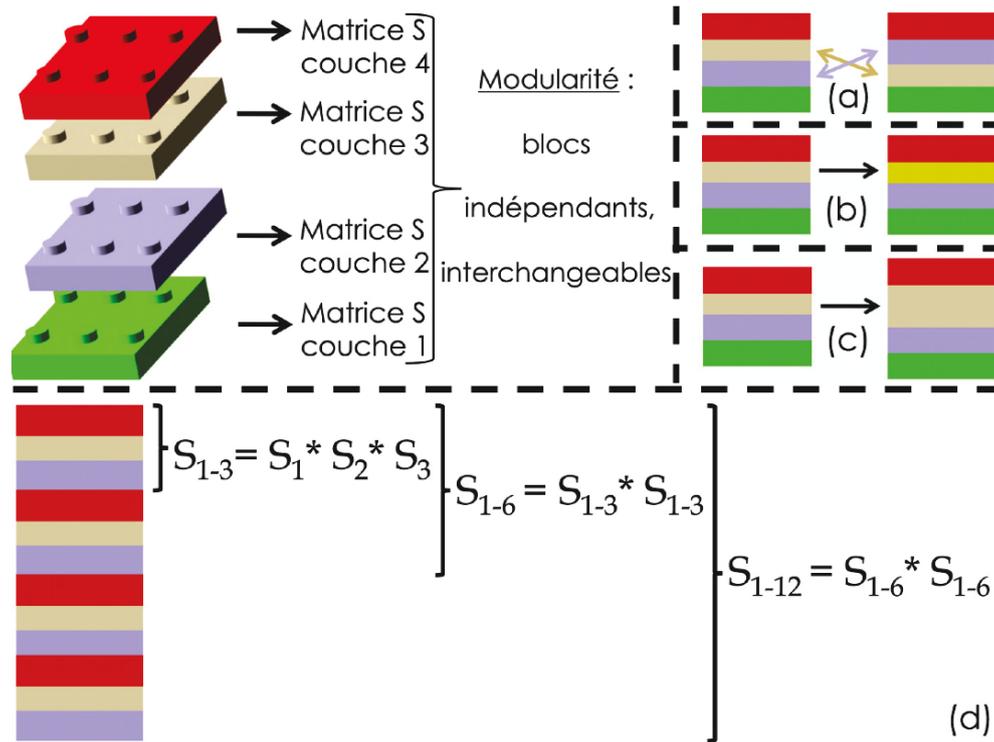


FIGURE 1.3 – Matrices S d'une structure multicouche. Chaque matrice S est représentée par un bloc de LEGO^(R), soulignant la modularité des matrices S . Supposons qu'on ait calculé les matrices S de chaque couche. (a) Si on échange la position d'une ou plusieurs de ces couches, cela ne change pas les matrices S associées. Il n'est pas nécessaire de les recalculer. (b) Si on modifie la géométrie ou les propriétés des matériaux d'une ou plusieurs couches, il n'est pas nécessaire de recalculer les matrices S des couches inchangées. (c) Si on modifie la hauteur d'une couche, la connaissance de la décomposition modale de la couche facilite le calcul de la matrice S associée. Les matrices S des autres couches restent inchangées. (d) Lorsqu'une structure possède un motif de couches répété plusieurs fois, des stratégies permettent de réduire le temps de calcul de façon exponentielle avec le nombre de répétition du motif. Dans l'exemple, 4 produits de matrices S suffisent à effectuer le même calcul que les 11 produits de matrices S nécessaires classiquement.

1.3.4 La méthode modale de Fourier apériodique

La méthode modale de Fourier apériodique est une extension de la méthode modale de Fourier pour analyser des structures apériodiques. Elle repose sur une périodisation artificielle (voir figure (1.4)) qui consiste à répéter périodiquement la structure apériodique à analyser, puis à incorporer entre chaque cellule des couches absorbantes parfaitement adaptées (*Perfectly Matched Layer*, PML) (Berenger 1994). D'une part, la périodisation assure l'existence de solutions quasi-périodiques, et permet ainsi d'utiliser la méthode modale de Fourier décrite précédemment. D'autre part, les PMLs permettent d'isoler électromagnétiquement chaque cellule individuelle de ces voisines répétées périodiquement. La méthode fût développée à la fin des années 90 (Lalanne et Silberstein 2000; Silberstein *et al.* 2001). Un banc d'essais de performances de la méthode peut être trouvé dans la référence (Lalanne *et al.* 2007). Depuis lors, elle a gagnée en popularité et a subi de nombreux raffinements (Lecamp *et al.* 2007; Ctyroky *et al.* 2010; Pisarenco *et al.* 2010). Notamment, une générali-

sation des PMLs par l'utilisation de transformation de coordonnées non-linéaire complexe, permettant de supprimer efficacement les interférences entre deux cellules adjacentes (Hugonin et Lalanne 2005). Au cours de ma thèse, cette dernière a été préférée lorsque son implémentation était possible, parce qu'elle est plus robuste et plus simple à implémenter.

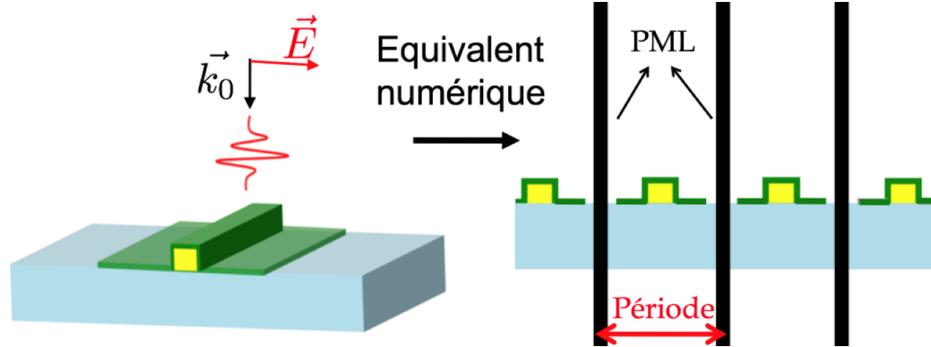


FIGURE 1.4 – *A gauche : Exemple de structure physique étudiée, possédant une taille finie en x . A droite : sa structure numérique associée : l'objet a été périodisé dans la direction x et chaque cellule est découplée par l'introduction de PMLs à l'interface entre deux cellules.*

On peut décrire le fonctionnement de cette méthode en prenant comme exemple de transformation de coordonnées non-linéaire complexe :

$$x_{phys} = (1 + i) \times \tan\left(\frac{\pi}{d} x_{num}\right), \quad (1.17)$$

où x_{num} représente la coordonnée numérique utilisée pour le calcul, x_{phys} représente la coordonnée du système physique réel et d représente la période correspondant à une cellule. On remarque qu'on a :

$$x_{phys} \xrightarrow{x_{num} \rightarrow \pm \frac{d}{2}} \pm(1 + i) \times \infty, \quad (1.18)$$

ce qui montre notamment qu'on peut réduire un espace infini à un segment. On remarque également que $Re(x_{phys})$, $Im(x_{phys})$ et x_{num} possèdent le même signe.

Supposons qu'on place au centre de chaque cellule une source ponctuelle. Cette source va interagir avec la structure environnante, et des modes peuvent être diffractés vers les x_{phys} croissants, positifs et vers les x_{phys} décroissants, négatifs. Un mode se propageant vers les x croissants fait alors intervenir un terme en :

$$\exp(+ik_x \times x_{phys}) \propto \exp\left(-\frac{\pi}{d} x_{num}\right) \xrightarrow{x_{num} \rightarrow +\frac{d}{2}} 0, \quad (1.19)$$

où $k_x = k' + ik''$ est la composante x du vecteur d'onde du mode, avec $k' + k'' > 0$. De même, un mode se propageant vers les x décroissants fait alors intervenir un terme en :

$$\exp(-ik_x \times x_{phys}) \propto \exp\left(+\frac{\pi}{d} x_{num}\right) \xrightarrow{x_{num} \rightarrow -\frac{d}{2}} 0. \quad (1.20)$$

Ainsi, tout mode diffracté par la source et son environnement est parfaitement atténué aux bords de la cellule, $x_{num} = \pm \frac{d}{2}$. En pratique, l'implémentation d'une transformation de coordonnées complexe dans la méthode modale de Fourier requiert d'utiliser une nouvelle matrice K , définie à partir des coefficients de Fourier de la dérivée de la transformation de coordonnées (Hugonin et Lalanne 2005). Nous allons désormais montrer l'intérêt des transformations de coordonnées réelles pour la convergence d'un calcul.

1.3.5 Les transformations de coordonnées réelles non-linéaires

Comme nous venons de le voir, il est possible de ramener un problème donné dans un espace infini à un espace de taille fini à l'aide de transformation de coordonnées non-linéaire. On a vu notamment que cela permettait de considérer des cas "apériodiques" avec la méthode modale de Fourier. C'est également un outil puissant pour améliorer la convergence d'un calcul (Granet 1999; Ctyroky *et al.* 2010). Une transformation de coordonnées bien choisie pour un problème donné peut être vue comme un maillage adapté à ce problème. Pour illustrer l'intérêt de cet outil, prenons le simple calcul de l'intégrale d'une gaussienne :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-x^2) dx = \sqrt{\pi}. \quad (1.21)$$

Dans une approche de calcul numérique de l'intégrale, on peut réduire l'intervalle d'intégration à $x \in [-5, 5]$, en remarquant que pour $|x| > 5$, $\exp(-x^2) < 2 \times 10^{-11}$. Dans ce cas, on peut approcher le résultat de l'intégrale par une intégration de Riemann, en faisant la somme de $N = 2P$ points pondérés et évalués dans l'intervalle $[-5, 5]$:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-x^2) dx \simeq \int_{-5}^5 \exp(-x^2) dx \simeq \sum_{n=1}^P \frac{20}{2P+1} \exp(-x_n^2), x_n = \frac{5(2n-1)}{(2P+1)}. \quad (1.22)$$

On peut montrer qu'en utilisant cette approche, l'erreur diminue linéairement avec le nombre de points utilisés P .

Désormais, si on applique à l'équation (1.21) la transformation de coordonnées $x = \tan(u)$, alors on a :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-x^2) dx = \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} \exp(-\tan(u)^2) (1 + \tan(u)^2) du = \sqrt{\pi}, \quad (1.23)$$

En approchant le résultat de cette nouvelle intégrale par une intégration de Riemann, en faisant la somme de $N = 2P$ points pondérés et évalués dans l'intervalle $]-\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2}[$:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-x^2) dx \simeq \sum_{n=1}^P \frac{2\pi}{2P+1} \exp(-\tan(x_n)^2) (1 + \tan(x_n)^2), x_n = \frac{\pi(2n-1)}{2(2P+1)}. \quad (1.24)$$

Dans ce cas, le simple fait d'avoir appliqué une transformation de coordonnées permet d'obtenir une erreur relative qui diminue exponentiellement avec le nombre de points utilisés. Les deux approches sont comparées dans la figure (1.5a).

Dans le cas des méthodes modales de Fourier, la transformation de coordonnées est appliquée dans la "direction de Fourier", les autres directions se déduisant de façon analytique à partir de la connaissance des modes. Appliquons cette fois-ci la transformation de coordonnées précédente afin d'évaluer la transformée de Fourier d'une gaussienne. L'équation

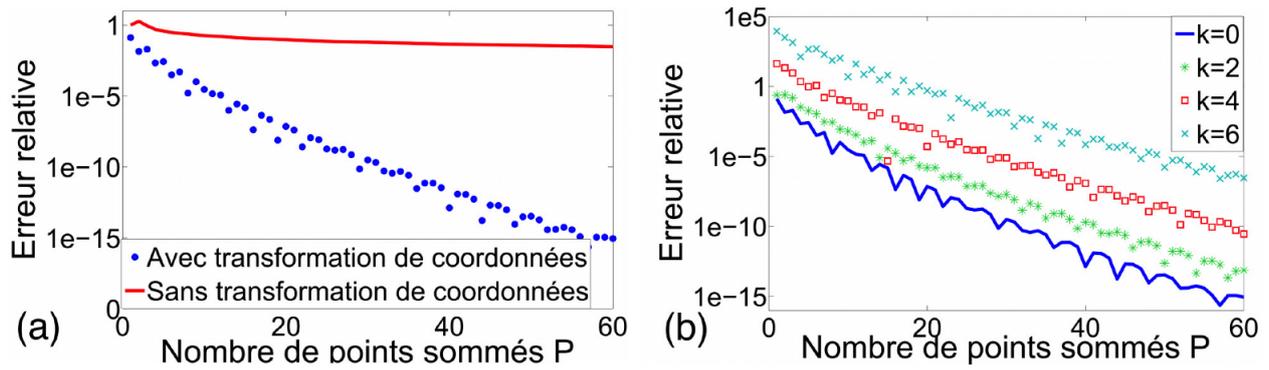


FIGURE 1.5 – (a) Comparaison des performances du calcul intégral d'une gaussienne, avec et sans transformation de coordonnées. (b) Erreur relative obtenue sur la transformée de Fourier d'une gaussienne, évaluée à l'aide d'une transformation de coordonnées pour différentes valeurs du vecteur d'onde k .

(1.24) devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-x^2) \cos(kx) dx \simeq \sum_{n=1}^P \frac{2\pi}{2P+1} f(\tan(x_n)), \\ f(u) = \exp(-u^2)(1+u^2) \cos(ku), x_n = \frac{\pi(2n-1)}{2(2P+1)}. \end{array} \right. \quad (1.25)$$

La figure (1.5b) montre qu'à vecteur d'onde k fixé, l'erreur relative diminue exponentiellement avec le nombre de points utilisés. En outre, on comprend que dans une bande spectrale donnée, par exemple $k \in [-6, 6]$ et pour une erreur relative donnée, par exemple 10^{-5} , il suffit de très peu de termes pour connaître toute l'information. Ici 50 termes suffiraient. La figure (1.6) compare le résultat analytique avec une approximation à 10 termes. Visuellement, les deux courbes se confondent sur la bande spectrale $k \in [-6, 6]$.

Evidemment, cela dépend du choix de la transformation de coordonnées. La série donnée par l'équation (1.25) peut être vue comme une série de Fourier tronquée, pour laquelle on a concentré l'information spectrale sur une largeur de bande donnée. En cela, le choix d'une transformation de coordonnées adaptée à un problème peut être intimement liée au problème de concentration spectrale (Landau et Pollak 1961; Landau et Pollak 1962; Slepian 1978).

A partir de ces observations, j'en ai déduit une méthode pour obtenir une transformation de coordonnées adaptée à un problème et permettant de limiter, parfois drastiquement, le nombre de termes de Fourier nécessaires pour une approximation correcte des solutions d'un problème. Cela peut s'avérer très utile dans le cadre de l'optimisation des performances d'une structure : l'intérêt est d'avoir une bonne approximation des champs correspondant à une géométrie donnée, pour un temps de calcul raisonnable, de sorte à pouvoir accorder les paramètres de cette géométrie (hauteurs, largeurs, voire même indices des matériaux) afin d'obtenir un optimum concernant une ou plusieurs performances du système analysé. Cette méthode peut se résumer aux trois étapes suivantes :

- on calcule d'abord une référence précise à un problème donné. Celle-ci doit être calculée

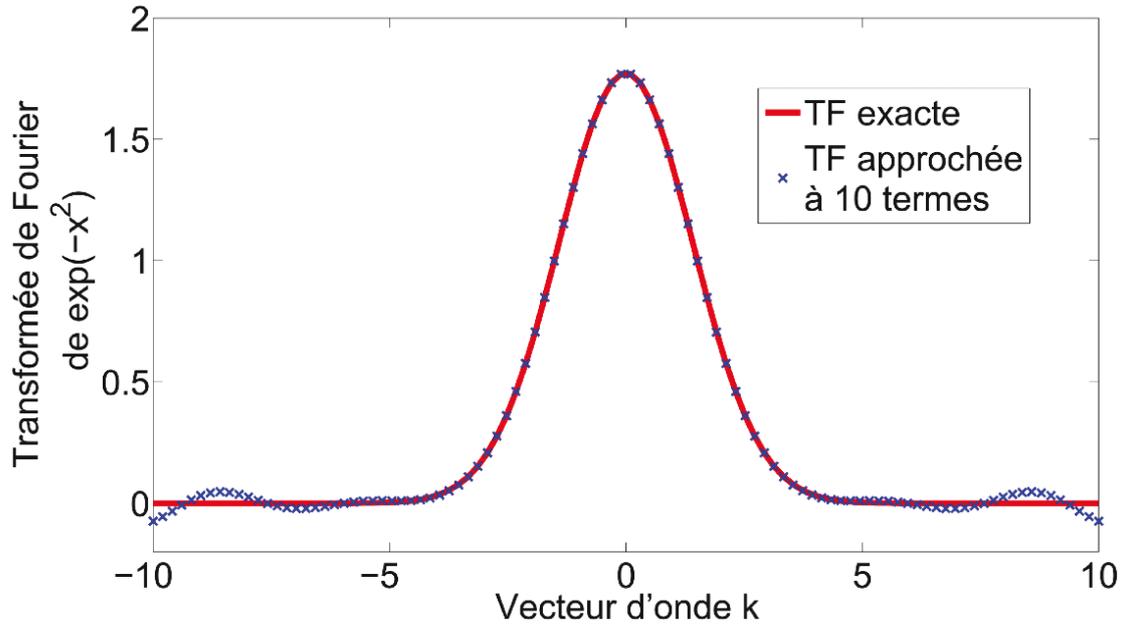


FIGURE 1.6 – Comparaison entre la Transformée de Fourier (TF) exacte d'une gaussienne et la TF approchée par les 10 premiers termes de l'équation (1.25).

avec un nombre de termes de Fourier suffisant pour obtenir une convergence avec une bonne précision relative. La référence doit contenir un grand nombre de points afin de maximiser l'information utile. Cette référence peut être une carte de champ proche, un diagramme de rayonnement, une énergie émise...

- on définit ensuite une transformation de coordonnées paramétrique, qui densifie le maillage autour des discontinuités "x" du champ, imposées par la structure,

- on utilise enfin un algorithme d'optimisation globale (algorithme du recuit simulé, algorithme génétique, algorithme d'optimisation par essais particuliers...) pour minimiser l'erreur quadratique moyenne relative entre : (i) l'ensemble des données de la référence et (ii) les données produites par un calcul à ordre de Fourier fixé et désiré, en considérant les mêmes paramètres géométriques que ceux utilisés pour le calcul de la référence. Tout cela en accordant les paramètres de la transformation de coordonnées.

Lorsque cette erreur est inférieure à 1%, on peut considérer généralement que la transformation de coordonnées est adaptée pour l'ordre de Fourier désiré. Dans le cas contraire, il faut ré-itérer le processus précédent après avoir augmenté l'ordre de Fourier, pour obtenir une approximation plus précise. On peut alors procéder à une optimisation des paramètres géométriques de la structure.

Evidemment, cela ne donne qu'une approximation, valable dans une certaine gamme des paramètres géométriques de la structure. Mais l'expérience montre qu'on peut souvent obtenir une approximation suffisante permettant d'obtenir un temps de calcul divisé par un voire deux ordres de grandeur, comparativement à un calcul convergé sans transformation de coordonnées.

Maintenant que le socle des méthodes modales de Fourier a été posé en coordonnées cartésiennes, nous allons nous intéresser à l'analyse 3D d'un objet à symétrie de révolution.

1.4 Méthode modale de Fourier apériodique pour l'analyse 3D d'objet de révolution

La modélisation du champ produit par une source dipolaire ponctuelle, positionnée arbitrairement dans un environnement nano-structuré et à symétrie de révolution, est un problème important dans le contexte de la conception de nano-antennes. Néanmoins, cette modélisation nécessite de relever un défi étant donnée que la symétrie de révolution est brisée par l'introduction d'un dipôle excentré. En outre, deux échelles de longueurs caractéristiques sont à prendre en compte dans ce contexte. D'une part, on a besoin de concevoir des antennes plus larges que la longueur d'onde afin que l'émission soit directive. D'autre part, la distance source-antenne doit être très petite devant la longueur d'onde, pour qu'un couplage efficace s'établisse. Ce problème est à l'essence même de ma thèse, c'est pourquoi le développement d'une méthode qui résout ces problématiques était primordial.

Dans la partie 1.4, on présente une méthode modale de Fourier apériodique en coordonnées cylindriques, étape par étape ((a) Bigourdan *et al.* 2014). Pour une structure de révolution, l'utilisation de la symétrie cylindrique permet d'obtenir une amélioration drastique de la précision numérique, en comparaison à un calcul 3D en coordonnées cartésiennes. L'implémentation d'une méthode modale de Fourier apériodique en coordonnées cylindriques a déjà été traitée dans la littérature. Dans la référence (Bonod *et al.* 2005), l'approche repose sur une transformée de Fourier radiale (transformée de Hankel) avec une intégration semi-analytique selon l'axe de révolution z , en utilisant l'algorithme des matrices S (Li 1996a) (voir partie 1.3.3). Des chercheurs de notre groupe de recherche ont implémenté cette méthode et ont obtenu une grande précision et une bonne stabilité, essentiellement pour des structures photoniques de grande taille longitudinale (Friedler *et al.* 2008; Friedler *et al.* 2009; Maksymov *et al.* 2010; Sauvan *et al.* 2013). Une approche radicalement différente a été développée dans (Armaroli *et al.* 2008), pour laquelle l'intégration semi-analytique est opérée dans la direction radiale, tandis que des PMLs et une décomposition de Fourier sont utilisées pour discrétiser la direction longitudinale z . La méthode (Armaroli *et al.* 2008) a également été utilisée dans une autre étude (Armaroli *et al.* 2009). Cette approche élégante est particulièrement efficace pour des structures larges radialement mais pose une difficulté pour inclure des sources. C'est probablement la raison pour laquelle l'analyse dans (Armaroli *et al.* 2008; Armarioli *et al.* 2009) a été restreinte à l'étude des résonances, ce qui constitue un problème homogène, ne nécessitant pas le recourt à un quelconque champ incident. La méthode présentée en partie 1.4 exploite le travail de (Armaroli *et al.* 2008) et propose une approche générale, permettant d'inclure des sources.

Dans la partie 1.4.1, on définit les notations principales et on pose le problème de la diffraction par un objet à symétrie de révolution. La partie 1.4.2 décrit la formulation modale en coordonnées cylindriques. Cette formulation est similaire à celle proposée dans (Armaroli *et al.* 2008). La partie 1.4.2 contient notamment une formulation de l'algorithme de la matrice S de Fourier (MSF, voir partie 1.3.3) par opposition à la matrice S formulée dans la base modale (MSM). La partie 1.4.3 contient la nouveauté permettant de résoudre le problème de l'incorporation d'une source dipolaire. Quelques exemples numériques sont donnés dans la partie 1.4.4. D'autres exemples ont été résolus récemment à l'aide de cette méthode tels que l'émission large-bande d'une cavité nanocylindrique plasmonique (Elvira *et al.* 2013), ou encore des antennes patch métalliques pour l'émission de photons uniques (Belacel *et al.* 2013; (b) Bigourdan *et al.* 2014). Enfin dans la partie 1.4.6, on présentera

les lignes directrices pour résoudre correctement le cas d'une source centrée sur l'axe de symétrie.

1.4.1 Définition du problème et principes de la méthode

La méthode présentée dans la partie 1.4 est une méthode modale de Fourier aperiodique (voir partie 1.3.4). Dans la suite, on considère une structure définie par des milieux anisotropes uniaxiaux, avec un axe de symétrie cylindrique suivant z . Dans le système de coordonnées cylindriques $\vec{r} = (r, \theta, z)$, cela revient à avoir des permittivités diélectriques et des perméabilités magnétiques représentées par des matrices diagonales, dont les termes diagonaux satisfont $\epsilon_\theta = \epsilon_r = \epsilon$ et $\mu_\theta = \mu_r = \mu$. On considère désormais la première équation du couple (1.2) :

$$\begin{cases} \frac{1}{r} \frac{\partial H'_z}{\partial \theta} - \frac{\partial H'_\theta}{\partial z} = \omega \epsilon E_r + j'_{E,r} \delta(\vec{r} - \vec{r}_s), \\ \frac{\partial H'_r}{\partial z} - \frac{\partial H'_z}{\partial r} = \omega \epsilon E_\theta + j'_{E,\theta} \delta(\vec{r} - \vec{r}_s), \\ \frac{1}{r} \left(\frac{\partial r H'_\theta}{\partial r} - \frac{\partial H'_r}{\partial \theta} \right) = \omega \epsilon_z E_z + j'_{E,z} \delta(\vec{r} - \vec{r}_s). \end{cases} \quad (1.26)$$

La symétrie "E-H" des équations de Maxwell décrit en partie 1.2 permet de retrouver simplement des équations similaires à partir de la seconde équation du couple (1.2).

Puisque toute fonction en coordonnées cylindriques est 2π -périodique en θ , on peut utiliser un développement en série de Fourier pour la variable azimutale θ .

L'identité $\delta(\vec{r} - \vec{r}_s) = \frac{1}{2\pi r_s} \sum_{L=-\infty}^{+\infty} e^{iL(\theta - \theta_s)} \delta(r - r_s) \delta(z - z_s)$ peut être appliquée au système (1.26) pour décomposer les champs magnétique et électrique sur une base de nombres azimutaux L , $F(r, z, \theta) = \sum_{L=-\infty}^{+\infty} e^{iL\theta} F_L(r, z)$. Pour un nombre azimutal L donné, cela revient à résoudre les équations de Maxwell pour une source en anneau (voir figure (1.7)).

Ensuite, on ajoute des couches absorbantes parfaitement adaptées (PMLs, voir la partie 1.3.4) pour les deux milieux extrêmes dans la direction z et ensuite on périodise artificiellement la structure considérée incluant la source, toujours dans la direction z (voir figure (1.7)). La dernière étape permet d'utiliser le théorème de Floquet-Bloch qui assure que toute composante d'un champ $F_L(r, z)$ de nombre azimutal L peut être écrit comme une fonction pseudo-périodique de z , $F_L(r, z) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} e^{i\beta_m z} \tilde{F}_m^L(r)$, où $\beta_m = \beta_0 + m \frac{2\pi}{d}$ et d est la période d'une cellule. Les PMLs garantissent l'absence d'interaction entre chaque cellule périodique. Enfin, en remplaçant la forme résultante des champs dans le système (1.26), on obtient des équations différentielles radiales qu'on choisit d'intégrer analytiquement dans certaines régions de l'espace, après avoir résolu un problème aux vecteurs propres.

La méthode suivante prend en compte une anisotropie uniaxiale, telle que $\epsilon_z \neq \epsilon$ et $\mu_z \neq \mu$, particulièrement requise dans l'implémentation de PMLs. Pour des raisons pédagogiques,

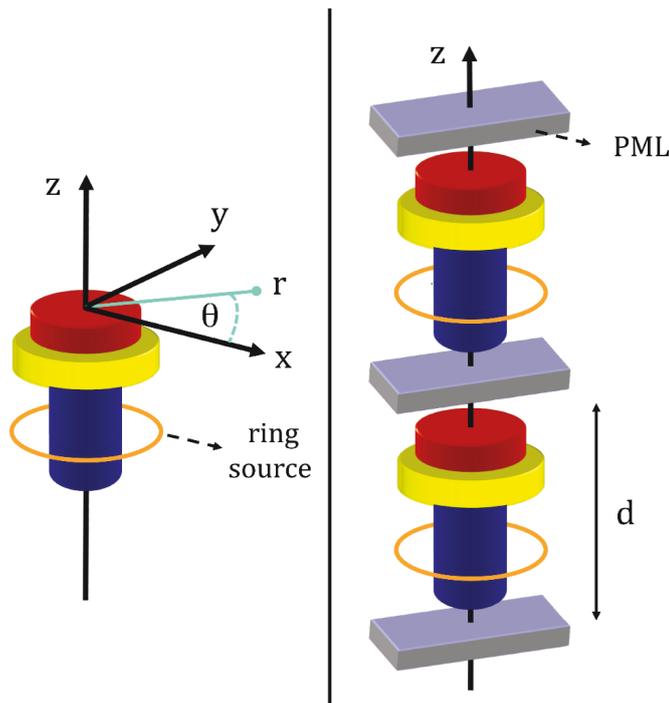


FIGURE 1.7 – *A gauche : Exemple de structure physique étudiée, possédant une taille finie en z . A droite : sa structure numérique associée : l'objet a été périodisé dans la direction z et chaque cellule est découplée par l'introduction de PMLs à l'interface entre deux cellules.*

on introduit ici des PMLs, mais en pratique, on préfère l'utilisation systématique de transformation de coordonnées complexe (voir partie 1.3.4) comme celle définie dans (Hugonin et Lalanne 2005) avec un paramètre $\gamma = 0.5 + 0.5i$, parce qu'elle est plus facile à implémenter et apporte généralement une meilleure convergence.

Dans la suite, lorsqu'il est annoncé qu'on considère des équations liées à un nombre azimutal L donné, nous omettons volontairement l'exposant L des vecteurs de Fourier des champs pour ne pas alourdir les notations.

Maintenant qu'on a posé les bases de la méthode, nous allons détailler les solutions numériques dans une couche.

1.4.2 Solutions dans une couronne radialement homogène

On considère désormais une série de Fourier tronquée à l'ordre N ($m = -N, \dots, N$) pour toute fonction de z . Dans la suite, on indexe par la lettre "p" tout intervalle de rayons $]r_p, r_{p+1}[$, pour lesquels les constantes diélectriques et les perméabilités magnétiques ne dépendent pas de r . En général, une géométrie est conçue en série de couches, $p = 1, 2, \dots$ telles qu'illustrées par la figure 1.8. Pour chaque couche p et pour un nombre azimutal L

donné, le système (1.26) se ré-écrit :

$$\begin{cases} \frac{iL}{r} \tilde{\mathbf{H}}_z - iK \tilde{\mathbf{H}}_\theta = \omega [\epsilon] \tilde{\mathbf{E}}_r, \\ iK \tilde{\mathbf{H}}_r - \frac{\partial \tilde{\mathbf{H}}_z}{\partial r} = \omega [\epsilon] \tilde{\mathbf{E}}_\theta, \\ \frac{1}{r} \frac{\partial r \tilde{\mathbf{H}}_\theta}{\partial r} - \frac{iL}{r} \tilde{\mathbf{H}}_r = \omega \left[\frac{1}{\epsilon_z} \right]^{-1} \tilde{\mathbf{E}}_z, \end{cases} \quad (1.27)$$

où $\tilde{\mathbf{H}}_\alpha$ et $\tilde{\mathbf{E}}_\alpha$ sont des vecteurs des $2N+1$ composantes de Fourier des champs H'_α et E_α respectivement, $[f]$ est la matrice de Toeplitz des coefficients de Fourier de f et K est une matrice diagonale de coefficients $K_{m,m} = \beta_m$. Ici, on a utilisé les règles correctes de factorisation dans l'espace de Fourier (voir partie 1.3.1), en notant que E_r , E_θ et $\epsilon_z E_z$ sont continus en z . Notons aussi que, dans le système (1.27), les matrices $[\epsilon]$ et $\left[\frac{1}{\epsilon_z} \right]$ sont différentes pour chaque couche p . En combinant les équations du système (1.27) avec leur

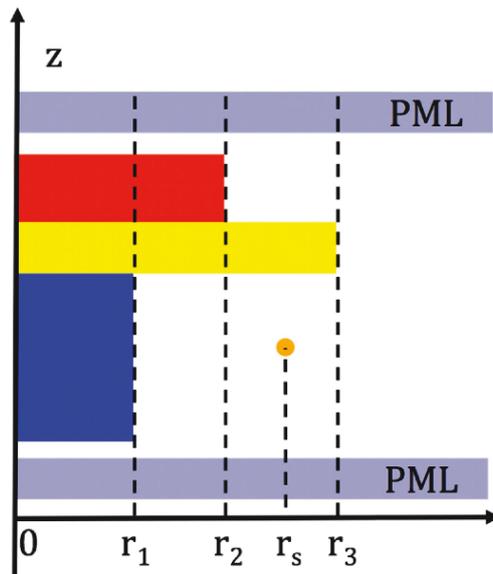


FIGURE 1.8 – Définition d'une structure par ses couches. Dans l'exemple, on définit la structure à l'aide de 4 couches : la première pour $r \in]0, r_1[$, la dernière pour $r \in]r_3, +\infty[$.

version symétrique "E-H", on obtient :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial \tilde{\mathbf{H}}_z}{\partial r} + \left(Z_H \left[\frac{1}{\mu_z} \right]^{-1} - \frac{L^2}{r^2} \right) \tilde{\mathbf{H}}_z = 0, \quad (1.28)$$

où la matrice $Z_H = (\omega^2 [\epsilon] - K [\mu]^{-1} K)$.

L'étape suivante consiste à diagonaliser la matrice $Z_H \left[\frac{1}{\mu_z} \right]^{-1}$ pour chaque couche. On obtient alors :

$$Z_H \left[\frac{1}{\mu_z} \right]^{-1} = P_H D_H^2 P_H^{-1}, \quad (1.29)$$

où D_H est une matrice diagonale de coefficients la racine carrée complexe des valeurs propres, et P_H est la matrice des vecteurs propres correspondants. Comme en partie (1.3.2), la racine carrée d'un nombre complexe a est définie telle que $Im(\sqrt{a}) + Re(\sqrt{a}) > 0$. On notera la similarité entre l'équation (1.29) et l'équation fondamentale des modes TE (1.8) en coordonnées cartésiennes, voir partie 1.3.2. Puisque D_H et P_H sont des matrices indépendantes de r , l'équation (1.28) se réduit à :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial P_H^{-1} \tilde{\mathbf{H}}_{\mathbf{z}}}{\partial r} + \left(D_H^2 - \frac{L^2}{r^2} \right) P_H^{-1} \tilde{\mathbf{H}}_{\mathbf{z}} = 0. \quad (1.30)$$

Les solutions de l'équation (1.30) peuvent être décomposées sur une base d'ondes de Bessel cylindriques, choisie telle que $B_L^+ = J_L + iY_L$ et $B_L^- = J_L$, où J_L et Y_L sont des fonctions de Bessel de première et de seconde espèce, respectivement (voir partie 1.4.5 pour la discussion de ce choix). Les solutions de l'équation (1.30) s'écrivent alors :

$$\tilde{\mathbf{H}}_{\mathbf{z}} = P_H B_L^+(D_H r) \boldsymbol{\chi}_H^+ + P_H B_L^-(D_H r) \boldsymbol{\chi}_H^-, \quad (1.31)$$

où $B_L^\pm(D_H r)$ est une matrice diagonale, $\boldsymbol{\chi}_H^+$ et $\boldsymbol{\chi}_H^-$ sont des vecteurs indépendants de r à $2N + 1$ inconnues, définissant les amplitudes des ondes de Bessel dans une couche donnée. Elles sont fixées par l'amplitude de la source, la structure complète et les conditions aux limites (voir partie 1.4.3). D_H apparaît comme une matrice diagonale des composantes radiales des vecteurs d'ondes des modes de Bessel, dans une couche donnée.

Par la symétrie "E-H" des équations de Maxwell (voir partie 1.2), des expressions similaires peuvent être trouvées pour la composante $\tilde{\mathbf{E}}_{\mathbf{z}}$.

A partir du système (1.27) et de sa version symétrique "E-H" on obtient :

$$\begin{cases} \tilde{\mathbf{H}}_{\theta} = -Z_E^{-1} \left(\frac{\partial \tilde{\mathbf{E}}_{\mathbf{z}}}{\partial r} + LK [\epsilon]^{-1} \frac{\tilde{\mathbf{H}}_{\mathbf{z}}}{r} \right), \\ \tilde{\mathbf{H}}_{\mathbf{r}} = i [\mu]^{-1} \left(L \frac{\tilde{\mathbf{E}}_{\mathbf{z}}}{r} - K \tilde{\mathbf{E}}_{\theta} \right), \end{cases} \quad (1.32)$$

Ce qui nous permet d'évaluer toutes les composantes des champs. Pour cela, il est préférable d'utiliser les deux propriétés générales suivantes des fonctions de Bessel B_L (Abramowitz et Stegun 1964) :

$$\begin{cases} \frac{dB_L(Dr)}{dr} = \frac{D}{2} (B_{L-1}(Dr) - B_{L+1}(Dr)), \\ \frac{LB_L(Dr)}{r} = \frac{D}{2} (B_{L-1}(Dr) + B_{L+1}(Dr)), \end{cases} \quad (1.33)$$

pour exprimer le couple (1.32) en terme d'ondes de Bessel.

Le couple (1.33) fait intervenir des sommes et des différences de fonctions de Bessel. Or, la base de fonctions de Bessel utilisée possède les développements asymptotiques suivants (Abramowitz et Stegun 1964) :

$$\begin{cases} B_L^+(z) \underset{|z| \rightarrow +\infty}{\longrightarrow} \sqrt{\frac{2}{\pi z}} \exp\left(i\left(z - \frac{L\pi}{2} - \frac{\pi}{4}\right)\right) \\ B_L^-(z) \underset{|z| \rightarrow +\infty}{\longrightarrow} \sqrt{\frac{2}{\pi z}} \left(\cos\left(z - \frac{L\pi}{2} - \frac{\pi}{4}\right) + \exp(|Im(z)|) O\left(\frac{1}{|z|}\right) \right) \end{cases} \quad (1.34)$$

En conséquence, pour des rayons r suffisamment grands, les équations (1.33) font intervenir des soustractions ou des additions de termes numériquement infinis, impropres à une évaluation numérique. Pour des raisons de stabilités numériques, on ré-écrit alors toutes les équations précédentes en utilisant les nouvelles ondes de Bessel :

$$\hat{B}_L^\pm(x) = \exp(\mp ix^\pm) B_L^\pm(x) \text{ avec } \begin{cases} x^+ = x \\ x^- = i|Im(x)| \end{cases} \text{ ainsi que les nouvelles amplitudes}$$

$\hat{\chi}_H^\pm(r) = e^{\pm iD_H^\pm r} \chi_H^\pm$ telles que $\hat{B}_L^\pm(D_H r) \hat{\chi}_H^\pm(r) = B_L^\pm(D_H r) \chi_H^\pm(r)$. Cela permet d'éviter de manipuler des nombres très grands, et donc d'effectuer des opérations numériquement instables. En décomposant toutes les composantes de Fourier des champs sur la base d'ondes de Bessel choisie, on peut trouver les matrices M et O suivantes (voir partie (1.6)), de taille $[4(2N+1)] \times [4(2N+1)]$ qui relie les composantes de Fourier des champs aux amplitudes des ondes de Bessel dans une couche donnée :

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_z(r) \\ \tilde{\mathbf{E}}_\theta(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}_z(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}_\theta(r) \end{pmatrix} = M(r) \begin{pmatrix} \hat{\chi}_H^+(r) \\ \hat{\chi}_E^+(r) \\ \hat{\chi}_H^-(r) \\ \hat{\chi}_E^-(r) \end{pmatrix}, \quad (1.35)$$

et

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_r(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}_r(r) \end{pmatrix} = O(r) \begin{pmatrix} \hat{\chi}_H^+(r) \\ \hat{\chi}_E^+(r) \\ \hat{\chi}_H^-(r) \\ \hat{\chi}_E^-(r) \end{pmatrix}. \quad (1.36)$$

En combinant tous les résultats précédents, on peut trouver une matrice S de Fourier (MSF) (voir partie (1.6)), de tailles $[4(2N+1)] \times [4(2N+1)]$, qui relie les composantes tangentielle des champs :

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_z(r + \Delta r) \\ \tilde{\mathbf{E}}_\theta(r + \Delta r) \\ \tilde{\mathbf{H}}_z(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}_\theta(r) \end{pmatrix} = S(\Delta r, r) \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_z(r) \\ \tilde{\mathbf{E}}_\theta(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}_z(r + \Delta r) \\ \tilde{\mathbf{H}}_\theta(r + \Delta r) \end{pmatrix}, \quad (1.37)$$

r et $r + \Delta r$ définissant deux anneaux localisés dans la même couche.

La continuité en r des composantes θ et z des champs, dans une région vide de source, définit la MSF comme un propagateur radial dans une couche donnée. En outre, cette même continuité à toute interface radiale permet d'utiliser le "produit de matrices S " (Li 1996a) entre deux couches consécutives pour obtenir la matrice S équivalente S_{eq} reliant les composantes tangentielle de deux couches différentes. Autrement dit, si S_p et S_{p+1} sont des matrices S correspondant respectivement aux couches p et $p+1$, vides de source, on peut montrer que :

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_z(r_j) \\ \tilde{\mathbf{E}}_\theta(r_j) \\ \tilde{\mathbf{H}}_z(r_i) \\ \tilde{\mathbf{H}}_\theta(r_i) \end{pmatrix} = S_{eq}(r_j - r_i, r_i) \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_z(r_i) \\ \tilde{\mathbf{E}}_\theta(r_i) \\ \tilde{\mathbf{H}}_z(r_j) \\ \tilde{\mathbf{H}}_\theta(r_j) \end{pmatrix},$$

où $S_{eq}(r_j - r_i, r_i) = S_{p+1}(r_j - r_{p+1}, r_{p+1}) \star S_p(r_{p+1} - r_i, r_i)$, \star représente le "produit de matrices S " définit dans la référence (Li 1996a), r_i et r_j sont des points respectivement dans la couche p et $p+1$.

L'analyse de la versatilité de ces matrices S est donnée en partie 1.3.3. Cependant, il est judicieux de noter qu'en coordonnées cylindriques, la MSF dépend également de la position r de la couche, ce qui restreint ici les capacités de modularité de ces matrices S.

Comme on l'a montré dans cette partie, la méthode propage radialement les champs dans une base d'ondes de Bessel. Il faut désormais relier ces champs à la puissance émise par une source dipolaire. Dans la partie suivante, on propose un algorithme pour des sources dipolaires excentrées.

1.4.3 Résolution d'un problème de rayonnement avec une source dipolaire

Etant données toutes les considérations précédentes, pour un nombre azimutal donné L , dans une couche contenant une source dipolaire électrique, le système (1.26) devient :

$$\begin{cases} \frac{iL}{r} H'_z - \frac{\partial H'_\theta}{\partial z} = \omega \epsilon E_r + \delta(r - r_s) J'_{E,r} \Gamma_\beta(z), \\ \frac{\partial H'_r}{\partial z} - \frac{\partial H'_z}{\partial r} = \omega \epsilon E_\theta + \delta(r - r_s) J'_{E,\theta} \Gamma_\beta(z), \\ \frac{1}{r} \left(\frac{\partial r H'_\theta}{\partial r} - iL H'_r \right) = \omega \epsilon_z E_z + \delta(r - r_s) J'_{E,z} \Gamma_\beta(z), \end{cases} \quad (1.38)$$

où $J'_{E,\alpha} = \frac{j'_{E,\alpha}}{2\pi r_s d} \exp(-iL\theta_s)$ et $\Gamma_\beta(z) = \sum_{m=-N}^N \exp(i\beta_m(z - z_s))$.

En combinant les équations du système (1.38) avec leur version symétrique "E-H", puis en décomposant les champs dans la base de Floquet, on obtient les équations (1.39-1.40) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{\mathbf{H}}_z}{\partial r} &= -\frac{LK}{\omega r} \tilde{\mathbf{E}}_z - \left(\omega [\epsilon] + \frac{K [\mu]^{-1} K}{\omega} \right) \tilde{\mathbf{E}}_\theta \\ &\quad - \delta(r - r_s) \left(J'_{E,\theta} + \frac{iK J_{H,r}}{\omega \mu_S} \right) \exp(-i\beta z_s), \end{aligned} \quad (1.39)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial r \tilde{\mathbf{H}}_\theta}{\partial r} &= r \left(\omega \left[\frac{1}{\epsilon_z} \right]^{-1} - \frac{L^2}{r^2} \right) \tilde{\mathbf{E}}_z + \frac{L [\mu]^{-1} K}{\omega} \tilde{\mathbf{E}}_\theta \\ &\quad + \delta(r - r_s) \left(r J'_{E,z} - \frac{iL J_{H,r}}{\omega \mu_S} \right) \exp(-i\beta z_s), \end{aligned} \quad (1.40)$$

où β est un vecteur à $2N+1$ composantes de coefficients β_m et μ_S est la perméabilité magnétique du milieu à la position de la source, dans la polarisation radiale. A partir des équations (1.39-1.40), on déduit la discontinuité radiale des champs à la position de la source :

$$\begin{cases} \tilde{\mathbf{H}}_z(r_s^+) = \tilde{\mathbf{H}}_z(r_s^-) - \left(J'_{E,\theta} + \frac{iK J_{H,r}}{\omega \mu_S} \right) \exp(-i\beta z_s), \\ \tilde{\mathbf{H}}_\theta(r_s^+) = \tilde{\mathbf{H}}_\theta(r_s^-) + \left(J'_{E,z} - \frac{iL J_{H,r}}{\omega \mu_S r_s} \right) \exp(-i\beta z_s). \end{cases} \quad (1.41)$$

On combine ensuite les matrices M et O pour obtenir à partir du couple (1.41) la discontinuité de $\tilde{\mathbf{H}}_r$. En appliquant la symétrie "E-H", des expressions similaires sont trouvées pour $\tilde{\mathbf{E}}_r$, $\tilde{\mathbf{E}}_\theta$ et $\tilde{\mathbf{E}}_z$.

Si la seule source dans le système est une source en anneau, alors l'amplitude des champs dans la couche centrale doit être régulière. En outre, les ondes dans la dernière couche doivent satisfaire à la condition de rayonnement de Sommerfeld lorsque $r \rightarrow \infty$. Ainsi, $\chi^+ = \mathbf{0}$ dans la première couche et $\chi^- = \mathbf{0}$ dans la dernière couche. Les amplitudes χ^- et χ^+ , respectivement dans la première et la dernière couche, restent des inconnues. En utilisant : i) le produit de matrices S entre toutes les couches situées avant et après la source, ii) l'amplitude de la discontinuité radiale des champs, iii) les matrices M dans la première et la dernière couche, on peut résoudre $2 \times (2N + 1)$ équations de ces $2 \times (2N + 1)$ inconnues. Enfin, les matrices S permettent de connaître les coefficients de Fourier des champs partout. En outre, pour évaluer précisément la discontinuité en z des composantes E_z et H_z à partir de leurs coefficients de Fourier, on utilise la méthode décrite dans (Lalanne et Jurek 1998).

Maintenant qu'on a décrit l'algorithme, on peut discuter de ses performances à travers plusieurs exemples.

1.4.4 Exemples

Dans cette partie, on applique la méthode à trois exemples. D'abord, on simule une source dipolaire excentrée, placée dans le vide, dont les propriétés d'émission sont analytiques. Puis, on compare notre méthode avec deux méthodes sur le calcul d'une résonance, la méthode des éléments finis et la méthode présentée dans la référence (Bonod *et al.* 2005). Ensuite, on s'intéresse à quelques propriétés d'une antenne optique. Enfin, on discute le choix des paramètres numériques de l'algorithme.

Source dipolaire excentrée dans le vide

Afin de tester les performances de l'algorithme, on simule dans un premier temps l'émission d'une source dipolaire électrique placée dans le vide. La puissance émise est connue analytiquement. L'émission totale d'un dipôle dans le vide doit rester la même, quel que soit l'excentrement de la source dans l'algorithme. La puissance émise par un dipôle, électrique et magnétique, dans un nombre azimutal L donné peut être évaluée par :

$$P_{emise}^L = \frac{1}{2} Re \left(\vec{J}_{source} \cdot \vec{\Phi}_L^*(r_s) \right) \quad (1.42)$$

où $*$ indique le complexe-conjugué,

$$\vec{J}_{source} = \frac{1}{2\pi r_S} \begin{pmatrix} j_{E,r} \\ j_{E,\theta} \\ j_{E,z} \\ j_{H,r} \\ j_{H,\theta} \\ j_{H,z} \end{pmatrix}, \quad \vec{\Phi}_L = \begin{pmatrix} E_r^L \\ E_\theta^L \\ E_z^L \\ H_r^L \\ H_\theta^L \\ H_z^L \end{pmatrix},$$

\vec{j}_E est la définition usuelle de l'amplitude de la densité de courant électrique (voir partie 1.2). Pour des raisons de symétries, la puissance émise par une source polarisée soit en r , en θ ou en z est répartie de façon égale dans les nombres azimutaux L et $-L$, réduisant le calcul seulement aux nombres azimutaux $L = 0, \dots, L_{max}$. Le théorème de Parseval assure que la puissance totale émise est donnée par $P_{totale} = \sum_L P_{emise}^L$. Ainsi, en sommant sur toutes les contributions azimutales, on peut retrouver la valeur donnée par la formule analytique. Dans notre exemple, on a utilisé un dipôle électrique polarisé verticalement, émettant à une longueur d'onde $\lambda = 1550$ nm et décentré d'une demi-longueur d'onde.

Le tableau (1.1) affiche les contributions des dix premiers nombres azimutaux L à la puissance totale, pour un ordre de troncature de Fourier $N = 150$. Quand on somme toutes ces quantités, on trouve $\sum_L P_{emise}^L / P_{totale} = 1.00000$. Des calculs approfondis montre que la contribution du reste ($L > 9$) est inférieur à 10^{-5} , ce qui illustre la précision de la méthode.

L	0	1	2	3	4
P_{emise}^L / P_{total}	0.10644	0.12118	0.17788	0.32602	0.19579
L	5	6	7	8	9
P_{emise}^L / P_{totale}	0.05977	0.011304	0.00147	0.00014	10^{-5}

TABLE 1.1 – Contributions des dix premiers nombres azimutaux $L = 0, \dots, 9$ à la puissance totale émise par un dipôle excentré de $\lambda/2$ dans le vide, polarisé suivant z . P_{emise}^L inclut les contributions de L et de $-L$. Les calculs ont été opérés avec $2N + 1 = 301$ termes de Fourier.

La figure (1.9) présente les cartes de champ proche pour un nombre azimutal donné. On remarque qu'à nombre azimutal croissant, les maximas sont excentrés. D'après l'équation (1.42), seules les nombres azimutaux possédant des maximas proches d'un rayon de $\lambda/2$ vont contribuer effectivement à la puissance émise. D'après la figure (1.9), cela correspond essentiellement au 5 premiers nombres azimutaux.

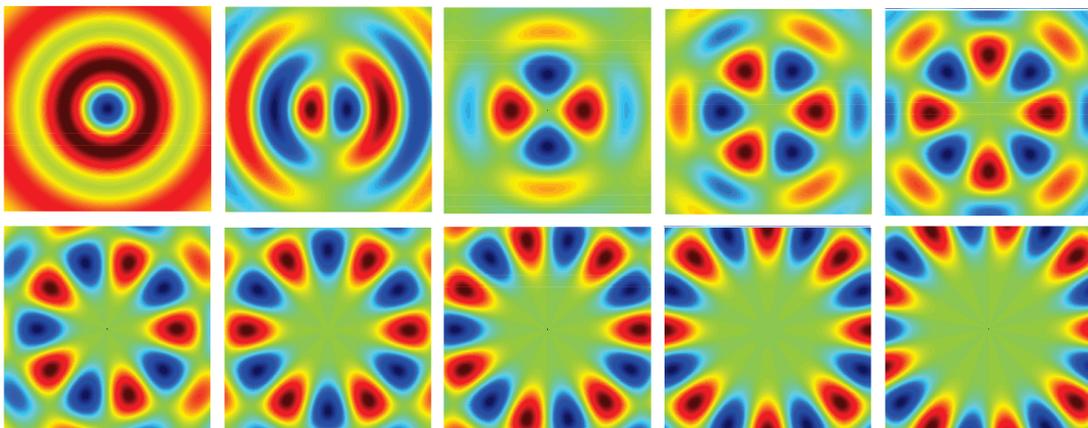


FIGURE 1.9 – De gauche à droite et de haut en bas : Coupe horizontale de la partie imaginaire du champ-proche électrique d'un dipôle excentré de $\lambda/2$ vers la droite, pour un nombre azimutal donné $L = 0, 1, \dots, 9$. Les calculs ont été effectués avec $2N + 1 = 301$ termes de Fourier.

La figure (1.10) présente la somme cohérente cumulée de ces cartes de champ proche. On remarque que la contribution des 5 premiers nombres azimutaux permet bien de retrouver l'essentiel de la structure du champ proche, et la contribution des 7 premiers termes donne la carte de champs proche précisément attendue : un champ électrique à symétrie de révolution autour de la position du dipôle, avec un maximum global à cette position.

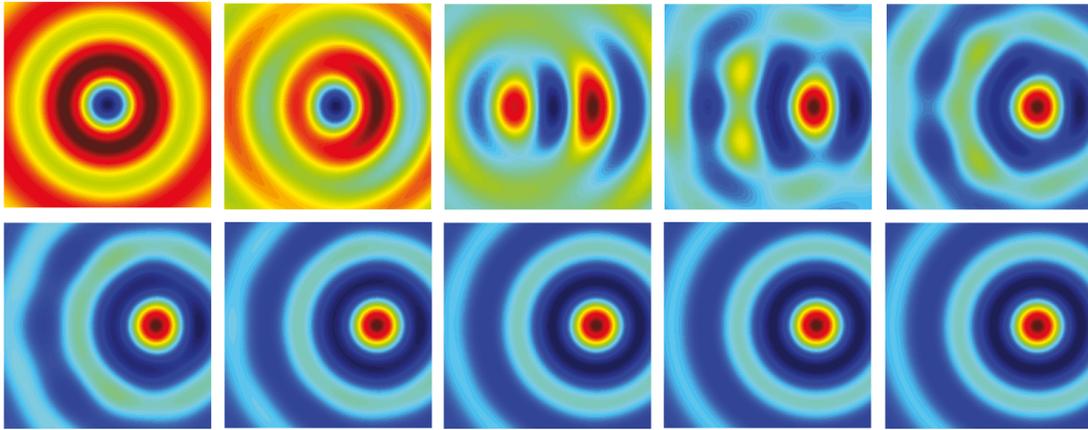


FIGURE 1.10 – De gauche à droite et de haut en bas : Coupe horizontale de la partie imaginaire de la somme cohérente des champs proches électriques $E_{total} = \sum_{L=0}^{L_{max}} E^L$ d'un dipôle excentré de $\lambda/2$ vers la droite, pour un nombre azimutal maximal $L_{max} = 0, 1, \dots, 9$. Les calculs ont été effectués avec $2N + 1 = 301$ termes de Fourier.

Enfin, la figure (1.11) montre que la contribution des 10 premiers nombres azimutaux permet bien de retrouver la forme toroïdale attendue du diagramme de rayonnement.

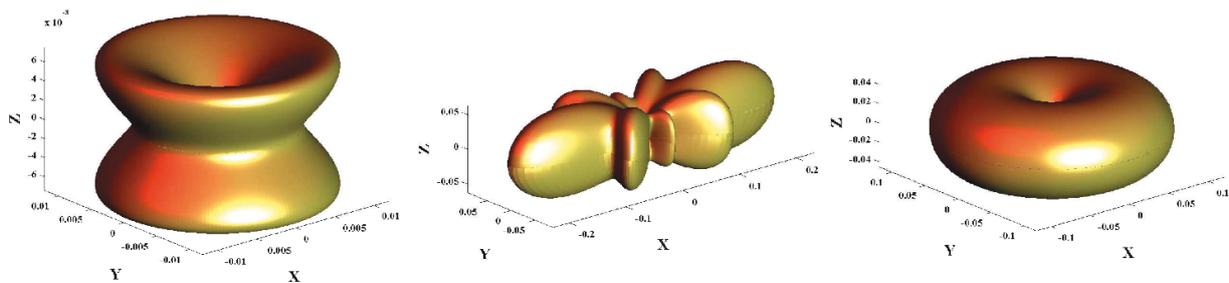


FIGURE 1.11 – De gauche à droite : Diagramme de rayonnement 3D associé à la somme cohérente des champs électriques $E_{total} = \sum_{L=0}^{L_{max}} E^L$ d'un dipôle excentré de $\lambda/2$, pour un nombre azimutal maximal $L_{max} = 0$, $L_{max} = 5$ et $L_{max} = 9$. Les calculs ont été effectués avec $2N + 1 = 301$ termes de Fourier.

Le nano-fil métallique

Dans cette exemple, on compare dans un premier temps notre méthode à des résultats obtenus par un logiciel commercial utilisant la méthode des éléments finis (FEM), pour

obtenir la longueur d'onde propre complexe de la résonance du mode dipolaire fondamental d'un nano-fil d'or placé dans le vide (Sauvan *et al.* 2013; Bai *et al.* 2013). Pour cela, on choisit de calculer la longueur d'onde propre en cherchant le pôle de la composante E_z dans le plan complexe des longueurs d'onde, à la position de la source. Une approche similaire a également été choisie dans le calcul FEM présenté dans la référence (Bai *et al.* 2013). Le nano-fil est long de 100 nm, il possède un diamètre de 30 nm et la permittivité diélectrique de l'or est donnée par le modèle de Drude $\epsilon_{Au} = 1 - \omega_p^2/(\omega^2 + i\omega\gamma)$ avec $\omega_p = 1.26 \times 10^{16} s^{-1}$ and $\gamma = 1.41 \times 10^{14} s^{-1}$ (Bai *et al.* 2013). On cherche un pôle pour le nombre azimutal $L = 0$ de la composante E_z . On utilise pour le calcul une source dipolaire électrique polarisée verticalement et située à mi-hauteur du nano-fil, à un rayon $r_s = 16.5$ nm, i.e. à une distance de 1.5 nm du nano-fil. On utilise ensuite la même approche itérative que l'étude FEM pour le calcul du pôle.

La figure (1.12) montre la convergence de la longueur d'onde de résonance complexe $\tilde{\lambda}$ trouvée pour un ordre de Fourier N donné. La valeur convergée $\lambda_\infty = 917.3666 + 46.8896i$ nm est obtenue par extrapolation de la courbe de convergence (voir la figure (1.19) de la partie 1.4.5). Notons que la valeur de λ_∞ , de même que la courbe de convergence de la figure (1.12) ne dépendent pas de la position de la source. On remarque que la précision augmente exponentiellement avec le nombre de termes de Fourier et pour un ordre de troncature supérieur à 200, celle-ci est limitée au bruit numérique dû à la précision finie du point-flottant. Dans notre analyse, nous avons utilisé des nombres à double précision. La valeur de λ_∞ est en bon accord avec la valeur trouvée avec la FEM (Bai *et al.* 2013) ($\lambda_{FEM} = 917.7210 + 46.9092i$ nm).

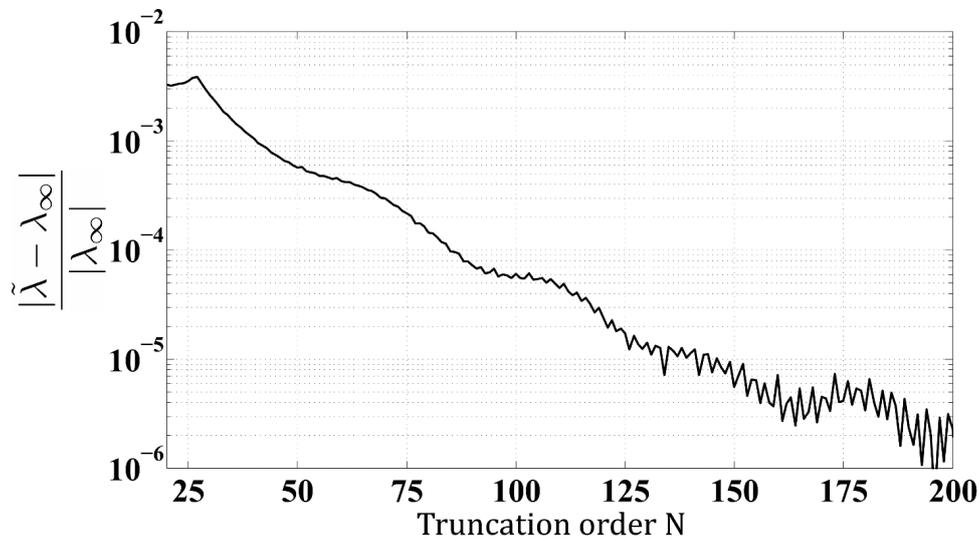


FIGURE 1.12 – Convergence de la longueur d'onde de résonance complexe $\tilde{\lambda}$ calculée en fonction de l'ordre de troncature N des séries de Fourier utilisées pour décomposer le champ dans la direction z . La valeur convergée λ_∞ est obtenue par extrapolation quand $N \rightarrow \infty$.

La figure (1.13) montre la coupe verticale du module de la composante E_z associée à cette résonance. Ici encore, on retrouve les mêmes caractéristiques du champ que celle obtenue dans les études (Sauvan *et al.* 2013; Bai *et al.* 2013).

On compare désormais notre méthode à celle de la référence (Bonod *et al.* 2005), qu'on nommera dans la suite la Méthode Cylindrique à propagation Longitudinale (MCL). Dans cet

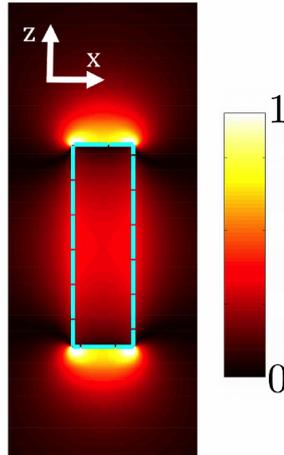


FIGURE 1.13 – Coupe verticale du module de la composante E_z de la résonance dipolaire fondamentale d'un nano-fil d'or représenté par le rectangle bleu. Le nano-fil fait 100nm de long et 30nm de large. Les calculs ont été effectués avec $2N + 1 = 251$ termes de Fourier. La carte d'intensité a été saturée et normalisée par sa valeur maximale.

article, les auteurs présentent une méthode modale de Fourier a périodique en coordonnées cylindriques qui se résume à ces deux étapes : (i) ils opèrent une transformée de Fourier des champs dans la direction radiale (transformée de Hankel) (ii) ils intègrent de façon semi-analytique dans la direction longitudinale, axiale z . Ainsi, du fait de la propagation modale dans la direction de l'axe de symétrie, cette méthode est particulièrement adaptée à l'analyse d'objet relativement long devant la longueur d'onde. A l'inverse, la méthode que nous proposons, dénommée Méthode Cylindrique Radiale (MCR) dans cette partie, est adaptée à l'étude d'objet de diamètre relativement large devant la longueur d'onde. Dans le cas du nano-fil étudié, le diamètre et la hauteur sont relativement de même dimension par rapport à la longueur d'onde, les deux méthodes devraient donc être équivalentes en terme d'efficacité. Nous avons implémenté la MCL et la figure (1.14) compare la convergence des deux méthodes dans le calcul de la résonance dipolaire du nano-fil en fonction du temps de calcul. On remarque alors de façon frappante que la MCR peut être deux ordres de grandeur plus précise à durée de calcul égale. Bien sûr, cela dépend de notre implémentation de la MCL, ainsi que de la méthode itérative permettant d'effectuer la recherche du pôle. Cet exemple montre néanmoins que la MCR peut présenter des performances comparable à l'état de l'art.

L'antenne patch métallique

Dans ce dernier exemple, on étudie quelques propriétés de rayonnement d'un dipôle électrique couplé à une antenne patch métallique (Esteban *et al.* 2010; Belacel *et al.* 2013; (b) Bigourdan *et al.* 2014) (voir figure (1.15)). En particulier, on choisit un dipôle polarisé verticalement inclus au milieu d'une couche de 30 nm de silice ($n_{SiO_2} = 1.45$, (Palik 1985)), prise en sandwich entre un miroir d'or et un disque d'or de 100 nm d'épaisseur ($n_{Au} = 0.5605 + 9.7810i$, (Palik 1985)). On fixe la longueur d'onde à celle des télécoms $\lambda = 1550$ nm et on choisit un diamètre égal à λ . Les caractéristiques géométriques de cette antenne n'ont pas été optimisées pour une quelconque performance, mais s'inscrivent plutôt dans une démarche pédagogique afin de présenter un cas pour lequel notre approche est

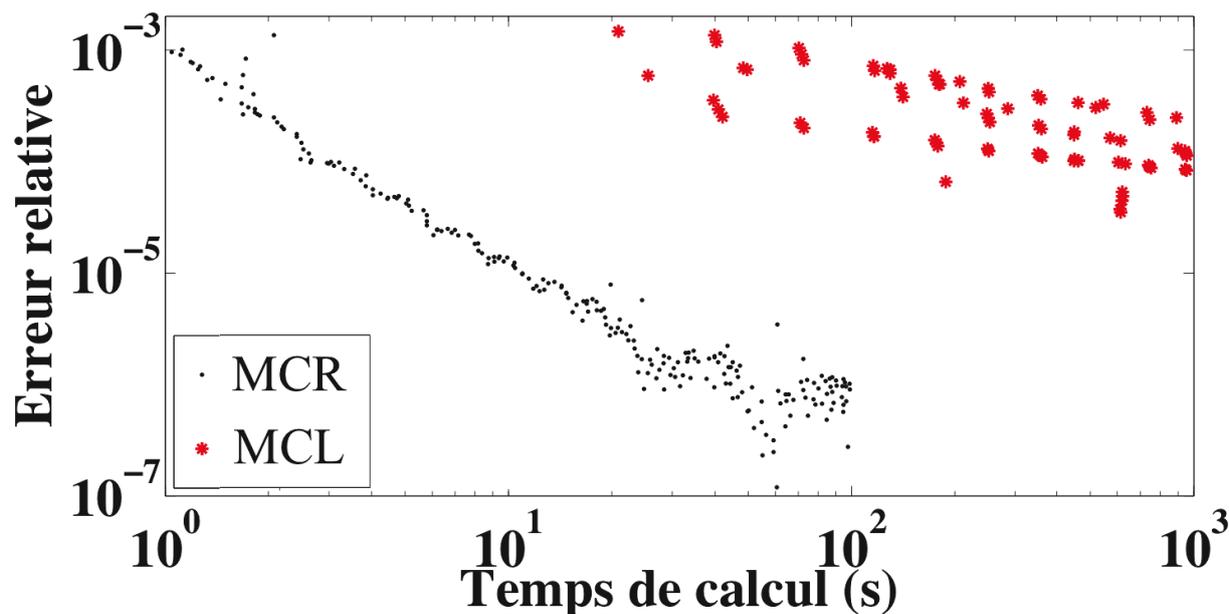


FIGURE 1.14 – Convergence de la longueur d'onde de résonance complexe $\tilde{\lambda}$ d'un nanofil d'or calculée avec deux approches, en fonction du temps de calcul CPU. Le nanofil fait 100nm de long et 30nm de large.

performante.

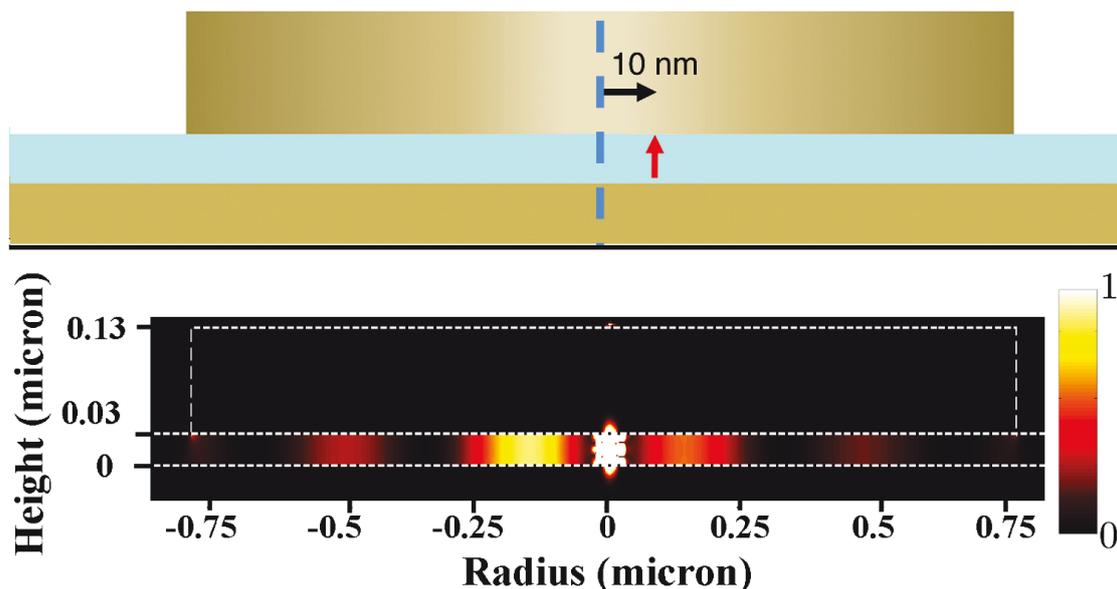


FIGURE 1.15 – En haut : Schéma de l'antenne patch métallique. En bas : Coupe verticale du module carré de la composante E_z du champ électrique rayonné par un dipôle polarisé verticalement et excentré de 10 nm. La longueur d'onde d'émission est $\lambda = 1550$ nm. L'antenne patch comprend une couche de 30 nm de silice et un disque d'or de 100 nm d'épaisseur et de 1550 nm de diamètre. Les calculs ont été effectués avec $2N + 1 = 401$ termes de Fourier et $2L_{max} + 1 = 15$ nombres azimutaux. La carte d'intensité a été saturée et normalisée par sa valeur maximale.

En calculant les champs au voisinage de la source (voir figure (1.15)), on peut déduire plusieurs quantités importantes. Par exemple, la puissance totale émise à partir de la valeur des champs à la position de la source. Ainsi, on peut calculer la modification du taux d'émission spontanée comparé à l'émission d'un dipôle placé dans de la silice massive (voir figure (1.16)). Cela revient à calculer la densité locale d'états optiques ou encore le facteur de Purcell. Ensuite, une transformation de champ proche à champ lointain peut être appliquée pour calculer le diagramme de rayonnement (voir la figure (1.17)) et la puissance rayonnée. Concernant les antennes optiques, l'une des propriétés clés est l'efficacité radiative (voir figure (1.16)). Elle est définie ici par le rapport entre la puissance rayonnée et la puissance totale émise.

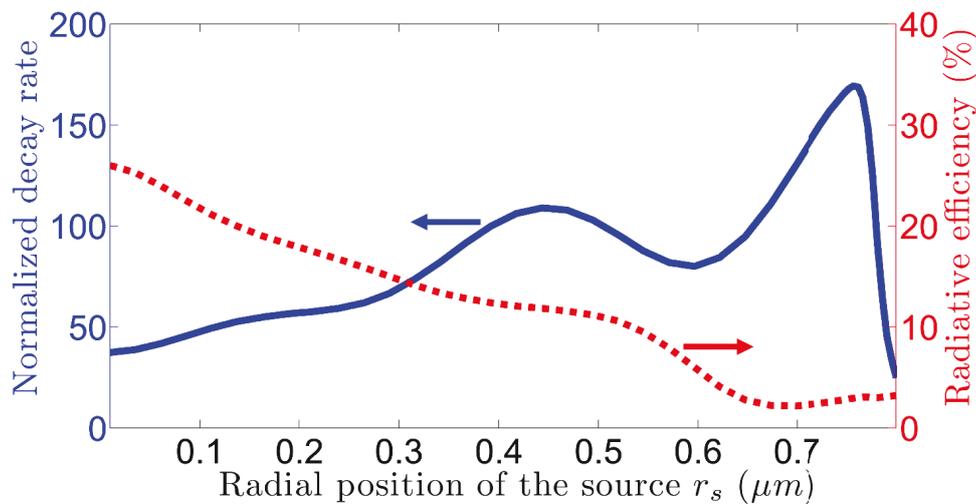


FIGURE 1.16 – En ligne bleue (ordonnée à gauche) : Taux d'émission spontanée d'un dipôle couplé à une antenne patch (voir figure (1.15)) normalisé par le taux d'émission spontanée d'un dipôle dans de la silice massive à $\lambda = 1550$ nm. En pointillé rouge (ordonnée à droite) : Efficacité radiative associée. Les calculs ont été effectués avec $2N + 1 = 401$ termes de Fourier et $2L_{max} + 1 = 81$ nombres azimutaux.

La figure (1.16) présente les tendances générales suivantes. Plus la source dipolaire est éloignée de l'axe central, plus le taux d'émission spontanée augmente et plus l'efficacité radiative diminue. Sauf lorsque cette distance excède le rayon du disque d'or. En effet, sans le disque d'or au dessus du dipôle, le couplage à des modes plasmoniques très confinés de la cavité est perdu. Par conséquent, la puissance totale émise chute drastiquement. Ainsi, le dipôle doit être proche du centre de l'antenne pour profiter i) du maximum d'efficacité radiative, ii) de l'exaltation relativement importante du taux d'émission spontanée. La figure (1.16) peut permettre au concepteurs d'une antenne de déduire la tolérance expérimentale sur le positionnement du dipôle.

La figure (1.17) montre que, dans le cas d'un dipôle soit centré soit au bord du patch, la majorité de la puissance rayonnée peut être collectée dans un cône de 60° de demi-angle au sommet. Cela correspond à une ouverture numérique de 0.85, qui est une valeur standard pour un objectif de microscope commercial.

Dans la partie suivante, nous allons discuter du choix des paramètres numériques.

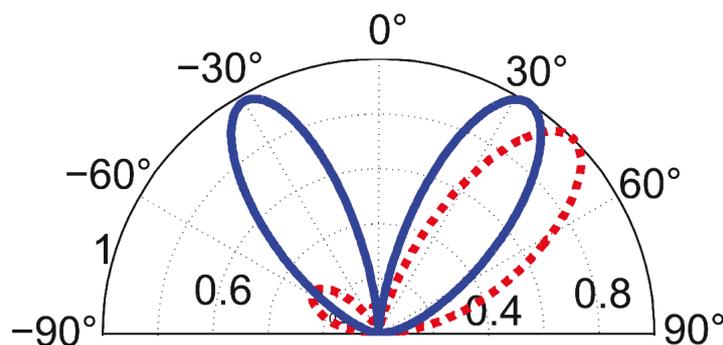


FIGURE 1.17 – Diagramme de rayonnement d'un dipôle électrique polarisé verticalement et couplé avec une antenne patch (voir figure (1.15)) à $\lambda = 1550$ nm. En ligne bleue : Diagramme de rayonnement pour un dipôle excentré de 10 nm vers la droite. Les calculs ont été effectués avec $2N+1 = 401$ termes de Fourier et $2L_{max}+1 = 15$ nombres azimutaux. En pointillé rouge : Diagramme de rayonnement obtenu dans le plan vertical contenant la source, pour un dipôle excentré de 775 nm vers la droite. Les calculs ont été effectués avec $2N+1 = 401$ termes de Fourier et $2L_{max}+1 = 81$ nombres azimutaux.

1.4.5 Discussions

La complexité de l'algorithme proposé se comporte asymptotiquement comme $O(L_{max} \times N^3)$ dans la limite des grands ordres de Fourier N et une analyse complète montre que cette complexité est dominée asymptotiquement par le produit et l'inversion de matrice, impliquées principalement par le "produit de matrices S " (Li 1996a). Ainsi cette complexité est également proportionnelle au nombre de couches de la structure considérée. Dans les cas pratiques ($N < 1000$), la complexité est en générale en $O(L_{max} \times N^\alpha)$ où $\alpha \in [2, 3]$, comme le montre la figure (1.18) dans le calcul de l'antenne patch précédente.

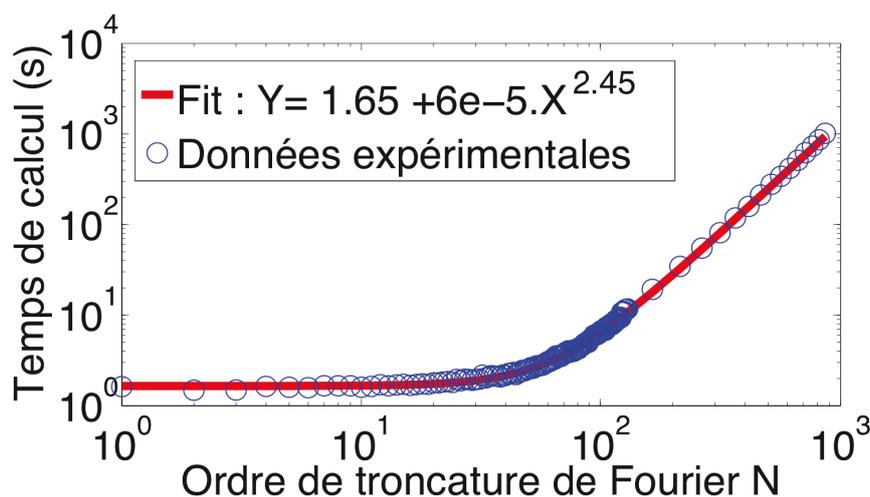


FIGURE 1.18 – Temps de calcul CPU dans le cas d'un dipôle couplé à une antenne patch métallique (voir figure (1.15)) en fonction de l'ordre de troncature N de la décomposition de Fourier des champs.

En règle générale, plus la source s'éloigne de l'axe de symétrie, plus le nombre L_{max} requis

sera grand, à précision donnée. Egalement, du fait de l'utilisation de séries de Fourier dans la direction z , plus la période est grande et plus l'ordre de Fourier N nécessaire sera grand, à précision donnée. La période doit être systématiquement déterminée par une étude de convergence, toutefois comme l'indique (Lalanne et Silberstein 2000) où la convergence a été étudiée pour deux valeurs de la période ($d = 3\lambda$ et $d = 6\lambda$), la valeur exacte de la période n'est pas critique pour la convergence. En pratique, la largeur totale de la PML/transformation de coordonnées complexe est choisie de l'ordre de la longueur d'onde λ , et on choisit une période minimum $d = H_{objet} + \lambda$, où H_{objet} est la hauteur de la structure analysée. D'autre part, les champs peuvent être facilement calculés arbitrairement loin de l'axe z grâce à la décomposition modale radiale et à l'algorithme des matrices S . Ainsi, la méthode est particulièrement adaptée pour la simulation de structures relativement peu épaisses en z mais de grand diamètre.

Au lieu d'utiliser $B_L^- = J_L - iY_L$ pour la base modale, on a choisi d'utiliser $B_L^- = J_L$ pour des raisons de stabilité. En effet, en appliquant la condition d'un champ régulier dans la première couche, la première base implique de manipuler des fonctions divergentes dont les combinaisons, en pratique, restent singulières à cause du bruit numérique. La seconde base, pour laquelle J_L représente une onde cylindrique stationnaire analytique, constitue donc le bon choix au regard de cette condition.

Comme expliqué dans la partie 1.3.5, on peut réduire l'ordre de troncature N du développement en série de Fourier en ajoutant une transformation de coordonnées non-linéaire réelle (Granet 1999) sur l'axe z , ce qui revient simplement à modifier la définition de la matrice K de notre algorithme. La figure (1.19) montre que dans le calcul de l'antenne patch, on peut gagner deux ordres de grandeur sur la précision relative en utilisant une transformation de coordonnées.

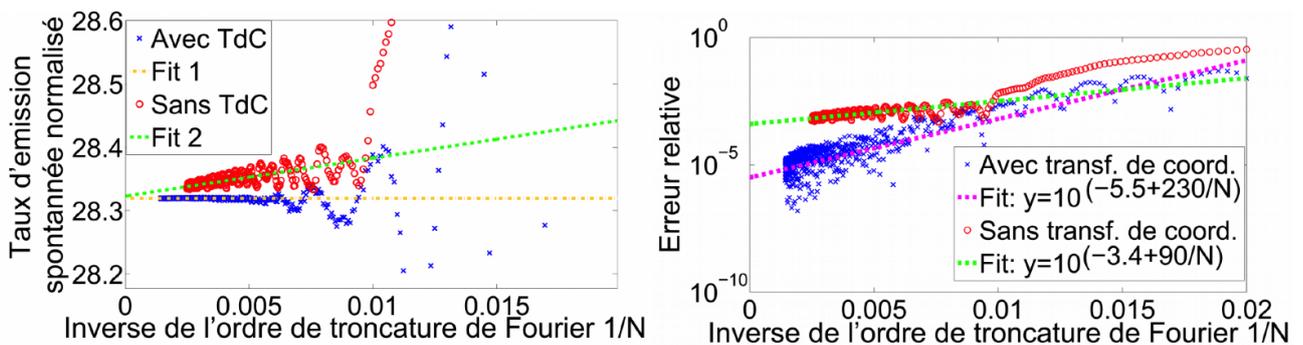


FIGURE 1.19 – Comparaison de la convergence du calcul de l'antenne patch pour une source centrée, avec et sans transformation de coordonnées (TdC). A gauche : Convergence du taux d'émission spontanée. A droite : Erreur associée relative à la valeur convergée obtenue par extrapolation du graphe de gauche.

Néanmoins, à cause de la divergence des ondes de Bessel \hat{B}_L^+ à l'origine, la méthode suggérée n'est pas la plus appropriée lorsque la position radiale de la source tend vers l'axe de symétrie. On peut utiliser un algorithme modifié pour une meilleure convergence. La partie suivante donne quelques lignes directrices pour résoudre ce cas.

1.4.6 Le cas d'une source centrée

Pour calculer correctement le cas d'une source placée sur l'axe central, la méthode à employer se déduit du formalisme précédent et peut se résumer de la façon suivante :

- on prend la limite analytique quand $r_s \rightarrow 0$ de l'amplitude de la source et de la matrice M correspondant à la couche centrale.
- on utilise un calcul intégral (Sipe 1987) pour évaluer l'amplitude des ondes de Bessel sortantes \hat{B}_L^+ émises par une source dipolaire de même polarisation et placée dans un système planaire multi-couches (en z) équivalent à la couche centrale qui serait étendue à l'infini. On évite alors la divergence des ondes de Bessel \hat{B}_L^+ à l'origine, le calcul de leurs amplitudes étant analytique.
- Enfin, la connaissance du champ total et des amplitudes des ondes \hat{B}_L^+ à un rayon donné dans la couche centrale nous permet d'en déduire les amplitudes des champs diffractés dans les ondes \hat{B}_L^- . On utilise alors l'approche de matrice S précédente pour compléter la simulation.

Cette modification de l'algorithme permet d'obtenir une meilleure convergence. Par exemple, le calcul de l'exaltation du taux d'émission spontanée dans le cas d'un dipôle centré dans une antenne patch requiert un ordre de Fourier $N = 70$ pour une précision relative de 5%. Dans le cas d'une source excentrée de 1 nm, il faut utiliser un ordre de Fourier $N = 160$ pour obtenir la même précision. L'étude de convergence montre que l'erreur est au moins un ordre de grandeur supérieur dans le cas d'une source excentrée, à ordre de Fourier N égal. Toutefois, l'approche que l'on a présenté précédemment reste précise pour une source proche du centre, par exemple excentrée de $\lambda/1000$, et la version modifiée décrite dans cette partie ne devient nécessaire qu'en cas de calculs intensifs et systématique avec une source centrée.

1.5 Conclusion

La conception d'antennes optiques requiert des méthodes numériques efficaces et rapides. Le problème est d'avoir une précision meilleure que 1% pour un calcul d'antenne qui rend directionnel une source ponctuelle, ou réciproquement pour un calcul d'antenne qui permet de confiner un faisceau propagatif dans un volume hautement sub-longueur d'onde. Le couplage de l'antenne avec la source ou le récepteur nécessite un calcul très précis du champ à l'échelle du nanomètre, tandis que l'antenne doit posséder une taille caractéristique de l'ordre de la longueur d'onde pour rayonner efficacement et de façon directive. L'utilisation de métaux aux fréquences optiques introduit des modes plasmoniques, possédant de grandes discontinuités des champs aux interfaces. L'ensemble de ces caractéristiques rends la modélisation d'antennes ardue. Dans ce chapitre, j'ai présenté les principes de la méthode RCWA 2D en coordonnées cartésiennes, particulièrement adaptée pour l'étude de réseaux lamellaires. J'ai ensuite présenté une extension d'une méthode modale de Fourier a périodique en coordonnées cylindriques. Cette dernière profite pleinement de la symétrie axiale pour calculer le champ rayonné par une source dipolaire positionnée arbitrairement. Afin d'être capable de gérer des géométries à diamètre large, la méthode utilise une décomposition du

champ dans une base d'ondes de Bessel cylindriques, en intégrant analytiquement leur propagation dans la direction radiale. Cette propagation s'effectue au travers d'un algorithme de matrices S qui relie les composantes de Fourier des champs. Les exemples montrent que cette méthode peut efficacement modéliser des sources situées dans le champ proche de structures larges à symétrie de révolution, qu'elles soient métalliques ou diélectriques. Ces méthodes ont constitué le socle indispensable des outils numériques de ma thèse.

1.6 Annexe

1.6.1 La matrice M

La matrice M s'écrit : $M(r) = \begin{pmatrix} A_+ & A_- \\ C_+ & C_- \end{pmatrix}$

où

$$A_+(r) = \begin{pmatrix} 0 & A_{12}^+ \\ A_{21}^+ & A_{22}^+ \end{pmatrix}, \quad A_-(r) = \begin{pmatrix} 0 & A_{12}^- \\ A_{21}^- & A_{22}^- \end{pmatrix},$$

$$C_+(r) = \begin{pmatrix} C_{11}^+ & 0 \\ C_{21}^+ & C_{22}^+ \end{pmatrix}, \quad C_-(r) = \begin{pmatrix} C_{11}^- & 0 \\ C_{21}^- & C_{22}^- \end{pmatrix},$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} A_{12}^\pm = P_E \hat{B}_L^\pm(D_E r) \\ A_{21}^\pm = Q_{HH} \{ \hat{B}_{L-1}^\pm(D_H r) - \hat{B}_{L+1}^\pm(D_H r) \} \\ A_{22}^\pm = Q_{HE} \{ \hat{B}_{L-1}^\pm(D_E r) + \hat{B}_{L+1}^\pm(D_E r) \} \\ C_{11}^\pm = P_H \hat{B}_L^\pm(D_H r) \\ C_{21}^\pm = Q_{EH} \{ \hat{B}_{L-1}^\pm(D_H r) + \hat{B}_{L+1}^\pm(D_H r) \} \\ C_{22}^\pm = Q_{EE} \{ \hat{B}_{L-1}^\pm(D_E r) - \hat{B}_{L+1}^\pm(D_E r) \} \end{array} \right.$$

et

$$\left\{ \begin{array}{l} Q_{HH} = -\frac{\omega}{2} Z_H^{-1} P_H D_H \\ Q_{EE} = -\frac{\omega}{2} Z_E^{-1} P_E D_E \\ Q_{HE} = -\frac{1}{2} Z_H^{-1} [\mu]^{-1} K P_E D_E \\ Q_{EH} = -\frac{1}{2} Z_E^{-1} [\epsilon]^{-1} K P_H D_H \end{array} \right.$$

1.6.2 La matrice S

En notant les vecteurs : $\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}(r) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}_z(r) \\ \tilde{\mathbf{E}}_\theta(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}_z(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}_\theta(r) \end{pmatrix}$, $\begin{pmatrix} \chi^+ \\ \chi^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_H^+(r) \\ \chi_E^+(r) \\ \chi_H^-(r) \\ \chi_E^-(r) \end{pmatrix}$ et si de plus on note les matrices diagonales $D^\pm = \begin{pmatrix} D_H^\pm & 0 \\ 0 & D_E^\pm \end{pmatrix}$, alors on a les relations :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}(r) \end{pmatrix} &= M(r) \begin{pmatrix} \exp(iD^+r)\chi^+ \\ \exp(-iD^-r)\chi^- \end{pmatrix} \\ &= M(r) \begin{pmatrix} I & 0 \\ 0 & \exp(iD^-\Delta r) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \exp(iD^+r)\chi^+ \\ \exp[-iD^-(r+\Delta r)]\chi^- \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} A_+(r) & A_-(r)\exp(iD^-\Delta r) \\ C_+(r) & C_-(r)\exp(iD^-\Delta r) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \exp(iD^+r)\chi^+ \\ \exp[-iD^-(r+\Delta r)]\chi^- \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (1.43)$$

et

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}(r+\Delta r) \\ \tilde{\mathbf{H}}(r+\Delta r) \end{pmatrix} &= M(r+\Delta r) \begin{pmatrix} \exp[iD^+(r+\Delta r)]\chi^+ \\ \exp[-iD^-(r+\Delta r)]\chi^- \end{pmatrix} \\ &= M(r) \begin{pmatrix} \exp(iD^+\Delta r) & 0 \\ 0 & I \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \exp(iD^+r)\chi^+ \\ \exp(-iD^-(r+\Delta r))\chi^- \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} A_+(r+\Delta r)\exp(iD^+\Delta r) & A_-(r+\Delta r) \\ C_+(r+\Delta r)\exp(iD^+\Delta r) & C_-(r+\Delta r) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \exp(iD^+r)\chi^+ \\ \exp[-iD^-(r+\Delta r)]\chi^- \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (1.44)$$

On a mis en évidence le vecteur commun $\mathbf{\Pi}(r, \Delta r) = \begin{pmatrix} \exp(iD^+r)\chi^+ \\ \exp[-iD^-(r+\Delta r)]\chi^- \end{pmatrix}$ dans les deux équations (1.43-1.44). En échangeant deux lignes de ces équations, on obtient finalement :

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}(r+\Delta r) \\ \tilde{\mathbf{H}}(r) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_+(r+\Delta r)\exp(iD^+\Delta r) & A_-(r+\Delta r) \\ C_+(r) & C_-(r)\exp(iD^-\Delta r) \end{pmatrix} \mathbf{\Pi}(r, \Delta r) \quad (1.45)$$

et

$$\begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{E}}(r) \\ \tilde{\mathbf{H}}(r+\Delta r) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_+(r) & A_-(r)\exp(iD^-\Delta r) \\ C_+(r+\Delta r)\exp(iD^+\Delta r) & C_-(r+\Delta r) \end{pmatrix} \mathbf{\Pi}(r, \Delta r). \quad (1.46)$$

Finalement, les équations (1.45-1.46) permettent d'écrire la matrice S sous la forme :

$$S(\Delta r, r) = T(\Delta r, r)U^{-1}(\Delta r, r),$$

où

$$\begin{aligned} T(\Delta r, r) &= \begin{pmatrix} A_+(r+\Delta r)\exp(iD^+\Delta r) & A_-(r+\Delta r) \\ C_+(r) & C_-(r)\exp(iD^-\Delta r) \end{pmatrix} \text{ et} \\ U(\Delta r, r) &= \begin{pmatrix} A_+(r) & A_-(r)\exp(iD^-\Delta r) \\ C_+(r+\Delta r)\exp(iD^+\Delta r) & C_-(r+\Delta r) \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

1.6.3 La matrice O

La matrice O s'écrit : $O = \begin{pmatrix} O_{11}^+ & O_{12}^+ & O_{11}^- & O_{12}^- \\ O_{21}^+ & O_{22}^+ & O_{21}^- & O_{22}^- \end{pmatrix}$

avec

$$\begin{cases} O_{11}^\pm = O_{EH} \{ \hat{B}_{L-1}^\pm(D_{Hr}) + \hat{B}_{L+1}^\pm(D_{Hr}) \} \\ O_{12}^\pm = O_{EE} \{ \hat{B}_{L-1}^\pm(D_{Er}) - \hat{B}_{L+1}^\pm(D_{Er}) \} \\ O_{21}^\pm = O_{HH} \{ \hat{B}_{L-1}^\pm(D_{Hr}) - \hat{B}_{L+1}^\pm(D_{Hr}) \} \\ O_{22}^\pm = O_{HE} \{ \hat{B}_{L-1}^\pm(D_{Er}) + \hat{B}_{L+1}^\pm(D_{Er}) \} \end{cases}$$

et

$$\begin{cases} O_{EH} = \frac{i}{2\omega} ([\epsilon]^{-1} K Z_E^{-1} K [\epsilon]^{-1} + [\epsilon]^{-1}) P_H D_H \\ O_{HE} = \frac{i}{2\omega} ([\mu]^{-1} K Z_H^{-1} K [\mu]^{-1} + [\mu]^{-1}) P_E D_E \\ O_{EE} = \frac{i}{2} [\epsilon]^{-1} K Z_E^{-1} P_E D_E \\ O_{HH} = \frac{i}{2} [\mu]^{-1} K Z_H^{-1} P_H D_H \end{cases}$$

Chapitre 2

Les antennes patch métalliques pour des sources de photons uniques

Table des matières

1.1	Introduction	15
1.2	La symétrie E-H des équations de Maxwell	17
1.3	La méthode modale de Fourier pour l'analyse 2D	18
1.3.1	Les règles de factorisation dans l'espace de Fourier	18
1.3.2	La décomposition modale dans une couche	20
1.3.3	Les matrices S des champs tangentiels	22
1.3.4	La méthode modale de Fourier apériodique	24
1.3.5	Les transformations de coordonnées réelles non-linéaires	26
1.4	Méthode modale de Fourier apériodique pour l'analyse 3D d'objet de révolution	29
1.4.1	Définition du problème et principes de la méthode	30
1.4.2	Solutions dans une couronne radialement homogène	31
1.4.3	Résolution d'un problème de rayonnement avec une source dipolaire	35
1.4.4	Exemples	36
1.4.5	Discussions	43
1.4.6	Le cas d'une source centrée	45
1.5	Conclusion	45
1.6	Annexe	46
1.6.1	La matrice M	46
1.6.2	La matrice S	47
1.6.3	La matrice O	48

2.1 Introduction

Intérêts de manipuler l'information quantique

Depuis ses prémisses il y a plus de 100 ans, la mécanique quantique révèle un univers contre-intuitif et passionnant. La compréhension du monde microscopique a permis des avancées technologiques considérables, du laser aux smartphones. De nombreux chercheurs ont su trouver des applications aux propriétés quantiques, et jusqu'alors, l'exemple le plus poussé mais aussi le plus complexe semble être la manipulation de l'information quantique : le stockage, le traitement et le transport de cette information. Un ordinateur *quantique* promet des vitesses de calculs exponentiellement plus rapides qu'un ordinateur *classique* (Shor 1997; Ladd *et al.* 2010). Il tire parti du principe de superposition appliqué à des lignes de bits quantiques, les qubits, pour réaliser un grand nombre de calculs simultanément. Un ordinateur quantique pourrait permettre également la simulation de systèmes quantiques complexes (Feynman 1982). Les communications quantiques permettent de connecter des ordinateurs quantiques distants et les lois de la mécanique quantiques garantissent un système de sécurité d'une fiabilité inégalée, à travers le domaine de la cryptographie quantique. Cette dernière se base notamment sur (i) le fait qu'une mesure d'un système quantique perturbe irrémédiablement ce système, (ii) le théorème de non-clonage (Wootters et Zurek 1982), qui interdit la copie parfaite d'un état quantique arbitraire. Contrairement à un système de communication *classique*, il en résulte qu'un système d'écoute espion sur un canal de communication *quantique* peut être détecté. La distribution de clés quantiques (QKD, de l'anglais *Quantum Key Distribution*) fait partie des stratégies de cryptographie quantique les plus populaires.

Pourquoi utiliser la lumière ?

Dans ces différents enjeux, les photons constituent de bons candidats pour le transport et le traitement de l'information quantique : (i) ils se déplacent à la vitesse de la lumière (ii) ils peuvent être facilement manipuler *via* l'optique linéaire (iii) aux fréquences optiques, on peut les propager sur de très grandes distances. Des articles théoriques ont montré qu'il était possible de concevoir des portes logiques à l'origine d'ordinateurs quantiques en utilisant uniquement l'optique linéaire, la seule non-linéarité étant impliquée par les détecteurs (Knill *et al.* 2001; Ralph *et al.* 2001). L'information à manipuler étant quantique, ce système nécessite toutefois des sources de photons uniques. De même, les premières propositions de QKD, les protocoles BB84 (Bennett *et al.* 1984) et E91 (Ekert 1991), utilisaient des sources de photons à émission discrète. Il a été montré plus tard que seuls des états quantiques non-orthogonaux étaient nécessaires pour assurer la sécurité (Bennett *et al.* 1992), ce qui a ouvert la porte à l'utilisation de sources d'états cohérents. Néanmoins, l'utilisation de photons uniques présente un avantage indéniable : cela permet de discriminer deux états avec un minimum d'erreur. Cette propriété est sous-jacente à leur propriété d'*antibunching* : deux détecteurs, aussi proches soient-ils l'un de l'autre, ne peuvent détecter simultanément un photon unique. Dans une expérience de Hanbury Brown et Twiss (Brown et Twiss 1956), cela revient à annuler la fonction de corrélation $g^{(2)}(\tau)$ à délai τ nul, cette fonction permettant de mesurer dans le temps les coïncidences d'intensité entre les deux détecteurs.

Les sources de photons uniques : quels besoins ?

Dans ce chapitre, on s'intéresse à la conception de sources de photons-uniques. Les références (Lounis et Orrit 2005; Eisaman *et al.* 2011) font la revue de l'état de l'art des sources de photons-uniques et de leurs applications. Dans notre approche, on s'intéressera plus spécifiquement aux besoins dans le domaine de l'information quantique. Faisons en premier lieu la liste de ces besoins. Une source de photons uniques idéale doit pouvoir émettre un unique photon à la demande. En cela, la source doit être déterministe, par opposition à une source probabiliste, qui peut émettre un photon unique avec une certaine probabilité. Il est indispensable que la source émette *uniquement* des photons-uniques. Dans une expérience de Hanbury Brown et Twiss, le $g^{(2)}(\tau = 0)$ doit alors être le plus proche de 0. Elle doit être 100% efficace, de sorte qu'un "ordre" d'émission conduise toujours à l'émission d'un photon unique. Cela demande également de pouvoir collecter tous les photons uniques. Ensuite, il faut pouvoir traiter ou communiquer l'information à très haut débit, ce qui implique la possibilité d'émettre très rapidement un photon unique. Il peut être intéressant d'avoir un large choix en longueur d'onde d'émission en fonction des différentes applications. Dans le cas de communications quantiques sur de grandes distances, on s'intéressera par exemple aux bandes de longueur d'onde autour de 1320nm et 1550nm, ces bandes constituant les fenêtres de transparence principales des fibres de silice télécom. Pour limiter les coûts d'utilisation, il est préférable que la source fonctionne à température ambiante. Enfin, pour pouvoir effectuer certaines opérations quantiques, il peut être intéressant que la source émette des photons-uniques indiscernables. Il faut pour cela que les photons possèdent la même énergie, le même mode spatial, la même polarisation et les mêmes profil et durée temporels. Parce qu'ils sont indiscernables, deux photons peuvent interférer quantiquement. Le degré d'indiscernabilité peut être mesuré par une expérience d'Hang-Ou-Mandel, dans laquelle deux photons indiscernables peuvent coalescer (Hong *et al.* 1987; Mandel et Wolf 1995).

Les sources de photons uniques usuelles

Passons maintenant à la pratique. Dans un certain nombre d'expériences, un simple laser en régime de très faible intensité est utilisé. En effet, l'émission d'un laser suit une distribution de Poisson, et à très faible intensité de sortie, la probabilité d'émettre un photon unique devient prépondérante devant la probabilité d'émettre plus d'un photon. Cela en fait donc une source très pratique en fonction des utilisations. Toutefois, cela implique également que le laser n'émet aucun photon la plupart du temps. Cela en fait ainsi une source probabiliste et à débit très limité. Une autre source couramment employée utilise la fluorescence paramétrique. En utilisant un effet non-linéaire d'ordre 2, on peut produire des paires de photons intriqués. Chaque photon de la paire est émis avec un angle non-nul par rapport à l'axe optique, ce qui permet de les séparer. Grâce à la propriété d'intrication, on peut utiliser un canal comme source de photon unique et l'autre canal pour "annoncer" la présence de photons uniques. Toutefois, cela reste une source probabiliste, et la probabilité d'émettre plus d'une paire de photons croît avec la probabilité d'en émettre exactement une, ce qui limite l'efficacité de ces sources.

Une autre approche élégante pour émettre de la lumière quantique consiste à utiliser des sources quantiques, des émetteurs uniques. Le principe étant d'exciter avec une impulsion lumineuse l'émetteur unique, et d'attendre que ce-dernier se désexcite en émettant un pho-

ton unique. Ce sont donc des sources de photons uniques déterministes, avec un $g^{(2)}(\tau = 0)$ de l'ordre de 10^{-2} . Il existe un grand nombre d'émetteurs uniques pouvant être préparés pour n'émettre qu'un photon unique. On peut prendre par exemple un ion, un atome, une molécule, mais aussi un centre coloré du diamant ou encore un nano-cristal (QD, pour l'anglais *Quantum Dot*). Les QDs, qu'on appelle également des boîtes quantiques, sont des cristaux semi-conducteurs composés de quelques dizaines de milliers d'atomes. La taille de ces cristaux est donc de l'ordre de quelques nanomètres. Ce confinement 3D introduit une discrétisation des niveaux d'énergie des excitons, les paires électron-trou, et un QD possède alors des propriétés similaires à un atome. L'un des intérêts majeurs des QDs, c'est qu'on peut modifier dans une certaine mesure leurs propriétés électromagnétiques "à souhait" lors de la fabrication en changeant la taille, la nature des atomes utilisés ou la structure. On peut par exemple adapter la longueur d'onde d'émission d'un type de QD sur une bande spectrale de plusieurs centaines de nanomètres.

Le grand écart entre la longueur d'onde d'émission et la taille d'un émetteur unique implique un mauvais recouvrement spatial entre l'émetteur et les modes propagatifs. De sorte que l'émetteur reste plus longtemps dans un état excité, et qu'il a également une probabilité plus grande de se désexciter de façon non-radiative. Le débit de photons uniques associé à une excitation, qu'on appelle le taux de désexcitation *radiatif*, est donc limité par cette différence de taille. Le fait que le volume d'un QD soit plus grand que celui d'un atome en fait potentiellement un meilleur *radiateur*. En pratique, à température cryogénique, certains QDs sont capables d'émettre des photons uniques avec un débit 10 à 100 fois plus grand qu'un atome, et possède un spectre d'émission fin, de largeur inférieure au nanomètre. Toutefois à température ambiante, des interactions non-radiatives, telle que l'interaction entre l'exciton et des phonons du QD, réduisent le taux de désexcitation *radiatif* et élargissent le spectre d'émission à une dizaine de nanomètres. Typiquement, ce taux est du même ordre de grandeur que celui d'un atome, soit 100MHz. La référence (Buckley *et al.* 2012) fait la revue des sources de photons-uniques basés sur les QDs.

Une antenne et une boîte quantique pour une source de photons uniques

Etant données les bonnes propriétés des QDs pour les besoins de l'information quantique, notre objectif est de concevoir une antenne pour améliorer les propriétés électromagnétiques des QDs afin de réaliser une source de photons-uniques performante à température ambiante. L'antenne va permettre d'améliorer le débit, la directivité de la source et éventuellement son rendement. Une antenne peut également servir à exalter le champ exciteur, mais nous travaillerons à saturation du QD, de sorte que cette contribution ne sera pas discutée. Concernant le débit maximum que l'on peut espérer, il est limité d'une part au débit d'impulsions du laser exciteur, d'autre part au débit de photons-uniques qu'un détecteur peut distinguer. Un laser à impulsion commercial peut délivrer au mieux un débit de l'ordre de 1GHz, toutefois des groupes de recherches ont réussi à obtenir des débits entre 10 et 1000GHz (Krainer *et al.* 2002; Keller 2003; Dagens *et al.* 2008; Mao *et al.* 2013). Les détecteurs commerciaux, souvent des photodiodes à avalanche en silicium, peuvent être très efficaces dans le visible jusqu'à $1\mu\text{m}$ de longueur d'onde et certains peuvent distinguer des débits de 1GHz avec des efficacités supérieures à 60%. Un article récent (Pernice *et al.* 2012) présente un détecteur capable de distinguer des débits de l'ordre de 10GHz autour de $1.55\mu\text{m}$ avec une efficacité supérieure à 91%. On en déduit qu'à l'heure actuelle, il est

raisonnable de chercher à produire une source de photons uniques émettant à la demande des débits de l'ordre de 10GHz autour de $1.55\mu m$. Cela revient à améliorer d'un facteur de l'ordre de 100 le taux de désexcitation radiatif des QDs. Par commodité, on nommera dans ce manuscrit "facteur de Purcell" le facteur d'exaltation du taux de désexcitation d'un émetteur en présence de l'antenne, bien que la définition que E. M. Purcell donna de ce facteur peut en différer (Purcell 1946; Koenderink 2010).

On peut également utiliser une antenne pour améliorer le degré d'indiscernabilité. Lorsque le système {QD+antenne} est bien conçu, le QD se désexcite très rapidement et préférentiellement dans un mode de l'antenne de sorte que (i) les processus de déphasage du QD sont négligeables (ii) les photons sont émis dans le même mode spatial, avec la même polarisation. En outre, si l'antenne a une largeur de résonance plus grande que le spectre de l'émetteur, elle ne modifie pas le spectre d'émission. Toutefois dans ce manuscrit, on ne discutera pas de l'indiscernabilité des photons.

Etat de l'art en début de thèse

Discutons maintenant de l'état de l'art expérimental sur le contrôle de l'émission d'un dipôle au début de ma thèse, en 2011. Ma liste n'est pas exhaustive, mais retrace quelques grands pas effectués dans différentes directions.

Il y a tout d'abord les microcavités diélectriques (Vahala 2003). Elles présentent l'avantage de ne pas absorber la lumière, de sorte que le facteur de Purcell est une exaltation purement radiative. Il y a les micropilliers (Gérard *et al.* 1998; Dousse *et al.* 2008) et les cavités 2D dans des cristaux photoniques (Englund *et al.* 2005) qui ont permis d'obtenir des facteurs de Purcell de l'ordre de 10 et il y a les micro-disques (Gayral *et al.* 2001) qui ont permis d'atteindre des facteurs de Purcell de l'ordre de 150. Toutefois les facteurs de qualité de ces cavités atteignent plusieurs milliers, ce qui a imposé une utilisation à température cryogénique et les problèmes de la directivité et de l'extraction des photons n'ont pas été traités. Pour traiter ces deux problèmes, certains groupes ont étudié des nano-fils mono-modes de GaAs d'une dizaine de micron de haut posé sur différents miroirs (Friedler *et al.* 2009; Claudon *et al.* 2010). Les nanofils possèdent un diamètre qui diminue légèrement sur la hauteur, ce qui permet d'avoir une adaptation d'impédance spatiale du mode de l'antenne avec des modes diffractés, et cela diminue fortement le facteur de réflexion de la cavité. Ils obtiennent théoriquement des efficacités de collection et d'extraction combinées supérieures à 90% et ont démontré expérimentalement qu'ils pouvaient collecter 72% des photons avec un objectif de microscope possédant une ouverture numérique, respectivement de 0.85 et 0.75, sur une grande largeur spectrale. Toutefois le facteur de Purcell ne dépasse pas l'unité. Enfin, un groupe a utilisé un miroir, une lentille solide à immersion et un gradient d'indice pour collecter dans le champ proche d'un émetteur 99% des photons (96% démontré expérimentalement avec un objectif à immersion) (Lee *et al.* 2011; Chen *et al.* 2011) sans toutefois présenter un effet Purcell.

Pour obtenir des facteurs de Purcell élevés à température ambiante, une autre approche a été adoptée, utilisant des antennes métalliques. Ces antennes supportent un ou plusieurs modes plasmoniques très confinés. Cela permet d'obtenir un effet Purcell sur une large bande spectrale. Expérimentalement, deux groupes ont étudié indépendamment le couplage entre une molécule et une nano-sphère d'or (Anger *et al.* 2006; Kühn *et al.* 2006). Ils

ont notamment obtenu une exaltation de fluorescence d'un facteur 20. Par analogie avec son homologue aux fréquences radio, l'interaction de quelques molécules avec une antenne optique bow-tie (de l'anglais "noeud papillon") (Kinkhabwala *et al.* 2009) a permis d'obtenir des facteurs de Purcell estimé à 30. Un groupe a positionné de façon déterministe un centre coloré au centre d'un dimer de nano-sphères d'or (Schietinger *et al.* 2009) et ils ont obtenu un facteur de Purcell *radiatif* de l'ordre de 10. Toutefois dans tous ces cas, l'efficacité de collection n'est pas traitée. Dans (Curto *et al.* 2010), des chercheurs ont étudié une antenne Yagi-Uda optique pour obtenir la directivité de l'émission. Toutefois dans ce cas, l'effet Purcell n'a pas été étudié en détail. A noter que, contrairement aux antennes diélectriques, les antennes métalliques peuvent absorber une partie du champ, de sorte que l'efficacité radiative de ces antennes n'atteint jamais l'unité.

Dans ce chapitre, je présenterai des résultats théoriques et expérimentaux concernant une antenne patch métallique couplées à des QDs. Cette antenne a été étudiée théoriquement en 2010 pour pouvoir associer un grand facteur de Purcell et la directivité à un émetteur unique (Esteban *et al.* 2010). En parties 2.2 à 2.5, je donnerai une analyse théorique de l'essentiel des phénomènes physiques concernant les émetteurs et l'antenne. En partie 2.6, j'analyserai les paramètres et les résultats expérimentaux publiés dans une étude en 2013 (Belacel *et al.* 2013), issus d'une collaboration avec plusieurs laboratoires. Enfin en partie 2.7, j'analyserai l'efficacité de l'antenne.

2.2 Quelques propriétés fondamentales des Quantum Dots

Dans cette partie, on souhaite donner quelques propriétés fondamentales des QDs à partir de modèles simples. Cela permettra de donner une intuition physique des mécanismes de fonctionnement des QDs. Dans un semi-conducteur massif, une paire électron-trou (un "exciton") est régie essentiellement par une interaction de Coulomb. Les propriétés électroniques et optiques d'un cristal semi-conducteur peuvent être fortement modifiées lorsqu'il est nano-structuré. Dans un nano-cristal, l'interaction dans une paire électron-trou est régie par le confinement quantique du cristal. En effet, le rapport entre l'énergie de confinement et l'énergie d'interaction coulombienne d'un exciton est donné par :

$$\frac{E_{\text{confinement}}}{E_{\text{Coulomb}}} = \frac{a_{\text{Bohr}}^*}{R_{\text{QD}}} \quad (2.1)$$

où a_{Bohr}^* est de rayon de Bohr de l'exciton et R_{QD} est le rayon du QD (Brus 1986). a_{Bohr}^* représente la distance à laquelle l'électron et le trou d'un exciton sont liés par interaction de Coulomb. Dans un semi conducteur massif, le rayon de Bohr de l'exciton prend des valeurs comprises entre 1nm et 50nm. R_{QD} étant généralement de l'ordre de 1nm, on peut généralement considéré qu'un exciton d'un QD est en régime de confinement fort. Un simple modèle de puits de potentiel doit donc suffire à donner les caractéristiques principales d'un QD. On pourra toutefois trouver un traitement complet du calcul de la structure de bande d'un nano-cristal dans (Ekimov *et al.* 1993).

Dans un puits de potentiel infini, seuls des états à niveau d'énergie discret sont autorisés à l'instar d'un atome ou d'une molécule. Dans ce modèle, les niveaux d'énergie sont donnés

par :

$$E_n = E_0 + \frac{(n\pi\hbar)^2}{2\mu R_{QD}^2} \quad (2.2)$$

où E_n est l'énergie du n-ième niveau, E_0 est une constante, \hbar est la constante de Planck réduite $h/2\pi$ et $\mu = \frac{m_e m_{trou}}{m_e + m_{trou}}$ est la masse réduite de l'exciton. On en déduit une propriété importante des QDs : l'énergie d'un photon émis dépend de l'inverse de la taille du QD. L'avantage des QDs, c'est qu'en contrôlant leur taille, on peut choisir la longueur d'onde d'émission sur une grande plage spectrale.

Pour qu'une transition entre un niveau excité 2 et le niveau fondamental 1 soit permise, il faut que le moment dipolaire associé à cette transition soit non-nul. Ce moment dipolaire est donné en mécanique quantique par :

$$\langle 1|\vec{p}|2\rangle = -e \cdot \langle \vec{r} \rangle_{12} = \int \psi_1^*(r) (-e \cdot \vec{r}) \psi_2(r) d^3\vec{r} \quad (2.3)$$

où ψ_1 et ψ_2 sont les fonctions d'onde respectivement des niveaux 1 et 2 et e est la charge élémentaire. D'après l'équation (2.3), on voit que pour qu'une transition soit permise, les fonctions d'onde des deux niveaux doivent avoir des parités différentes. Dans le cas du modèle de puits de potentiel infini, ψ_1 et ψ_2 sont données respectivement par des fonctions cosinus et sinus, de sorte que la transition soit permise. Dans ce modèle, l'amplitude du moment dipolaire de transition vaut :

$$\|\langle 1|\vec{p}|2\rangle\| = e \cdot \frac{16}{9\pi^2} R_{QD} \simeq 0.2eR_{QD} \quad (2.4)$$

L'équation 2.4 montre que le moment dipolaire de la transition est proportionnel au rayon du QD. Nous allons maintenant voir son implication sur la puissance rayonnée. On montre que le taux de désexcitation *radiatif* γ_{rad} d'un dipôle dans un milieu diélectrique homogène est donné par :

$$\gamma_{rad} = \gamma_{class} \frac{m_e \omega_0}{2\hbar e^2} \eta_0 \|\langle 1|\vec{p}|2\rangle\|^2 = \gamma_{class} \cdot f_{oscill} \quad (2.5)$$

où $\gamma_{class} = \frac{\omega_0^2 e^2}{6\pi\epsilon_0 c^3 m_e}$ est le taux de désexcitation d'un dipôle électrique classique, m_e est la masse de l'électron, ω_0 est la pulsation associée à la transition et η_0 est le rendement quantique du QD, définit comme le rapport de la puissance rayonnée sur la puissance totale émise par le QD. f_{oscill} est la force d'oscillateur du QD, définit comme le rapport des taux de désexcitation *radiatif* entre un dipôle quantique et un dipôle électrique classique. Ré-écrivons la définition de la force d'oscillateur sous la forme :

$$f_{oscill} = \frac{\|\langle \vec{r} \rangle_{12}\|^2}{r_{class}^2} \quad (2.6)$$

où $\|\langle \vec{r} \rangle_{12}\|$ représente l'amplitude d'oscillation spatiale de l'exciton et r_{class} est le rayon classique de l'électron. Aux fréquences optiques et pour un rendement quantique de 1, $r_{class} \sim 2.5 \times 10^{-2} \text{nm}$. C'est aussi l'ordre de grandeur du rayon d'un atome. On s'attend donc à ce qu'un atome de rendement quantique proche de 1 émette aussi vite qu'un dipôle électrique classique. Au contraire, pour un QD de rayon de l'ordre de 1nm, d'après les équations (2.4) et (2.6), la force d'oscillateur d'un QD est de l'ordre de $f_{oscill} \sim 100\eta_0$. Pour un QD parfait, la puissance rayonnée peut donc être multiplié par 100 par rapport à un atome parfait. Cela peut être vrai à température cryogénique, mais à température

ambiante, la force d'oscillateur d'un QD ne dépasse généralement pas l'unité. La raison provient des interactions thermiquement activées entre le QD et son environnement, qui dégradent le rendement quantique η_0 . A température ambiante, l'exciton va interagir avec des phonons, et ces interactions donnent lieu notamment à des processus de décohérence et ouvrent la porte à des canaux de désexcitation non-radiative. Les QDs peuvent être structurés afin de limiter certains de ces effets. Les QDs à structure "coeur-coquille" sont un exemple qui a permis de réduire efficacement le phénomène de scintillement des QDs (Mahler *et al.* 2008; Wang *et al.* 2009). A noter qu'il a été montré récemment que des QDs coeur-coquille CdSe/CdS pouvait posséder un rendement quantique valant 100% à température cryogénique (Javaux *et al.* 2013).

Nous avons donné un modèle simple permettant de décrire quelques caractéristiques élémentaires des QDs. Dans la pratique, il faut toutefois garder en tête que le puits de potentiel correspondant au QD est fini, de sorte que : (i) seuls quelques niveaux d'énergie existent (ii) le confinement des fonctions d'onde des différents états de l'exciton s'étend en dehors du QD (iii) le moment dipolaire de transition en est amoindri.

Enfin, il est bon de noter qu'il existe essentiellement deux méthodes de fabrication des QDs, les QDs epitaxiés et les QDs colloïdaux. Les premiers présentent l'avantage d'être positionnés de façon déterministe, et leur polarisation peut être fixée dans un plan. Généralement, ils nécessitent toutefois d'être refroidis à température cryogénique pour être performant. Les seconds présentent l'avantage de pouvoir être fabriqués plus facilement par une chimie bien maîtrisée, mais ils ne peuvent être positionnés de façon déterministe. Puisqu'on souhaite avoir une source opérationnelle à température ambiante, nous utiliserons plutôt des QDs colloïdaux.

Nous allons maintenant donner quelques aspects permettant de comprendre le mécanisme par lequel le taux de désexcitation d'un émetteur peut être accéléré.

2.3 Plasmonique : augmenter le débit avec une large bande passante

Dans cette partie, on montre comment le taux de désexcitation d'un émetteur peut être modifié par son environnement. C'est l'effet Purcell, qui sera décrit en partie (2.3.1). En partie (2.3.2) on introduira le domaine de la plasmonique et son intérêt pour la modification de l'émission spontanée.

2.3.1 L'effet Purcell

En mécanique quantique, le taux de désexcitation d'un émetteur est donné par la règle d'or de Fermi (Dirac 1927; Fermi et Orer 1950) :

$$\gamma = \frac{\pi\omega}{12\epsilon_0\hbar} \|\langle 1|\vec{p}|2\rangle\|^2 \rho_p(\vec{r}_p, \omega), \quad (2.7)$$

où ρ_p est la densité locale d'états optiques, qu'on nommera EM-LDOS dans la suite (pour l'anglais *ElectroMagnetic Local Density Of States*). L'EM-LDOS est généralement dépen-

dante de l'orientation du dipôle et elle donne une mesure du nombre de canaux de désexcitation disponibles à la position de l'émetteur. Pour un dipôle placé dans un milieu diélectrique homogène d'indice de réfraction n , l'EM-LDOS est donnée par $\rho_0 = \frac{n\omega^2}{\pi^2 c^3}$. On peut définir la façon dont un environnement modifie le taux de désexcitation par rapport à un milieu homogène à partir du rapport des taux de désexcitation. L'amplitude du moment dipolaire $\|\langle 1|\vec{p}|2\rangle\|$ ne dépendant que de l'émetteur, le facteur de modification du taux de désexcitation est donné par le rapport des EM-LDOS.

En électrodynamique classique, la puissance totale délivrée par un dipôle électrique \vec{p} à son environnement est donnée par :

$$P = \frac{\omega}{2} \text{Im}(\vec{p}^\star \cdot \vec{E}(\vec{r}_p^\star)), \quad (2.8)$$

où \star représente le complexe conjugué et \vec{E} est le champ local produit par le dipôle dans son environnement. Ce champ peut être déduit par la connaissance du tenseur de Green \overleftrightarrow{G} du problème électromagnétique considéré, qui n'est autre que la réponse d'un environnement à un dipôle source de module unité. Ce champ s'écrit alors $\vec{E}(\vec{r}) = \overleftrightarrow{G}(\vec{r}, \vec{r}_p, \omega) \cdot \vec{p}$. Lorsque le taux de désexcitation d'un émetteur est modifié par son environnement, la puissance totale émise est modifiée de la même façon. De sorte que le rapport des puissances totales émises d'un environnement à l'autre équivaut au rapport des taux de désexcitation. On en déduit que l'EM-LDOS d'un environnement donné peut s'écrire :

$$\rho_p(\vec{r}_p, \omega) = \frac{6\omega}{\pi c^2} \text{Im}(\vec{u}_p \cdot \overleftrightarrow{G}(\vec{r}_p, \vec{r}_p, \omega) \cdot \vec{u}_p), \quad (2.9)$$

où \vec{u}_p est un vecteur unitaire donnant l'orientation du dipôle. Ainsi, la modification du taux de désexcitation peut être décrite entièrement par l'électrodynamique classique.

Analysons maintenant les implications de l'équation (2.8) sur un exemple simple. On suppose une cavité unidimensionnelle, comprenant un miroir parfait (1) et un miroir (2) transmettant une partie de l'énergie (voir figure (2.1)). On suppose la cavité monomode. Un mode étant une solution des équations de Maxwell en l'absence de source, on représentera le mode de la cavité par une onde stationnaire dans un premier temps. D'après l'équation (2.8), en plaçant un dipôle sur un noeud du mode, on inhibe son émission spontanée. A l'inverse, en plaçant le dipôle au niveau d'un ventre du mode, l'émission peut être exaltée, l'amplitude du mode dans la cavité étant supérieure à celle en dehors de la cavité.

En régime stationnaire, le nombre de photons stockés dans la cavité ne dépend que des pertes par transmission et est inversement proportionnel au facteur de transmission T_2 . Pour une transmission donnée, la conservation de l'énergie stockée H_{stored} dans la cavité s'écrit :

$$H_{stored} = V_{cav} \frac{\epsilon_0}{2} \|\vec{E}\|^2 = N_{photon} \hbar\omega \propto \frac{1}{T_2}, \quad (2.10)$$

où V_{cav} est le volume de la cavité et N_{photon} est le nombre de photons stockés dans la cavité. Cette relation de conservation implique qu'en diminuant le volume de la cavité, on augmente l'amplitude du mode, de sorte que l'émission d'un dipôle peut être exaltée grâce au confinement du mode. La condition d'existence d'une onde stationnaire limite le volume de la cavité à $V_{min} = (\lambda/2n)^3$, où n est l'indice du milieu diélectrique dans la cavité. Pour pouvoir exalter d'avantage le taux de désexcitation, il faut accroître le nombre de photons

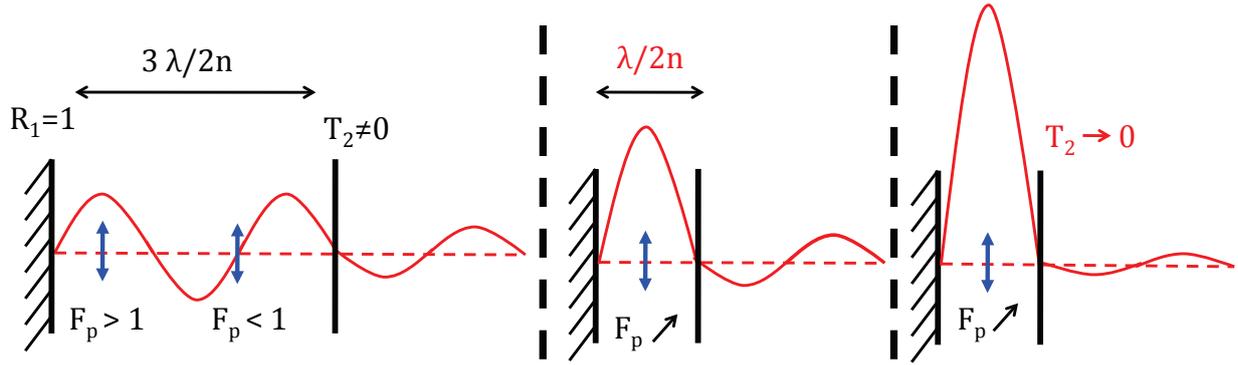


FIGURE 2.1 — *A gauche : un dipôle placé sur un noeud d'un mode de cavité va voir son taux d'émission diminué. A l'inverse, un dipôle placé sur un ventre du champ peut voir une exaltation de son taux de désexcitation. Au centre : en diminuant la taille de la cavité, on augmente l'amplitude du champ, ce qui augmente le taux de désexcitation d'un dipôle placé sur un ventre du mode. A droite : En diminuant les pertes de la cavité, on augmente le nombre de photons stockés ce qui exalte davantage le taux de désexcitation.*

stockés dans la cavité. Cela revient à diminuer la transmission T_2 ou de façon équivalente, à augmenter le facteur de qualité Q de la cavité.

En 1946, Edward M. Purcell publia un article (Purcell 1946) dans lequel il donna le facteur de modification du taux de désexcitation d'un dipôle placé dans une cavité monomode sur un maximum du champ. On l'appelle facteur de Purcell F_p et on peut l'écrire sous la forme :

$$F_p = \frac{6}{\pi^2} \frac{Q}{V_{eff}}, \quad (2.11)$$

où $V_{eff} = V_{cav}/(\lambda/2n)^3$. V_{eff} donne ainsi une mesure du confinement par rapport à la limite d'une cavité cubique fermée composée de miroirs parfaitement réfléchissants. Le facteur de Purcell retranscrit les mêmes dépendances avec le facteur de qualité et le confinement du mode que celles données par le modèle simple précédent.

La description du modèle précédent, si elle permet d'obtenir un bon accord dans le cas de cavités possédant un grand facteur de qualité ($Q \gtrsim 10^3$), échoue pour des cavités à faible facteur de qualité. La raison provient de l'inexactitude de la description précédente par des ondes stationnaires qu'on nomme modes normaux. La description par des modes normaux n'est exacte que pour un système fermé, sans perte et non-dispersif. Dans le cas d'une cavité ouverte et dissipative, les modes quasi-normaux forment une base complète (Ching *et al.* 1998). Ces modes sont définis par une fréquence propre complexe, dont la partie imaginaire donne le taux de décroissance temporelle caractérisant la dissipation de l'amplitude du mode. Ce déclin temporel implique également une amplification spatiale exponentielle des modes quasi-normaux en dehors de la cavité, la définition d'un volume modal par le volume de la cavité n'a donc pas de sens. En outre, les modes quasi-normaux ne sont pas orthogonaux pour un système ouvert, dissipatif et *dispersif*. Il a toutefois été montré récemment qu'en règle générale, quelques modes quasi-normaux suffisent à décrire les propriétés électromagnétiques d'une cavité dispersive, et pour une cavité monomode, le facteur d'exaltation du taux de désexcitation peut s'écrire sous la forme (Sauvan *et al.*

2013) :

$$F_p(\vec{r}_p) = \frac{6}{\pi^2} \text{Re} \left(\frac{Q}{\tilde{V}_{eff}} \right), \quad (2.12)$$

où Q est la définition usuelle du facteur de qualité, et \tilde{V}_{eff} est une quantité complexe dépendant de la position \vec{r}_p et de l'orientation \vec{u}_p du dipôle. A noter toutefois qu'en général, pour un nano-résonateur, l'ordre de grandeur de $|\tilde{V}_{eff}|$ est de l'ordre du volume du résonateur. On peut donc utiliser la formule (2.11) pour donner des ordres de grandeur et des tendances d'évolution du facteur de Purcell d'un type d'antenne à un autre.

Par commodité, on nommera dans ce manuscrit indistinctement "facteur de Purcell" le facteur d'exaltation du taux de désexcitation en présence d'une cavité ou d'une antenne, à une position donnée du dipôle. Ainsi, contrairement à la définition originale, le dipôle ne sera pas nécessairement placé au maximum du champ. Le facteur de Purcell est calculé rigoureusement à partir du tenseur de Green \overleftrightarrow{G} de l'environnement électromagnétique complet et d'un ratio d'EM-LDOS par rapport à une situation de référence, via l'équation (2.9).

Pour une cavité diélectrique à facteur de qualité élevé, par exemple une cavité à miroir de Bragg, il est possible d'obtenir de grands facteurs de qualité. Toutefois, le volume minimum d'une telle cavité étant limité par $(\lambda/2n)^3$, le volume effectif ne peut être inférieur à 1. De sorte qu'au mieux, le facteur de Purcell maximum d'une telle cavité ne peut dépasser $F_{p,max} = \frac{6}{\pi^2} Q$. En pratique, il est difficile d'obtenir un volume effectif unité avec ce type de cavité. Ainsi pour avoir une exaltation significative du taux de désexcitation, un facteur de qualité très élevé est nécessaire ($Q \gtrsim 10^4$). Cela impose un émetteur possédant un spectre d'émission fin, et donc de travailler à température cryogénique.

Pour contourner ce problème, les antennes métalliques sont de bons candidats. Elles supportent des modes *plasmoniques* aux propriétés intéressantes. Dans la partie suivante, nous allons étudier quelques unes de ces propriétés.

2.3.2 Plasmon, Quenching et cavité MIM

Les modes plasmoniques : d'un simple miroir à la cavité MIM

Les plasmons polariton de surface sont des modes électromagnétiques se propageant uniquement à l'interface entre un milieu diélectrique et un métal. Ces modes résultent d'un couplage *électromécanique*. Un métal peut être vu comme un gaz d'électrons libres. Ces électrons étant des particules chargées, lorsqu'une onde mécanique se propage dans ce gaz, un champ électromagnétique est produit. Ce sont les plasmons polaritons.

Les modes plasmoniques d'une structure sont des solutions des équations de Maxwell sans terme source, pour la géométrie étudiée. D'une manière générale, à un pôle d'une amplitude de diffusion va correspondre une solution des équations de Maxwell pour une amplitude source nulle. On peut ainsi déterminer la relation de dispersion d'un mode plasmonique, i.e. la relation entre le vecteur d'onde et la fréquence caractérisant le mode, en cherchant un tel pôle. Le choix de la recherche d'un pôle en fréquence ou en vecteur d'onde mène à des relations de dispersion distinctes correspondant à une situation d'excitation donnée (Archambault *et al.* 2009).

Prenons un exemple simple. Dans le cas d'une interface entre un miroir métallique (de constante diélectrique ϵ_m) et un milieu diélectrique (de constante diélectrique ϵ_d), il est possible de déterminer le vecteur d'onde d'un mode plasmonique en cherchant à une fréquence réelle fixée, un pôle dans le plan *complexe* d'un facteur de réflexion. Seul le facteur de réflexion en polarisation TM (=Transverse Magnétique) autorise l'existence d'un pôle, et il conduit à la composante tangentielle du vecteur d'onde :

$$k_{spp} = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_m \epsilon_d}{\epsilon_m + \epsilon_d}}, \quad (2.13)$$

où $k_0 = \omega/c$. L'existence d'un tel mode est possible si $Re(\epsilon_m)$ et ϵ_d sont de signe opposé. Du fait de cette différence de signe, l'équation (2.13) impose la nécessité d'avoir $Re(\epsilon_m) < -\epsilon_d$ afin que $Re(k_{spp}) > 0$. Cela implique que $Re(k_{spp}) > k_0 \sqrt{\epsilon_d}$, de sorte qu'aucune onde plane ne peut se coupler à un tel mode. Cela implique également que pour un mode plasmonique, la composante du vecteur d'onde normale à l'interface est nécessairement complexe, de sorte que le champ décroît exponentiellement à partir de l'interface (voir figure (2.2)). Ainsi, le mode plasmonique est confiné à l'interface, et ne peut se propager qu'en surface. D'où l'appellation de plasmon polariton de *surface*. On parlera d'indice effectif du mode plasmonique pour désigner le rapport $n_{eff} = Re(k_{spp})/k_0$. Ainsi, plus l'indice effectif est grand, plus le champ du mode est confiné.

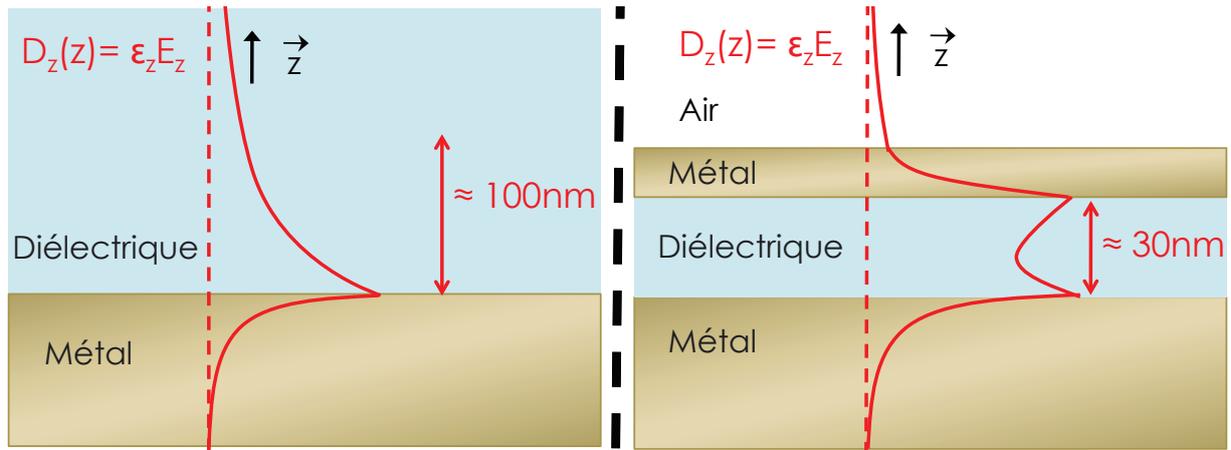


FIGURE 2.2 – *A gauche : Schéma de l'évolution du champ d'un mode plasmonique à l'interface entre un miroir métallique et un milieu diélectrique. Le champ décroît exponentiellement à partir de l'interface. A droite : Structure du champ d'un mode plasmonique confiné dans une structure MIM.*

Du fait du grand désaccord en vecteur d'onde entre une onde plane et un plasmon de surface, ces modes ne peuvent être excités que dans certaines situations. On peut par exemple placer l'interface dans le champ proche d'un diffuseur (un atome, une fente dans le métal, une particule métallique ou diélectrique, un réseau...). Ce champ proche contient un continuum d'ondes évanescentes, avec des vecteurs d'onde pouvant être du même ordre de grandeur que celui d'un plasmon de surface. A une distance d d'un dipôle, le vecteur d'onde maximum atteignable est de l'ordre de $k \sim 1/d$, de sorte qu'un émetteur peut se coupler à un mode plasmonique pour des distances $d \lesssim 100\text{nm}$. Plus le dipôle est proche de l'interface, plus le recouvrement entre une onde évanescente du dipôle et le mode plasmonique de l'interface est

grand. En d'autres termes, le couplage entre un émetteur et un plasmon polariton de surface est efficace pour de très courtes distances dipôle-interface. Puisque le mode plasmonique est une résonance du facteur de réflexion en polarisation TM, on s'attend à ce que le couplage à un plasmon de surface d'un dipôle orienté perpendiculairement à l'interface soit plus grand que pour un dipôle orienté parallèlement à l'interface.

Pour accroître le confinement électromagnétique, on peut reprendre l'exemple d'une cavité métallique formé de deux miroirs séparés d'un milieu diélectrique. On parle de cavité MIM pour l'anglais *Metal-Insulator-Metal*, en référence à la structure de la cavité (voir figure (2.2)). On trouvera quelques références, non-exhaustives, étudiant des cavités MIM pour l'émission de lumière dans (Ford et Weber 1984; Maier 2006; Jun *et al.* 2008; (b) Jun *et al.* 2009). En espaçant les deux miroirs d'une couche de diélectrique d'une dizaine de nanomètres, seuls l'existence de modes plasmoniques est autorisée. Les plasmons de chaque interface vont se coupler fortement de sorte que la relation de dispersion des modes résultants n'est plus la même. La relation de dispersion de chaque mode peut être déterminée à partir des pôles du facteur de réflexion en amplitude de la structure MIM. L'exaltation de l'intensité résulte notamment de la faible valeur de la constante diélectrique de la couche isolante du MIM par rapport à la constante diélectrique du métal. En effet, le champ du mode est polarisé perpendiculairement aux interfaces. Or, la continuité du vecteur déplacement électrique $D_z = \epsilon_z E_z$ impose que le champ dans la couche diélectrique soit exalté par rapport au champ dans le métal d'un facteur $\left| \frac{E_z^{diel}}{E_z^{metal}} \right| = \left| \frac{\epsilon_m}{\epsilon_d} \right|$.

Pour rester cohérent avec la suite du chapitre, l'un des deux miroirs est réduit à un film métallique d'une dizaine de nanomètres séparant deux milieux diélectriques. Un des modes plasmoniques possède un indice effectif plus grand que les autres, avec un champ électrique essentiellement confiné dans la fine couche de diélectrique, de sorte que la contribution de ce mode sera prépondérante dans l'exaltation de l'émission spontanée d'un dipôle placé dans la cavité MIM. L'indice effectif d'un mode plasmonique croît lorsqu'on diminue l'épaisseur du film, de sorte que le mode est plus confiné pour un film fin (voir Chapitre 3, partie 3.2.1). En dessous d'une épaisseur de 20nm, le film d'or subit généralement un phénomène de percolation. Le confinement permettant d'obtenir l'effet Purcell, dans la suite, on choisira un patch comprenant un film de 20nm.

L'étude expérimentale qui sera présentée en partie (2.6) utilise des QDs émettant à $\lambda = 630\text{nm}$. De même, les matériaux utilisés sont l'or et la silice. Dans la suite de ce chapitre, on utilisera cette longueur d'onde et ces matériaux pour les différents calculs. La figure (2.3) donne le facteur de Purcell d'un dipôle placé au centre d'une cavité MIM, en fonction de l'épaisseur de silice et de l'orientation du dipôle. Plus on diminue l'épaisseur de diélectrique, plus (i) l'indice effectif du mode plasmonique est grand (ii) le champ est confiné (iii) le couplage au mode est efficace. Il en résulte que le facteur de Purcell croît lorsqu'on diminue d'épaisseur de silice. On remarque également que le facteur de Purcell pour un dipôle polarisé perpendiculairement au MIM est $\sim 20\times$ plus grand que pour une polarisation parallèle au MIM. Cela concorde avec le fait que le mode est une résonance du facteur de réflexion en polarisation TM.

Nous allons maintenant nous intéresser à l'épaisseur minimale de silice qu'on peut utiliser. En effet, à très courtes distances, un dipôle peut se désexciter essentiellement dans un canal non-radiatif, le *Quenching*. Une épaisseur optimale de silice assure alors un confinement et un couplage efficace au mode plasmonique, tout en minimisant le couplage au quenching.

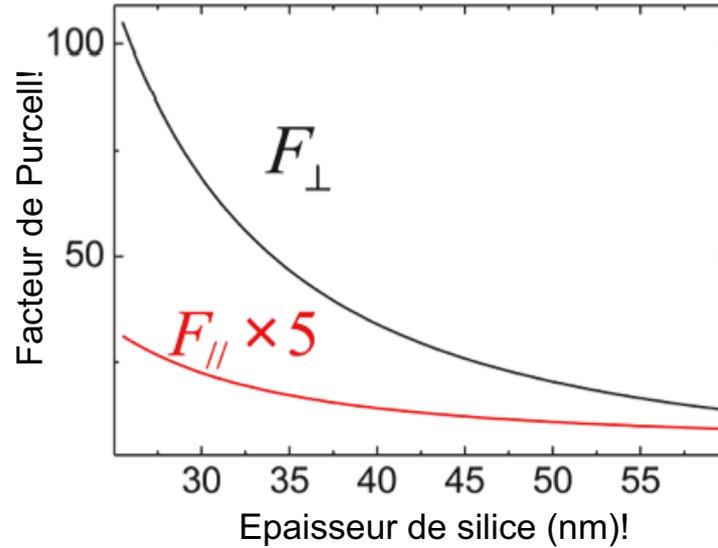


FIGURE 2.3 – Evolution du facteur de Purcell en fonction de l'épaisseur de silice d'un MIM comprenant un film d'or de 20nm d'épaisseur et pour un dipôle orienté parallèlement (en rouge) et perpendiculairement au MIM (en noir). Le MIM est immergé dans de l'huile, d'indice de réfraction égale à celui de la silice ($n_{\text{huile}} = 1.45$).

La contribution du quenching

Le quenching est le chauffage électrostatique d'un métal par un dipôle. D'après l'équation (2.8), la puissance dissipée par quenching est donnée par la partie imaginaire du champ électrostatique émis par le dipôle et réfléchi par le miroir. Le champ électrostatique d'un dipôle évoluant en $1/R^3$ à la distance R , le quenching évolue suivant une loi en $1/d^3$ pour un dipôle placé à une distance d d'une surface métallique (Chance *et al.* 1978; Ford et Weber 1984). Dans un premier temps, on étudie le taux de désexcitation d'un dipôle placé dans de la silice au voisinage d'une surface d'or (voir figure (2.4)). Le but est d'étudier la transition entre un régime de courtes distances dominé par le quenching, et un régime dominé par le couplage au mode plasmonique. Pour le calcul, on choisit un dipôle perpendiculaire à l'interface pour assurer un couplage maximal au mode plasmonique. Le champ d'un mode plasmonique évoluant suivant une exponentielle décroissante à partir de l'interface, on ajuste le facteur de Purcell par une loi en $1/d^3$ pour de très courtes distances et une loi exponentielle décroissante pour des distances supérieures à 30nm. La figure (2.4) montre que la somme des deux contributions permet bien de retrouver l'évolution du facteur de Purcell. Elle montre également que la transition entre les deux régimes s'effectue à une distance $d \simeq 7\text{nm}$. A une distance de 15nm, le quenching contribue à $\sim 20\%$ au facteur de Purcell. Ainsi, pour une distance supérieure à 15nm, le couplage au mode plasmonique est dominant.

Pour prendre en compte la structure MIM, on étudie maintenant l'évolution du taux de désexcitation d'un dipôle en fonction de sa position dans la couche de diélectrique (voir figure (2.5)).

Etant donnée l'analyse précédente, on choisit une épaisseur de silice de 30nm pour garantir la dominance de la contribution du mode plasmonique au centre de la couche. Dans ce cas,

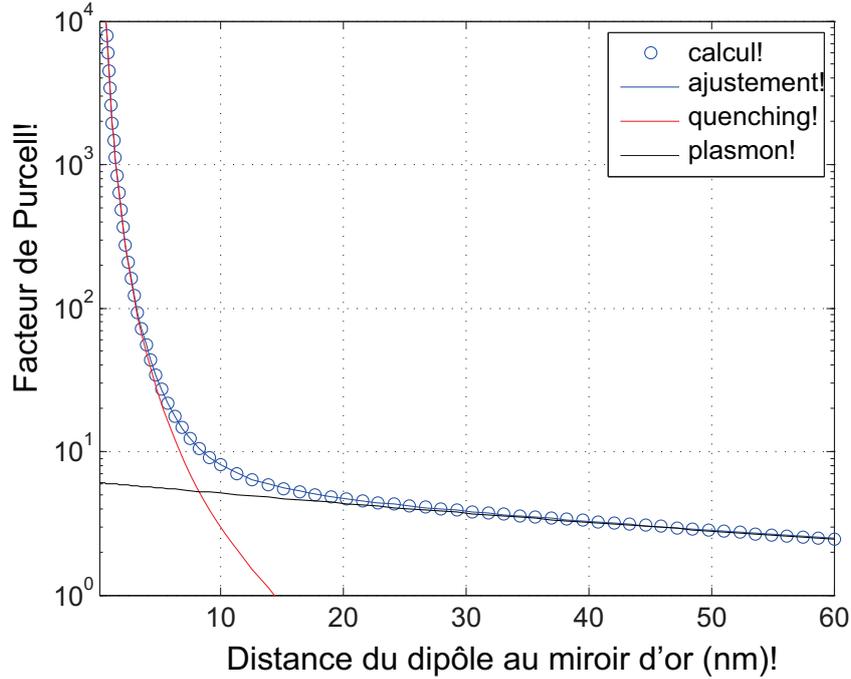


FIGURE 2.4 – Evolution du facteur de Purcell pour un dipôle perpendiculaire à un miroir, en fonction de la distance dipôle-miroir d . Les cercles bleus sont donnés par une évaluation numérique du tenseur de Green. Ce résultat exact est ajusté par une décroissance exponentielle (contribution du mode plasmonique, en noir) et une évolution en $1/d^3$ (correspondant au quenching, en rouge).

la structure MIM confine le champ du plasmon, de sorte que sa contribution au facteur de Purcell est augmentée de façon significative à une distance de 15nm de chaque interface. A l'inverse, la contribution du quenching est légèrement modifiée, de sorte qu'elle représente moins de 5% de l'exaltation du taux de désexcitation. On note en outre que pour des positions du dipôle entre 5nm et 25nm, le facteur de Purcell est quasiment constant tandis que la contribution du quenching est négligeable. En résumé, la conception d'une structure MIM possédant une épaisseur de 30nm de silice garantit que l'émission spontanée soit dominée par le couplage au mode plasmonique.

Outre le quenching, des effets non-locaux peuvent apparaître pour des épaisseurs de diélectrique inférieures à $e_{diel} \lesssim 5\text{nm}$ (Moreau *et al.* 2013). En prenant une épaisseur de silice de 30nm, l'antenne peut être correctement décrite par une modélisation locale.

Un dipôle placé dans un tel MIM ne peut rayonner. En effet le vecteur d'onde du mode plasmonique confiné étant supérieur à k_0 , ce mode ne peut se coupler à aucune onde plane se propageant dans le superstrat. Nous allons voir l'approche que nous avons adopté pour permettre le rayonnement du mode confiné.

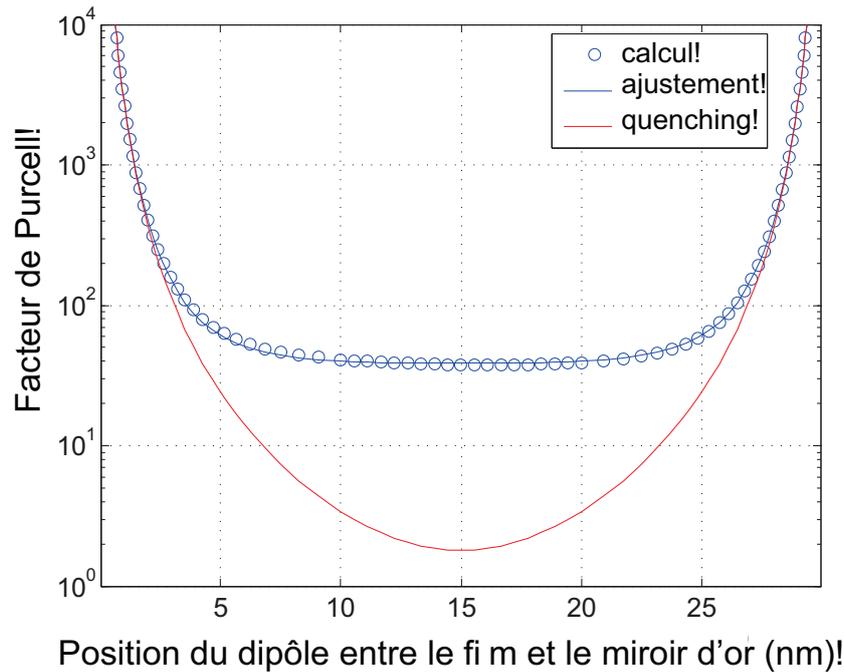


FIGURE 2.5 – Evolution du facteur de Purcell pour un dipôle orienté perpendiculairement à un MIM possédant un film d'or de 20nm d'épaisseur, en fonction de sa position dans la couche de silice. Le MIM est immergé dans de l'huile de même indice de réfraction que la silice. Les cercles bleus sont donnés par une évaluation numérique du tenseur de Green. Ce résultat exact est ajusté par une décroissance exponentielle (contribution du mode plasmonique) et une évolution en $1/d^3$ (correspondant au quenching, en rouge).

2.4 L'antenne patch : rayonner à haut débit et de façon directive.

L'analyse d'une cavité plasmonique nous conduira à étudier quelques propriétés d'une antenne patch en partie (2.4). En partie (2.4.1) on introduira l'antenne patch. En partie (2.4.2), on analysera l'accélération du taux de désexcitation d'une source couplée à une antenne patch. Enfin en partie (2.4.3), on étudiera la directivité de l'émission de l'antenne.

2.4.1 Principes de l'antenne patch

Nous allons maintenant limiter l'étendue spatiale du film métallique. Le mode confiné se propageant dans le MIM va alors se réfléchir aux discontinuités radiales de la structure, et une onde stationnaire peut s'établir. C'est l'antenne patch métallique. Dans notre cas, on choisit une structure à symétrie de révolution, de sorte que le film métallique se réduit à un disque (voir figure (2.6)). La discontinuité du disque et sa taille finie permet le rayonnement du mode d'antenne, et son diamètre définit la directivité de l'émission. Une analyse de résonateurs MIM par un modèle Fabry-Pérot peut être trouvée dans (Yang *et al.* 2012) pour un MIM rectangulaire, et dans (Filter *et al.* 2012) pour des MIM cylindriques. Un modèle de ligne de transmission pour des antennes patch cubiques est décrit dans (Ciraci *et al.* 2013). Pour une structure à symétrie cylindrique, le mode correspond à une onde stationnaire

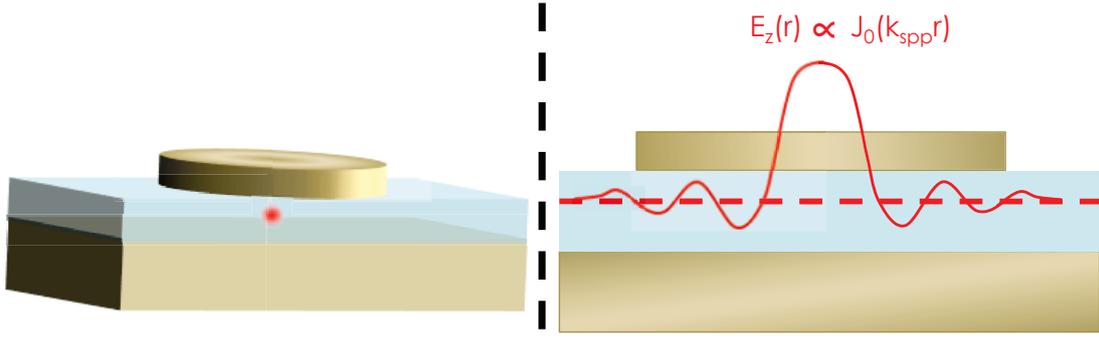


FIGURE 2.6 – *A gauche : Schéma 3D d'une antenne patch. Le dipôle source (point rouge) est placé au milieu d'une fine couche de diélectrique comprise entre un miroir et un film métallique. A droite : coupe suivant l'axe de symétrie de l'antenne patch. Le mode de résonance est une onde stationnaire cylindrique. Une coupe radiale du champ du mode est indiqué.*

décrit par une fonction de Bessel de première espèce. Dans le cas d'un dipôle polarisé perpendiculairement au patch et centré sur l'axe de symétrie de révolution, le champ du mode doit également être à symétrie de révolution. On en déduit que le champ du mode est donné essentiellement par la fonction de Bessel d'ordre 0 :

$$E_z(r) \propto J_0(k_{spp}r), \quad (2.14)$$

où k_{spp} est la composante parallèle au patch du vecteur d'onde du mode. k_{spp} est déduit de la structure MIM infinie. Les rayons R_n correspondant aux résonances radiales sont données par la formule :

$$2k'_{spp}R_n + \phi_R = 2x_n(J_0), \quad (2.15)$$

où ϕ_R est la phase acquise par le mode à la réflexion sur la discontinuité radiale, et $x_n(J_0)$ est le n-ième zéro de la fonction J_0 (Filter *et al.* 2012). L'équation (2.15) décrit simplement la condition de déphasage cumulé lors de la propagation sur un aller-retour entre le centre et le bord du disque, pour que l'onde cylindrique sortante (onde de Hankel $H_0^+(k_{spp}r)$) et l'onde cylindrique réfléchie (onde de Hankel $H_0^-(k_{spp}r)$) interfèrent constructivement au centre. A noter que ce résultat diffère de la condition de résonance d'un modèle Fabry-Pérot 1D usuel. En effet, dans ce dernier cas, le déphasage cumulé lors de la propagation doit valoir $0 [2\pi]$. De plus, le déphasage à la réflexion ϕ_R est indépendant de la taille longitudinale du résonateur. Dans le cas d'un Fabry-Pérot cylindrique, le déphasage cumulé ainsi que le déphasage à la réflexion ϕ_R suivent une évolution non-linéaire d'une résonance à l'autre.

2.4.2 Modification de l'émission spontanée

La figure (2.7) donne l'évolution du facteur de Purcell en fonction du diamètre de l'antenne patch.

Pour un dipôle orienté perpendiculairement au patch, on voit apparaître des résonances du facteur de Purcell, avec un maximum global de $F_p = 180$, ainsi qu'une décroissance visiblement exponentielle des maxima locaux, autour d'une valeur limite $F_p = 70$ atteinte pour un diamètre $D \simeq 1.5\mu m$. On remarque que, comme dans le cas d'un MIM, un dipôle

FIGURE 2.7 – Evolution du facteur de Purcell en fonction du diamètre de l’antenne patch. L’antenne patch est immergé sous huile d’indice $n_{\text{huile}} = 1.45$ (cas de l’étude expérimentale). Les cas d’un dipôle orienté perpendiculairement et parallèlement au patch sont traités. Les modules $|E_z|$ du champ du mode correspondant aux deux premières résonances radiales sont cartographiés en encart.

orienté parallèlement au patch se couple faiblement au mode de l’antenne, de sorte que l’accélération du taux de désexcitation ne dépasse pas 5. Le grand écart du facteur de Purcell pour les deux orientations du dipôle assure que les caractéristiques d’émission soient pilotées par celle d’un dipôle perpendiculaire au patch. La figure (2.7) montre également que le champ du mode est confiné dans le volume du patch, avec une évolution radiale du champ en accord avec le modèle Fabry-Pérot. On remarque également que le confinement du mode évolue peu d’une résonance à l’autre, bien que le patch de la seconde résonance soit deux fois plus large que le patch de la première résonance.

Nous allons maintenant analyser les différentes tendances d’évolution du facteur de Purcell. Cette analyse peut être généralisée à la plupart des nano-résonateurs plasmoniques. On a vu que le facteur de Purcell est proportionnel au facteur de qualité et inversement proportionnel au volume modal effectif.

Décrivons tout d’abord les caractéristiques d’un résonateur plasmonique infiniment petit. La taille du résonateur étant alors très petite devant la longueur d’onde, on étudie ainsi le régime électrostatique. Dans cette limite (Wang et Shen 2006; Stockman 2011), le facteur de qualité d’un nano-résonateur composé d’un unique métal est donné par la formule :

$$Q^S \simeq \omega'_r \frac{\partial \epsilon'(\omega'_r)}{2\epsilon''(\omega'_r)}, \quad (2.16)$$

où ω'_r est la partie réelle de la pulsation de résonance et $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$ est la constante di-

électrique du métal. Les contraintes principales donnant la validité de cette formule sont (i) $\epsilon'(\omega_r) < 0$ (ii) $\epsilon''(\omega_r) \ll -\epsilon'(\omega_r)$. Sous ces conditions, la formule (2.16) peut être déduite simplement à partir de la limite électrostatique d'une amplitude de diffusion S du résonateur. S peut être par exemple un facteur de réflexion pour un miroir, une polarisabilité pour une petite particule... En régime électrostatique, le dénominateur de cette amplitude de diffusion est généralement une fonction linéaire des constantes diélectriques du métal et des diélectriques environnants, $a\epsilon_{metal} + b\epsilon_{diel}$, a et b étant généralement des constantes positives ne dépendant que de la géométrie du résonateur. La pulsation de résonance complexe, ω_r , est un pôle de l'amplitude S dans le plan complexe. C'est donc un zéro de son dénominateur et au voisinage de la résonance, S prend donc la forme :

$$S = \frac{A}{\omega - \omega_r} + B, \quad (2.17)$$

où A et B varient lentement au voisinage de la résonance. La partie réelle de cette pulsation ω'_r est déterminée par la condition $a\epsilon'_{metal}(\omega'_r) + b\epsilon_{diel}(\omega'_r) = 0$. Pour cela, il faut nécessairement que $\epsilon'(\omega'_r) < 0$, i.e. que le résonateur soit métallique. Supposons que ϵ_{diel} et ϵ''_{metal} évoluent lentement au voisinage de ω'_r . Dans ce cas, à partir d'un développement limité du dénominateur au voisinage de ω'_r , on peut le réécrire sous la forme $a(\omega - \omega'_r) \frac{\partial \epsilon'}{\partial \omega}(\omega'_r) + ia\epsilon''_{metal}(\omega'_r)$. Par identification avec l'équation (2.17), on en déduit le pôle :

$$\omega_r \simeq \omega'_r + i \frac{\epsilon''(\omega'_r)}{\frac{\partial \epsilon'}{\partial \omega}(\omega'_r)}. \quad (2.18)$$

Le facteur de qualité étant donné par $Q = Re(\omega_r)/2Im(\omega_r)$, on retrouve ainsi la formule (2.16). Dans le cas d'un modèle de Drude, l'équation (2.16) devient $Q_{Drude}^S = -\epsilon'(\omega_r)/\epsilon''(\omega_r)$. On en déduit que la validité de l'équation (2.16) est donnée par la condition $Q_{Drude}^S \gtrsim 10$. La figure (2.8) donne les valeurs de Q^S et Q_{Drude}^S pour les diélectriques de l'or mesurées dans (Palik 1985), ϵ_1 , et dans (Johnson et Christy 1972), ϵ_2 .

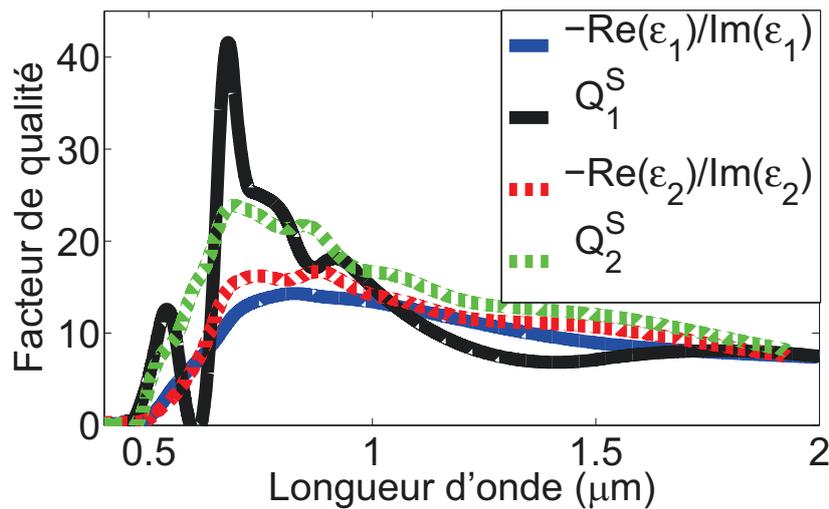


FIGURE 2.8 – Facteur de qualité électrostatique d'un résonateur métallique pour les valeurs de l'or données dans (Palik 1985, ϵ_1) et dans (Johnson et Christy 1972, ϵ_2)

On remarque que les valeurs de Q_{Drude}^S sont les mêmes dans les deux cas, et que la validité de l'équation (2.16) est contenue dans l'intervalle spectral $\lambda \in [0.6\mu m; 2\mu m]$. Dans les deux cas,

Q^S est maximum pour $\lambda \simeq 0.7\mu m$, avec des valeurs comprises entre 5 et 45. Les résonateurs plasmoniques sont donc intrinsèquement large bande. A $\lambda = 0.63\mu m$, le facteur de qualité est compris entre 6 (pour ϵ_1) et 17 (pour ϵ_2) dans les deux cas. Ainsi, l'ordre de grandeur du facteur de qualité électrostatique vaut 10. Nous avons utilisé ϵ_1 pour le calcul de la figure (2.7), on prendra donc comme valeur du facteur de qualité électrostatique $Q^S = 6$.

D'une manière générale, l'ordre de grandeur du volume modal est de l'ordre du volume d'un nano-résonateur. On peut l'estimer plus précisément dans notre cas par $\int |E|^2 d^3\vec{r}$ où l'intégration est faite sur le volume du cylindre de silice compris sous le cylindre métallique, et où on prend $E = J_0(k_{spp}r)$. Dans le cas de l'antenne patch étudiée, on trouve un ordre de grandeur 100 fois plus petit que $(\lambda/2n)^3$. On s'attend alors à une accélération de deux ordres de grandeur du taux de désexcitation, en accord avec le maximum obtenu sur la figure (2.7).

Comme on l'a vu pour l'antenne patch, généralement lorsqu'on allonge un résonateur électrostatique monomode dans une direction, on peut trouver des résonances Fabry-Pérot : le mode se propage dans cette direction, et est réfléchi aux discontinuités. Lorsque le déphasage cumulé sur un aller-retour du mode correspond à une interférence constructive entre l'onde incidente et l'onde réfléchie, une onde stationnaire se met en place, contribuant à une forte exaltation du champ. Pour certaines élongations, on trouvera alors des résonances du facteur de Purcell. Toutefois, deux phénomènes limitent le facteur de qualité de ces résonances :

- un résonateur dans la limite électrostatique est trop petit pour rayonner. En allongeant l'une de ses dimensions, on favorise le couplage du mode d'antenne avec des ondes planes. En outre, lorsque le coefficient de réflexion du mode au bord de la cavité Fabry-Pérot est plus petit que 1, le mode est diffracté. Le résonateur voit donc des pertes radiatives apparaître.
- le mode guidé se propage en partie dans un métal, qui est un milieu absorbant aux fréquences optiques. Le résonateur voit donc apparaître également des pertes par effet Joule lors de la propagation du mode, et l'amplitude de ce mode décroît en $\exp(-k''_{spp}D)$ après un aller-retour entre le centre et le bord du patch, où D est le diamètre du patch.

Ainsi, en allongeant le résonateur, le facteur de Purcell doit suivre une tendance décroissante. A noter toutefois que dans certains cas, il est possible de faire de l'ingénierie du déphasage à la réflexion pour des résonateurs hautement sub-longueur d'onde. Les pertes radiatives et les pertes par propagation sont alors négligeables, et par interférence constructive Fabry-Pérot, le résonateur peut atteindre des facteurs de qualité supérieurs à la limite électrostatique (Feigenbaum et Orenstein 2008). Dans notre cas, on souhaite maximiser les pertes radiatives, de sorte que ce cas limite peut être écarté.

Concernant le facteur de qualité correspondant aux pertes par propagation, on peut l'estimer par la formule :

$$Q_{prop} \simeq \frac{1}{1 - \exp(-k''_{spp}D)}. \quad (2.19)$$

Pour les paramètres du patch de la figure (2.7), $k_{spp} = (3.71 + 0.26i)k_0$ à $\lambda = 0.63\mu m$. Ainsi la longueur de propagation du mode vaut $L_{prop} = 1/k''_{spp} = 0.39\mu m$. Pour la première résonance, on trouve $Q_{prop} \simeq 3$. Si on suppose les pertes radiatives négligeables pour cette résonance (voir partie (2.7)), alors le facteur de qualité globale de la résonance est de l'ordre de $Q_{tot} = \frac{Q^S Q_{prop}}{Q^S + Q_{prop}} \simeq 2$. Un calcul exacte de la fréquence de résonance complexe

donne un facteur de qualité de l'ordre de 2. Pour des diamètres d'antenne supérieur à $D \gtrsim 3L_{prop} = 1.5\mu m$, $Q_{prop} \simeq 1$. Le facteur de qualité globale est aussi de l'ordre de 1, et puisque le volume modal évolue peu en fonction du diamètre de l'antenne, on s'attend à ce que (i) aucune résonance ne soit visible (ii) le facteur de Purcell soit divisé par 2 par rapport à celui de la première résonance. Cette analyse est en accord avec la figure (2.7).

2.4.3 La directivité de l'antenne patch

La figure (2.9) donne l'évolution du diagramme de rayonnement pour des diamètres croissants d'antennes.

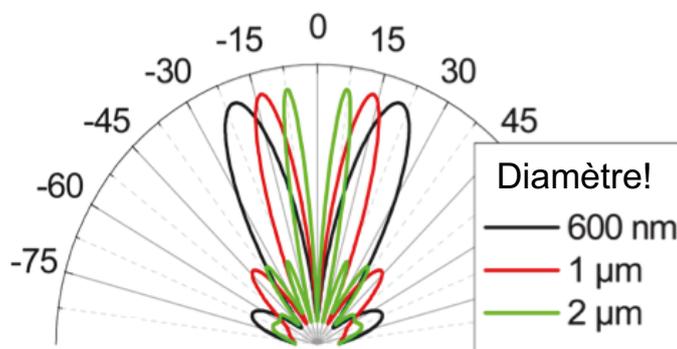


FIGURE 2.9 – Diagramme de rayonnement d'un dipôle couplé à une antenne patch. Le dipôle est centré sur l'axe de symétrie et polarisé perpendiculairement à l'antenne. L'antenne patch est composée d'une couche de 30nm de silice, d'un miroir d'or et d'un film d'or de 20nm. Les trois courbes correspondent à des diamètres différents de l'antenne.

On note que le diagramme de rayonnement présente des lobes d'émission angulaire resserrés vers la normale et plus fins pour des diamètres plus grand. Qualitativement, l'énergie est contenue dans une étendue angulaire de l'ordre de $\Delta\theta \sim \lambda_{SPP}/R$, où $\lambda_{SPP} = \lambda/n_{eff}$, n_{eff} est l'indice effectif du mode plasmonique et R est le rayon de l'antenne patch. Pour un diamètre de $D = 2\mu m$, quasiment toute l'énergie se trouve dans un cône de 45° de demi-angle au sommet. Par diffraction, une source spatialement étendue est directive, ce qui est en accord avec ces observations.

Pour résumer, l'antenne patch possède des propriétés intrinsèquement large bande, elle permet d'atteindre des facteurs de Purcell de l'ordre de la centaine, et peut être très directive. Elle constitue ainsi un bon candidat vis-à-vis des besoins énoncés en introduction pour la conception de sources de photons uniques performantes. La question de l'efficacité radiative de l'antenne sera abordée à la fin de ce chapitre, en partie (2.7).

Nous allons maintenant nous intéresser aux régimes limites pour lesquels les raisonnements précédents ne suffisent plus à déterminer la dynamique d'émission spontanée d'un dipôle.

2.5 Cas limites de l'effet Purcell

Dans cette partie, on discute quelques cas limites pour lesquels la dynamique d'émission d'un émetteur couplé à une antenne ne peut être décrite par l'analyse précédente de l'effet Purcell.

2.5.1 Cas limite : $\tau_{excitation} > 1/\gamma_{emetteur}$

Prenons tout d'abord le cas où la durée de vie de l'émetteur $1/\gamma_{emetteur}$ est inférieure à la durée de vie d'une impulsion excitatrice dans la cavité $\tau_{excitation}$. Dans ce cas, une impulsion excitatrice peut rester suffisamment longtemps dans la cavité (ou l'antenne) pour pouvoir exciter une seconde fois l'émetteur, de sorte qu'une impulsion excitatrice peut correspondre à l'émission de deux photons ou plus. On perd alors l'aspect déterministe de la source. Pour limiter la probabilité d'un tel événement, il faut s'assurer que le taux de déclin de la cavité (ou de l'antenne) $\gamma_{cav} = \omega/Q$ à la longueur d'onde d'excitation soit très grand devant le taux de désexcitation de l'émetteur couplé à l'antenne $\gamma_{emetteur}$. Pour des cavités diélectriques qui exploitent un très grand facteur de qualité pour exalter l'émission spontanée, ce problème peut survenir en fonction de la longueur d'onde d'excitation. Toutefois, pour des résonateurs plasmoniques, le facteur de qualité étant de l'ordre de $Q = 10$, l'ordre de grandeur du taux de déclin de l'antenne est $\gamma_{cav} \simeq 10^{14} s^{-1}$. On souhaite des débits de photons uniques de l'ordre de 10GHz, le taux de déclin de l'antenne n'est donc pas limitant pour un résonateur plasmonique du point de vue de ce problème. Il faut également que l'impulsion excitatrice soit $\sim 10\times$ plus brève que la durée de vie de l'émetteur couplé à l'antenne. La durée d'impulsion du laser excitateur doit donc être inférieure à 10ps, ce qui est aisé à obtenir avec un laser commercial. Finalement, ce problème peut être facilement écarté pour des antennes plasmoniques.

2.5.2 Cas limite : $\gamma_{emetteur} > \gamma_{cav}$

Une analyse similaire à la précédente peut mener à l'étude d'un autre problème. Cette fois-ci, on suppose le taux de désexcitation de l'émetteur $\gamma_{emetteur}$ supérieur au taux de déclin de la cavité à la longueur d'onde d'émission (Lau *et al.* 2009). Dans ce cas, un photon unique reste dans la cavité (ou l'antenne) sur une durée supérieure au temps de vie de l'émetteur, de sorte qu'une exaltation du taux de désexcitation ne modifiera pas le débit de photons uniques. Comme dans le cas précédent, le faible facteur de qualité et le confinement d'un résonateur plasmonique limite ce problème, tout en permettant une forte exaltation du taux de désexcitation.

2.5.3 Cas limite : le couplage fort

Enfin, lorsque le champ rayonné par l'émetteur et le champ du mode de la cavité sont suffisamment intenses, les deux systèmes interagissent de façon cohérente, de sorte qu'un couplage fort entre l'émetteur et mode de la cavité peut se mettre en place. Dans ce cas, la dynamique d'émission du système est modifiée par ce couplage. La réponse d'un émetteur est

donné par sa polarisabilité, et cette polarisabilité est proportionnelle à la force d'oscillateur de l'émetteur. On a vu que pour des QDs, cette force d'oscillateur peut être grande à température cryogénique, mais à température ambiante elle est équivalente à celle d'un atome. En outre, on peut montrer par une analyse similaire à (Sauvan *et al.* 2013) que le champ du mode est proportionnel au facteur de qualité. Le taux de couplage g est proportionnel à la polarisabilité de l'émetteur et au champ du mode de la cavité. Lorsque le facteur de qualité est suffisamment fort, la condition de couplage fort $g > |\gamma_{\text{emetteur}} - \gamma_{\text{cav}}|/2$ peut être satisfaite. Dans le cas d'un résonateur plasmonique à température ambiante, le faible facteur de qualité et la faible force d'oscillateur des QDs minimisent la probabilité d'un couplage fort entre l'émetteur et le mode d'antenne.

Pour conclure, les limitations de l'effet Purcell sont intimement liées au facteur de qualité de la cavité. L'utilisation d'une antenne plasmonique plutôt que d'une cavité diélectrique permet de limiter au mieux ces problèmes tout en profitant d'un grand facteur de Purcell grâce au confinement des modes plasmoniques. D'autres limitations peuvent apparaître, intimement liées à l'utilisation de QDs. Par exemple, le processus de recapture excitonique peut apparaître lorsque le taux de désexcitation de l'exciton de plus basse énergie est suffisamment grand, conduisant à l'émission de plusieurs photons (Peter *et al.* 2007; Giesz *et al.* 2013).

Nous allons maintenant nous intéresser à la réalisation expérimentale des antennes patchs.

2.6 Passage à l'expérience

En collaboration avec des chercheurs du LPN, de l'INSP et de l'ESPCI, on a souhaité étudier expérimentalement la faisabilité des antennes patch pour l'émission de QDs. Cette étude a fait l'objet d'un article publié dans (Belacel *et al.* 2013). Dans la partie (2.6.1), nous donnerons une caractérisation des QDs utilisés pour l'étude expérimentale. En partie (2.6.2), on expliquera la technique de fabrication des antennes patch. En partie (2.6.3), on donnera les résultats d'une caractérisation temporelle et spectrale des antennes patch. Enfin en partie (2.6.4), on étudiera la directivité expérimentale des antennes fabriquées.

2.6.1 Les QDs de CdSe/CdS

On a choisi une longueur d'onde d'émission dans le visible, parce que cela rend l'étude et la caractérisation de ces antennes plus aisées avec les équipements disponibles (microscope optique, détecteur de photon unique, etc...). Les émetteurs utilisés pour cette étude ont été fabriqués à l'ESPCI par l'équipe de Benoit Dubertret. Ce sont des QDs colloïdaux coeur/coquille de CdSe/CdS possédant un coeur de 3nm de diamètre et une coquille de 5nm d'épaisseur, donnant ainsi des QDs de 13nm d'épaisseur (voir encart figure 2.10). L'émission des QDs est centrée autour d'une longueur d'onde de 630nm. Ils émettent des photons uniques et possèdent un rendement quantique de l'ordre de 40%. Le scintillement de ces QDs a été fortement réduit grâce à des conditions de synthèse optimales (Mahler *et al.* 2008). La figure (2.10) montre la fluorescence d'un QD unique en échelle logarithmique, mesurée sur plusieurs minutes à l'aide d'un laser impulsif émettant à une longueur d'onde de 405nm des impulsions de 80ps de durée.

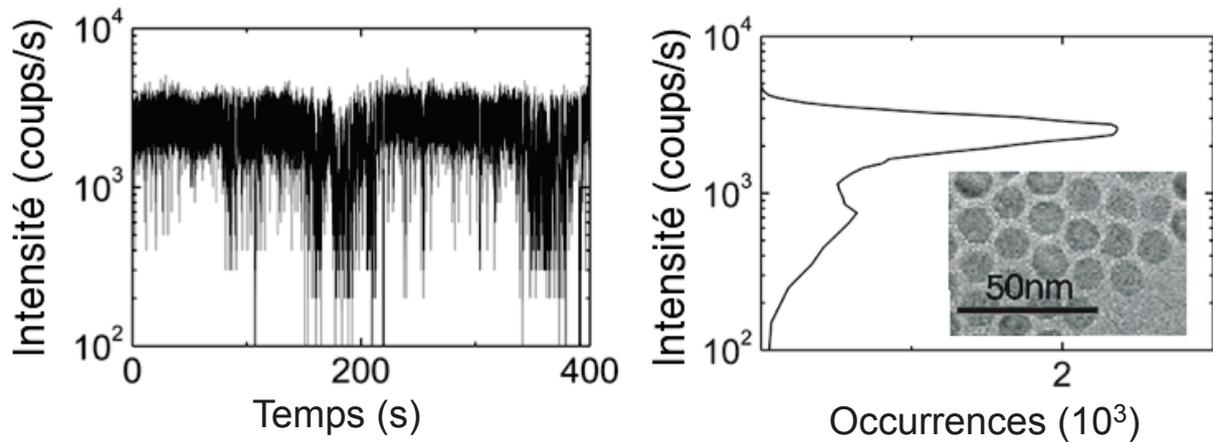


FIGURE 2.10 – *A gauche : Mesure de la fluorescence des QDs de CdSe/CdS sous excitation impulsionnelle. A droite : L’histogramme des intensités correspondant. En encart : Image des QDs au microscope à transmission électronique.*

Bien que des fluctuations d’intensité soient observées, cette trace temporelle montre l’absence d’un état sombre. La figure (2.10) présente également l’histogramme des intensités associé. Cet histogramme permet d’estimer que le QD émet à 87% dans l’état brillant tandis que la probabilité d’émettre dans un état "gris" est seulement de 13%. Dans la suite, on néglige la contribution des états "gris".

A l’aide d’un montage "start-stop" (voir figure (2.11)), on étudie le déclin d’un QD. Le principe de la mesure est le suivant : on envoie une impulsion excitatrice sur le QD à un instant connu. C’est le départ ("start") de la mesure. Ensuite on mesure le délai d’émission du QD ("stop") par rapport à ce départ. En effectuant un histogramme des délais mesurés, on retrouve alors la courbe de déclin temporel désiré. Ces mesures ont été effectuées à l’INSP par l’équipe d’Agnès Maître. La figure (2.12) montre que la courbe de déclin de l’émission d’un QD unique à une interface air-verre peut être correctement ajustée par un déclin monoexponentiel avec un taux de désexcitation de $\gamma_0 = 0.021\text{ns}^{-1}$.

Leur diagramme d’émission est similaire à celui d’une paire de dipôles orthogonaux incohérents, perpendiculaires à l’axe c du QD (Empedocles *et al.* 1999). Comme il a été montré en figure (2.7), l’orientation du QD est cruciale pour un couplage efficace à l’antenne patch. Plutôt que de fabriquer un très grand nombre de dispositifs pour pouvoir obtenir une statistique satisfaisante d’antennes couplées à des émetteurs bien orientés, on a choisi d’étudier de petits agrégats de QDs, constitués d’une cinquantaine de nanocristaux orientés aléatoirement. Les agrégats de QDs sont formés en diluant une solution hexane de QDs dans de l’isopropanol. L’échantillon est ensuite inséré dans la solution d’agrégats de QDs puis retiré pour obtenir une faible densité d’agrégats uniformément sur toute la surface. La géométrie de l’agrégat est caractérisée par microscopie à force atomique (voir figure (2.13)). Les agrégats possèdent une épaisseur typique de 12nm à 25nm, avec une taille latérale entre 70nm et 120nm.

La figure (2.12) montre également que la distribution des taux de désexcitation d’un QD isolé à un autre suit une loi gaussienne. Cette distribution est attribuée aux inhomogénéités de taille ou de forme. Dans un environnement homogène de silice, on peut donc supposer que le taux de déclin d’un agrégat est donné par une distribution gaussienne caractérisé

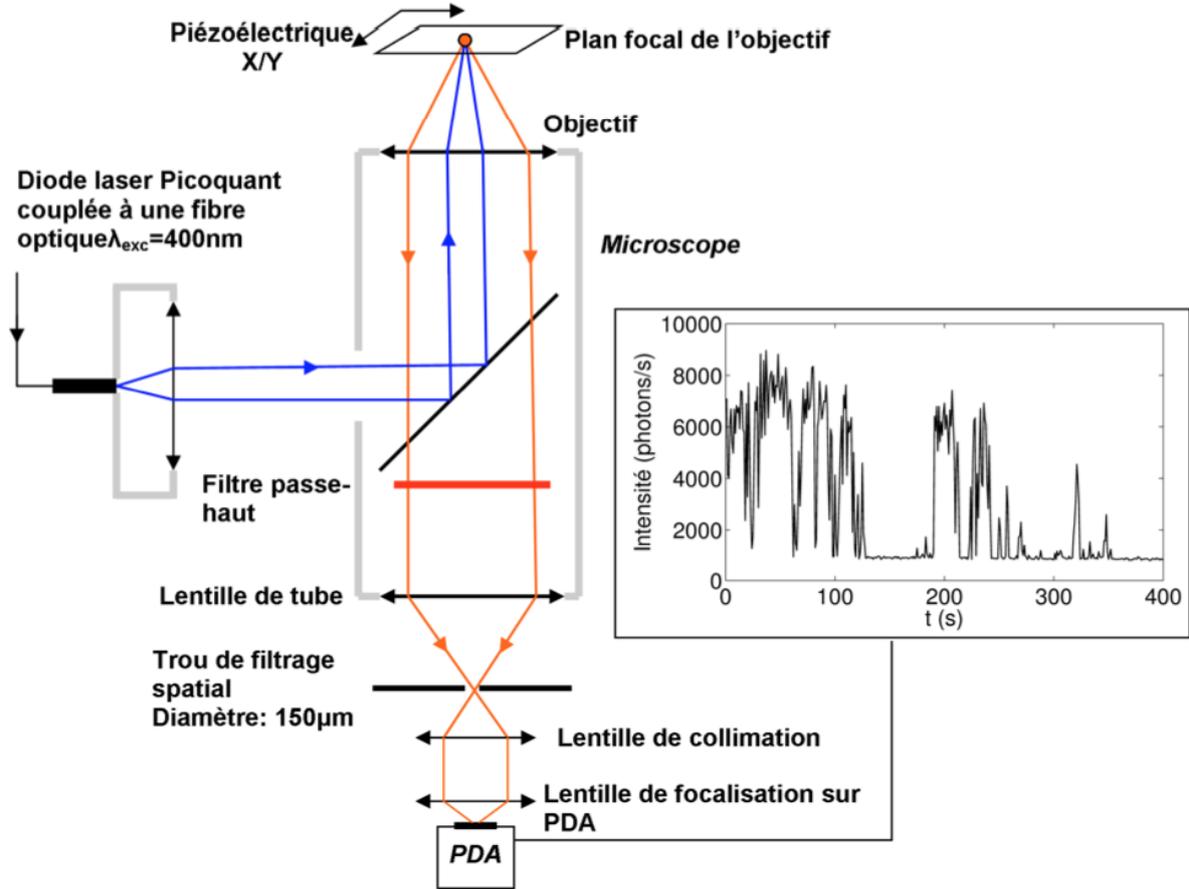


FIGURE 2.11 – Schéma du montage "start-stop" de mesure des déclin temporels des QDs. Une impulsion laser vient exciter un émetteur. L'émetteur produit un photon qui est détecté par un photodiode à avalanche (PDA). La synchronisation entre le laser excitateur et le signal reçu par la PDA permet de déduire les délais entre excitation et émission. L'histogramme de ces délais donne la courbe de déclin de l'émetteur.

par un taux de désexcitation moyen Γ_c et une largeur w_c . Cette hypothèse est appuyée par le caractère fortement non-mono exponentiel de la courbe de déclin d'un agrégat. On introduit alors la densité de probabilité :

$$\pi_1(\Gamma_Q > 0) = C \exp\left(-\frac{(\Gamma_Q - \Gamma_c)^2}{2w_c^2}\right) \quad (2.20)$$

où C est une constante de normalisation. La courbe de déclin s'écrit alors :

$$I(t) = I_0 \int_{\Gamma_Q=0}^{+\infty} \pi_1(\Gamma_Q) \exp(-\Gamma_Q t) d\Gamma_Q \quad (2.21)$$

et un ajustement à une mesure expérimentale donne $\Gamma_c = 0,055\text{ns}^{-1}$ et $w_c = 0,020 \pm 0,002\text{ns}^{-1}$. Il faudra prendre en compte cette distribution de taux de désexcitation des agrégats lors de l'étude temporelle des antennes. Cette distribution gaussienne présente une faible déviation par rapport à la distribution des taux de désexcitation des QDs isolés, ce qui conforte l'idée qu'un agrégat représente correctement la statistique des QDs.

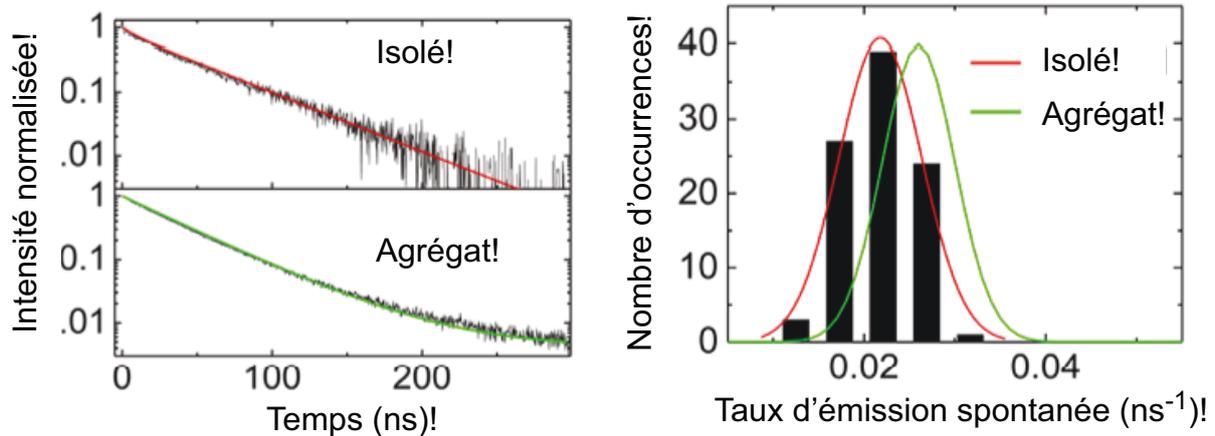


FIGURE 2.12 – *A gauche : En noir : mesure des courbes de déclin pour des émetteurs placés à 200nm d’une interface air-verre. En haut : Pour un QD isolé. En rouge : Ajustement avec un déclin monoexponentiel. En bas : Pour un agrégat de QDs placé à une interface air-verre. En vert : Ajustement avec une distribution gaussienne des taux de déclin. A droite : Histogramme des taux de déclin de l’état brillant . En noir : Mesuré sur un ensemble de QDs isolés. En rouge : Ajustement gaussien de cette distribution expérimentale. En vert : Distribution gaussienne des taux de déclin utilisée pour l’ajustement du déclin de l’agrégat.*

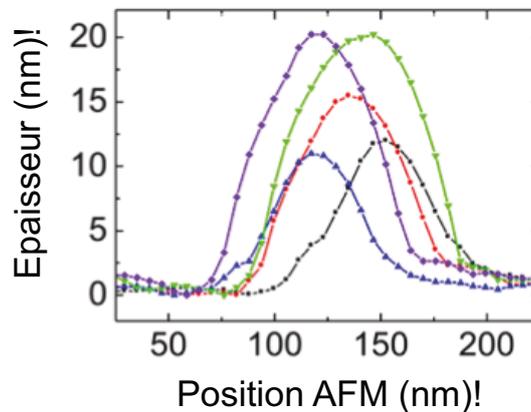


FIGURE 2.13 – *Profils d’agrégats de QDs mesurés au microscope à force atomique.*

Nous étudierons les propriétés spectrales des QDs en partie (2.6.3). Nous allons maintenant nous intéresser à la technique de fabrication des antennes patch.

2.6.2 La technique de fabrication

La fabrication des antennes patch a été effectuée par l’équipe de Pascale Senellart au LPN, et ont notamment fait l’objet des travaux de thèses de Chérif Belacel. La technique de fabrication des antennes patch suit la procédure suivante (voir figure (2.14)). Une couche d’or de 100nm d’épaisseur puis une couche de 15nm de silice sont déposées sur un substrat de silicium. Les agrégats de QDs sont ensuite formés sur la couche de silice en suivant la procédure décrite en partie (2.6.1). Une seconde couche de silice de 15nm d’épaisseur est

déposée sur l'échantillon, suivie d'une résine photo sensible. En suivant la technique de lithographie optique proposée dans la référence (Dousse *et al.* 2008), un faisceau laser de faible puissance à $\lambda = 532\text{nm}$ est focalisé sur une tache de $1\mu\text{m}$ de diamètre afin d'exciter l'émission des agrégats. En déplaçant l'échantillon à l'échelle nanométrique, on est capable de centrer l'agrégat sur la tache laser avec une précision $\pm 25\text{nm}$ en maximisant l'intensité de fluorescence (voir figure 2.14, étape 1). Une fois l'agrégat centré, on utilise le laser excitateur à forte puissance pour exposer un disque dans la résine photosensible. Le diamètre des disques peut être ajusté en variant la durée d'exposition de la résine. Après avoir révélé la résine (étape 2), une couche de 20nm d'or est évaporée (étape 3) et un lift-off de la résine termine la fabrication de l'antenne patch.

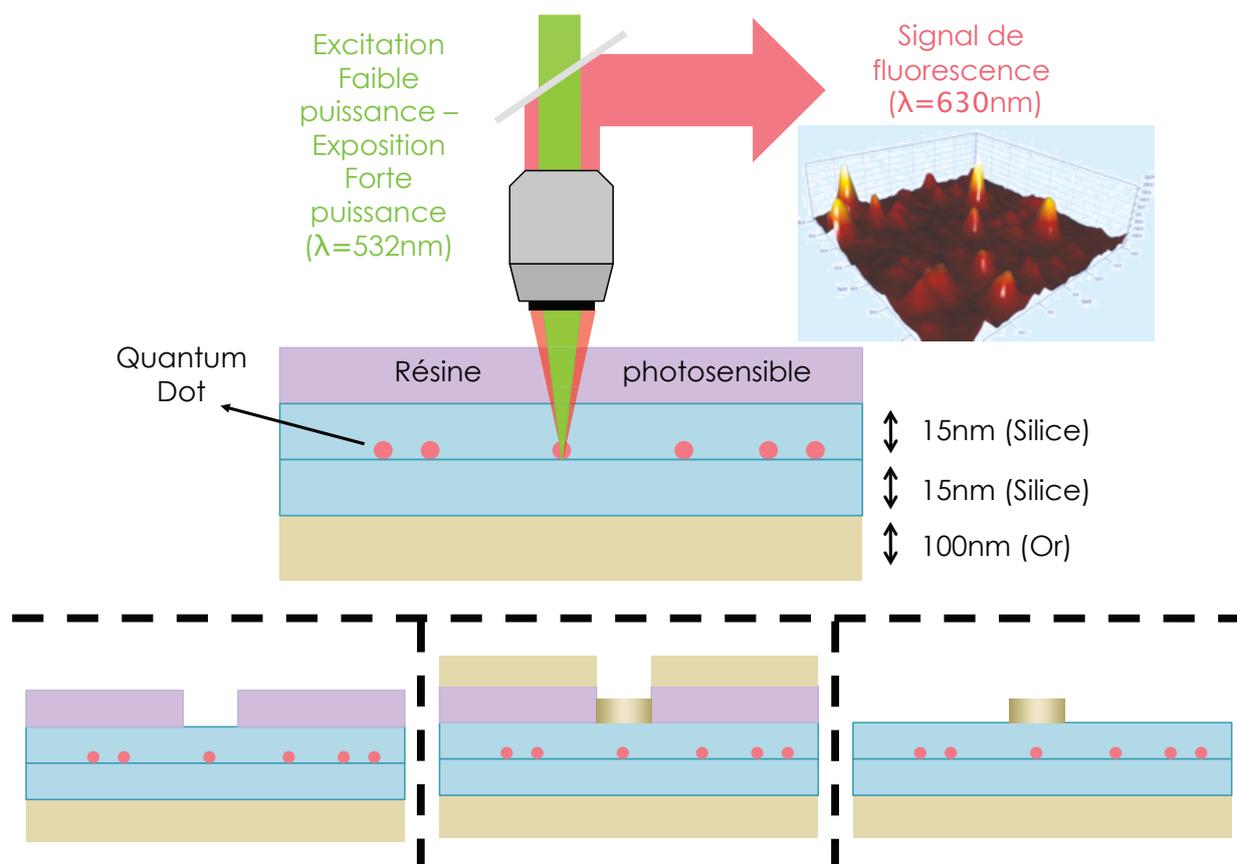


FIGURE 2.14 – Principe de la lithographie optique des antennes patch. En haut : Etape 1- Balayage de l'échantillon avec une excitation des QD à faible puissance de pompe. Le signal collecté en épifluorescence permet de cartographier les positions des QDs (voir encart) avec une précision de 25nm . Etape 2- Exposition de la résine photosensible à forte puissance de pompe. En bas, de gauche à droite : Etape 3- Développement de la résine photosensible. Etape 4- Evaporation et déposition d'une couche de 20nm d'or. Etape 5- Lift-off.

Une douzaine d'antennes patch ont été fabriquées sur un même échantillon, avec des diamètres variant de $1.4\mu\text{m}$ à $2.1\mu\text{m}$. La figure (2.15) montre une image de la surface de l'échantillon observée à l'aide d'un microscope à fluorescence en réflectivité, en lumière blanche.

Un disque d'or de $1.6\mu\text{m}$ de diamètre définissant une unique antenne patch est visible. L'image de fluorescence de la même région de l'échantillon est également fournie en figure

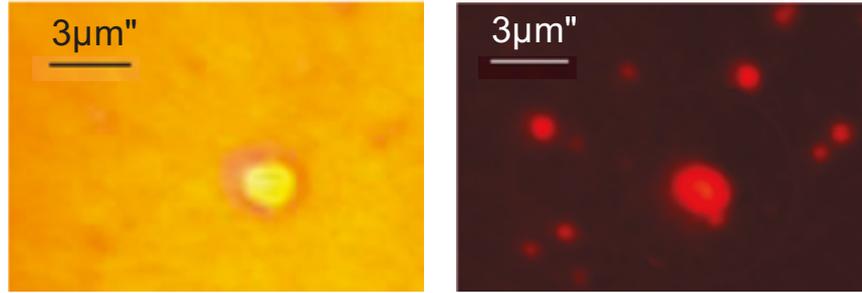


FIGURE 2.15 – *A gauche : Image de la surface de l'échantillon sous lumière blanche, au microscope optique. Un unique disque d'or visible définit l'antenne patch. A droite : Image de fluorescence de la même région observée sous un pompage continu à 405nm.*

(2.15). L'émetteur est excité à l'aide d'un laser continu émettant à 405nm. Un filtre dichroïque à 510nm ainsi qu'un filtre passé bande autour de 610 ± 70 nm ont été utilisés pour supprimer le signal provenant du laser excitateur. De petites taches d'émission sont visibles sur toute la surface de l'échantillon et correspondent à l'émission d'agrégats isolés de QDs. Il est frappant de voir sur cette image que la fluorescence est observée sur toute la surface de l'antenne patch. C'est la première signature d'un couplage entre les QDs et les modes plasmoniques de l'antenne patch, en accord avec la cartographie théorique du champ présentée figure (2.16).



FIGURE 2.16 – *Calcul de l'intensité émise par un dipôle centré et orienté perpendiculairement à une antenne patch de $1.5 \mu\text{m}$ de diamètre, immergé dans de l'huile. Le champ du mode plasmonique est étendu sur tout le diamètre de l'antenne patch.*

En effet, lorsque l'émission d'un QD est fortement accélérée par le mode d'antenne plutôt que par les autres modes, le QD rayonne essentiellement à travers le mode d'antenne.

L'avantage de la méthode présentée est de pouvoir centrer avec une grande précision le QD, avec des étapes de fabrication relativement simples et bien contrôlées. La méthode étant basée sur une technique de lithographie optique, on peut espérer diminuer la taille des antennes en approchant la limite de diffraction du faisceau excitateur. On peut ainsi espérer diviser par deux voire par trois le diamètre des antennes.

L'un des inconvénients de cette technique est le besoin d'utiliser un laser à forte puissance pour pouvoir exposer la résine photosensible. Cela nécessite des émetteurs peu sensibles à ces fortes puissances, tandis que des émetteurs uniques sont généralement soumis à un phénomène de photo-blanchiment.

Nous allons maintenant étudier les propriétés spectrales et temporelles des antennes patch fabriquées.

2.6.3 Propriétés spectrales et temporelles

Comme on l'a montré théoriquement dans les parties précédentes, les antennes plasmoniques présentent des propriétés intrinsèquement large bande. La figure (2.17) montre que pour des diamètres typiques d'antenne patch, le facteur de Purcell dépend très peu de la longueur d'onde. Cela concorde avec l'analyse donnée en partie (2.4.2), laquelle estime un facteur de qualité de l'ordre de 1 pour des diamètres d'antenne supérieurs à $1.5\mu\text{m}$.

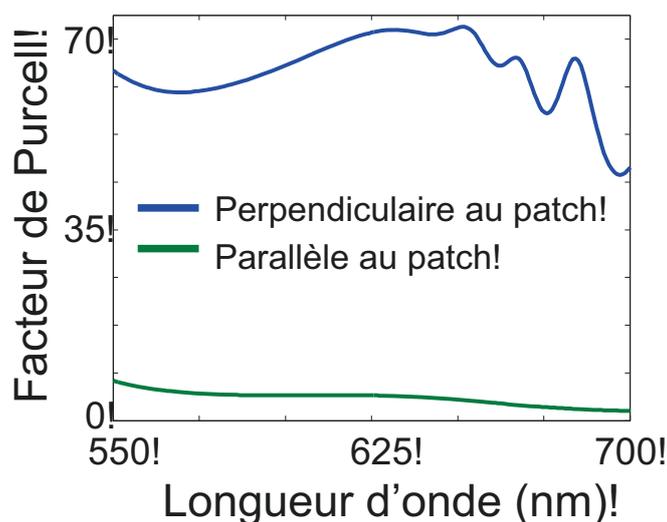


FIGURE 2.17 – Dépendance spectrale du factor de Purcell pour un dipôle centré dans une antenna patch de $2.1\mu\text{m}$ de diamètre.

La mesure des spectres de fluorescence est donnée en figure (2.18). On voit d'une part que les spectres d'un émetteur unique et d'un agrégat sont les mêmes et s'étendent sur une largeur de 30nm. D'autre part, le spectre d'un agrégat couplé à une antenne patch n'est pas modifié, ce qui concorde avec l'analyse précédente, donnant une largeur spectrale supérieure à 30nm.

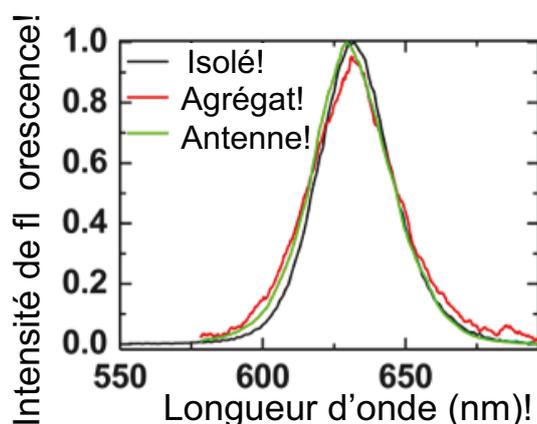


FIGURE 2.18 – Spectres de fluorescence mesurés. En noir : Pour un QD isolé. En rouge : Pour un agrégat de QDs. En vert : Pour un agrégat de QDs couplé à une antenne patch.

La figure (2.19) donne les mesures des courbes de déclin d'agrégats couplés aux antennes

patch. Les courbes de déclin dévient nettement d'un modèle mono-exponentiel. Pour prendre

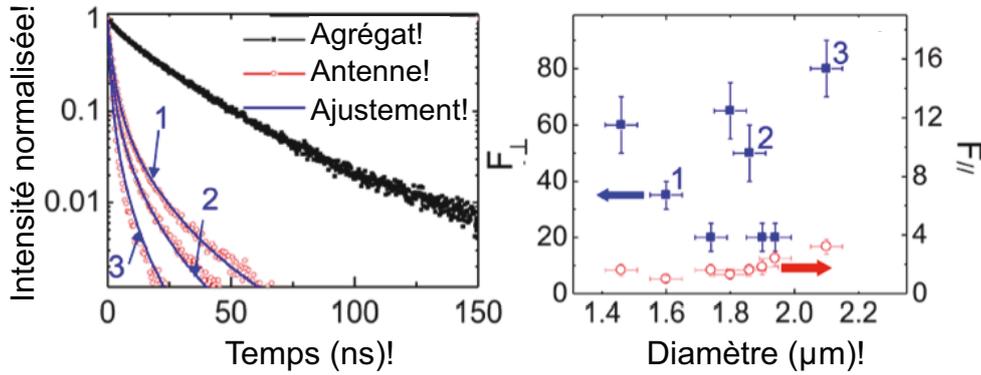


FIGURE 2.19 – *A gauche : Courbe de déclin de fluorescence mesurée. En noir : Référence mesurée pour un agrégat dans la silice. En rouge : pour des agrégats couplés à trois antennes patch de différentes (antennas patch 1 à 3). En bleu : Ajustements des courbes de déclin prenant en compte la distribution gaussienne des taux de déclin et l'orientation aléatoire des QDs dans les agrégats. A droite : Valeurs de F_{\perp} et F_{\parallel} déduites pour différentes antennes. Les valeurs correspondant aux déclins des antennes 1 à 3 sont indiquées.*

en compte les courbes de déclin expérimentales et extraire le facteur de Purcell, on modèle l'agrégat de QDs en prenant en compte le double dipôle dégénéré des QDs et leur orientation aléatoire.

La distribution des taux de désexcitation d'un agrégat seul a été donnée en partie (2.12). Pour un QD unique avec un axe c faisant un angle θ par rapport à la normale au patch, le taux de désexcitation peut être décomposé sur sa composante verticale et horizontale :

$$\Gamma = \frac{\Gamma_Q}{2} [F_{\perp} \sin^2 \theta + F_{\parallel} (1 + \cos^2 \theta)] \quad (2.22)$$

où F_{\perp} et F_{\parallel} sont respectivement les facteurs de Purcell pour un dipôle orienté parallèlement et perpendiculairement à l'antenne patch. Les situations $\Gamma = \Gamma_Q F_{\parallel}$ et $\Gamma = \Gamma_Q (F_{\perp} + F_{\parallel})/2$ correspondent respectivement aux orientations $\theta = 0$ (l'axe c du QD est vertical, de sorte que les deux dipôles sont orientés dans le plan du patch) et $\theta = \pi/2$ (l'axe c est horizontal de sorte qu'un dipôle est horizontal et l'autre est vertical). D'après les analyses théoriques précédentes, on s'attend à ce que $F_{\parallel} < F_{\perp}$ de sorte que $\Gamma_Q F_{\parallel}$ et $\Gamma_Q (F_{\perp} + F_{\parallel})/2$ sont respectivement les valeurs les plus faible et plus élevée de Γ .

La densité de probabilité pour un QD d'avoir un angle θ est $\sin \theta$ si on suppose l'orientation du QD isotrope. On définit alors la densité de probabilité conditionnelle $\pi_2(\Gamma; \Gamma_Q)$ pour un QD spécifique d'avoir un taux de désexcitation Γ sous l'antenne si le taux de désexcitation du QD est Γ_Q dans un milieu homogène. Cette quantité est donnée par :

$$\pi_2(\Gamma; \Gamma_Q) = \frac{d\theta}{d\Gamma} \sin \theta = \left[\Gamma_Q \sqrt{(F_{\perp} - F_{\parallel})(F_{\perp} + F_{\parallel} - 2\Gamma/\Gamma_Q)} \right]^{-1} \quad (2.23)$$

pour $F_{\parallel} < \Gamma/\Gamma_Q < (F_{\perp} + F_{\parallel})/2$ et $\pi_2(\Gamma; \Gamma_Q) = 0$ autrement. Finalement, la densité de probabilité $\pi(\Gamma)$ pour un QD d'avoir un taux de désexcitation Γ peut être exprimée par la

probabilité $\pi_2(\Gamma; \Gamma_Q)$ pondérée par la probabilité $\pi_1(\Gamma_Q)$ qu'un QD ait un taux de déclin Γ_Q dans le milieu homogène :

$$\pi(\Gamma) = \int_{\Gamma_Q} \pi_2(\Gamma; \Gamma_Q) \pi_1(\Gamma_Q) d\Gamma_Q \quad (2.24)$$

La courbe de déclin suit donc la loi :

$$I(t) = I_0 \int_{\Gamma=0}^{+\infty} \pi(\Gamma) \exp(-\Gamma t) d\Gamma \quad (2.25)$$

Puisque les paramètres Γ_c et w_c de la distribution gaussienne ont été obtenus par les mesures précédentes, les seuls paramètres libres restants sont F_{\perp} et $F_{//}$. En faisant un ajustement des courbes expérimentales en suivant ce modèle, on peut alors estimer les facteurs de Purcell F_{\perp} et $F_{//}$ de l'expérience.

Pour l'antenne patch 1 possédant un diamètre de $1.6\mu\text{m}$, les facteurs de Purcell de l'ordre de $F_{\perp} = 35$ et $F_{//} = 5$ sont déduits. Pour d'autres antennes, de grandes valeurs de F_{\perp} comprises entre 60 et 80 ont pu être déduites pour des valeurs de $F_{//}$ de l'ordre de 1 à 3. L'éventail des valeurs de F_{\perp} peut être expliqué par les variations d'épaisseurs de diélectrique entre les deux interfaces d'or. En effet, on a vu que les agrégats de QDs possèdent des hauteurs variant entre 10nm et 25nm (voir figure (2.13)). Comme nous l'avons montré sur la figure (2.3), une variation de quelques nanomètres de l'épaisseur de diélectrique dans un MIM suffit pour faire passer le facteur de Purcell de 35 à 80.

Dans tous les cas, le taux de désexcitation a été fortement exalté et s'approche de la centaine visé par notre cahier des charges. On a vu que ce facteur de Purcell dépendait peu de la longueur d'onde ce qui a permis de travailler avec des émetteurs à température ambiante. Nous allons maintenant nous intéresser à la directivité de l'émission à l'aide de l'antenne.

2.6.4 Mesure de diagramme de rayonnement

On étudie maintenant la directivité apportée par l'antenne patch. Pour cela, nous avons mesuré le diagramme de rayonnement à l'aide d'une technique d'imagerie du plan de Fourier. Le plan de Fourier est le plan focal arrière de l'objectif de microscope. On l'appelle plan de Fourier, parce que dans les conditions de Gauss, un objet placé dans le plan focal avant de l'objectif verra sa transformée de Fourier spatiale dans le plan focal arrière. La figure 2.20 montre qu'on peut déduire de l'optique géométrique cette propriété : un point dans le plan de Fourier correspond à une onde plane émise par l'objet dans une direction formant un angle θ avec l'axe optique.

En pratique, on a besoin de connaître de diagramme de rayonnement sur une très grande ouverture numérique. Les conditions de Gauss ne sont alors plus applicables : l'objectif de microscope projette dans le plan de Fourier un faisceau provenant de l'objet. Cette projection donne lieu à une relation non-linéaire entre le diagramme de rayonnement et l'intensité mesurée dans le plan de Fourier. Il faut donc tenir compte de cette relation lorsqu'on souhaite exploiter les données expérimentales. Cette méthode est décrite dans (Novotny et Hecht 2012). Le passage d'une image dans le plan de Fourier au diagramme de rayonnement souhaité s'effectue par (i) un changement de coordonnées $r = f \sin(\theta)$, où

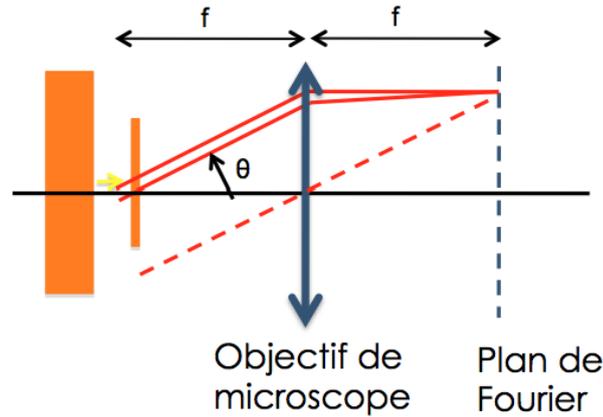


FIGURE 2.20 – Schéma de principe de l'imagerie du plan de Fourier (=plan focal image). Dans le plan de Fourier, un point correspond à une direction d'émission.

r est l'excentrement d'un point par rapport à l'axe optique dans le plan de Fourier, f est la distance focale de l'objectif (ii) une apodisation du diagramme obtenu par le facteur $f^2 \cos(\theta)$.

Dans certains microscopes optiques comme le notre, un éclairage Köhler peut être intégré. On y trouve alors un diaphragme de champ, qui est conjugué au plan focal *objet* de l'objectif et permet ainsi de réduire la taille du champ illuminé. On y trouve également un diaphragme d'ouverture, qui est conjugué au plan focal *image* de l'objectif, et permet ainsi de réduire l'ouverture angulaire de la source. Pour le calibrage du montage expérimental, on peut par exemple observer un miroir. On ferme le diaphragme de champ pour s'assurer que le miroir est dans le plan focal objet de l'objectif de microscope. On le ré-ouvre, puis avec une lame séparatrice et une lentille, on image le plan focal image de l'objectif sur une caméra. Pour trouver cette image du plan de Fourier, on ferme le diaphragme d'ouverture : son image est réfléchié par le miroir et positionnée dans le plan de Fourier. On modifie la position de la lentille imageant le plan de Fourier sur la caméra jusqu'à ce qu'on aperçoive sur la caméra les bords nets du diaphragme d'ouverture. Alors on image le plan de Fourier. Pour affiner la calibration, on peut également étudier une molécule placée à l'interface entre deux milieux diélectriques (par exemple l'air et le PMMA). Le diagramme de rayonnement obtenu est aisément identifiable, et est connu de façon analytique (Novotny et Hecht 2012). Il dépend uniquement de la hauteur et de l'orientation du dipôle. Il est donc possible, dans un traitement numérique postérieur, d'ajuster le diagramme expérimental avec le modèle analytique en ne modifiant que l'orientation et la hauteur du dipôle. On réitère l'opération, en modifiant la position et l'orientation de la lentille effectuant la conjugaison entre le plan de Fourier et la caméra, de sorte à minimiser l'erreur quadratique moyenne entre le diagramme expérimental et le meilleur ajustement numérique.

Pour l'étude présentée dans (Belacel *et al.* 2013), Benjamin Habert, à l'époque doctorant de Jean-Jacques Greffet à l'IOGS, avait fait le montage et les mesures du diagramme de rayonnement des antennes fabriquées. Lorsque j'ai commencé ma thèse, ce montage a dû être modifié pour ses recherches. J'ai également effectué un tel montage, en prévision de l'étude de nouveaux échantillons. Il permettra notamment d'étudier des sources à plasmons discutés au chapitre 4.

Pour l'étude des antennes patch, nous avons utilisé un objectif à immersion sous huile d'ouverture numérique $O.N. = 1.4$ et de grossissement $\times 100$. La figure (2.21) montre qu'avec un tel objectif, on peut collecter toute l'émission d'une antenne patch.

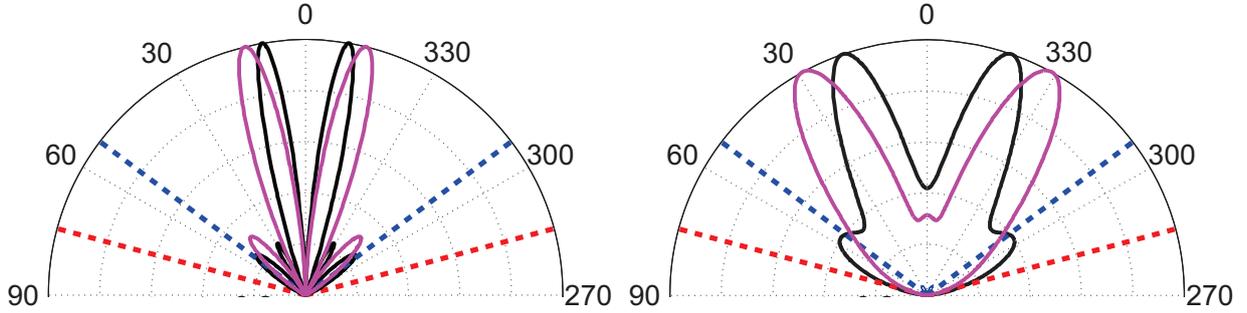


FIGURE 2.21 – Diagramme de rayonnement théorique d'une antenne patch possédant un disque d'or de $1.46 \mu\text{m}$ de diamètre et 20nm d'épaisseur ainsi qu'une couche de silice de 31.5nm d'épaisseur pour un dipôle polarisé (a) parallèle au plan du patch (b) perpendiculaire au plan du patch. Le dipôle est centré sur l'axe de symétrie de l'antenne patch. L'antenne patch est immergée sous huile (courbe noire) ou sous air (courbe rose). La droite en pointillé rouge (respectivement bleue) correspond à l'angle de collection pour un objectif d'ouverture numérique $O.N. = 1.4$ (respectivement $O.N. = 0.8$)

Les figures (2.9) et (2.21) montre qu'une antenne patch permet de rendre directif le diagramme de rayonnement d'un dipôle centré, avec des lobes d'émission fins et un zéro d'émission à $\theta = 0^\circ$. Toutefois, nous avons choisi d'utiliser des agrégats plutôt qu'un unique QD. Etant donnée la taille d'un agrégat, le diagramme de rayonnement associé à un QD excentré peut être très différent. La figure (2.22) montre que pour un dipôle excentré de 50nm , le maximum d'un lobe est tourné vers $\theta = 0^\circ$. En effet, on a vu que l'indice effectif du mode plasmonique vaut $n_{eff} = 3.71$ de sorte que la longueur d'onde effective du mode plasmonique vaut $\lambda_{SPP} = \lambda/n_{eff} = 170\text{nm}$. Un décalage de 50nm du dipôle correspond à 30% de la longueur d'onde effective du plasmon. Une telle position s'approche d'un zéro de l'onde de Bessel d'ordre 0, $J_0(k_{spp}r)$ qui est à symétrie de révolution, de sorte que le mode excité est maintenant représenté par une onde de Bessel d'ordre (azimutal) supérieur, asymétrique. Cette asymétrie se retrouve dans le diagramme de rayonnement.

Le diagramme de rayonnement attendu est alors la somme incohérente des diagrammes de rayonnement de chaque QD positionné dans l'agrégat, moyennés par l'orientation uniformément distribuée des QDs. Le diagrammes de rayonnement va donc dépendre (i) du diamètre de l'antenne (ii) de la taille de l'agrégat (iii) de l'excentrement de l'agrégat. La figure (2.23) présente le diagramme de rayonnement de l'antenne 1. Contrairement aux diagrammes de rayonnement présentés précédemment pour une source centrée (voir figures (2.9) et (2.21)), le diagramme de rayonnement expérimental présente un unique lobe directionnel de $\sim 35^\circ$ de largeur angulaire, qui peut être facilement couplé à une fibre optique pour la propagation des photons sur de longues distances. Cette observation appuie l'analyse précédente concernant la taille de l'agrégat. Pour s'en assurer, j'ai modélisé le diagramme de rayonnement expérimental en considérant des émetteurs uniformément espacés dans un cylindre de 10nm d'épaisseur, représentant l'agrégat. Connaissant le diamètre des antennes, j'ai ensuite optimisé la position et la taille de l'agrégat de façon à minimiser l'erreur quadratique moyenne

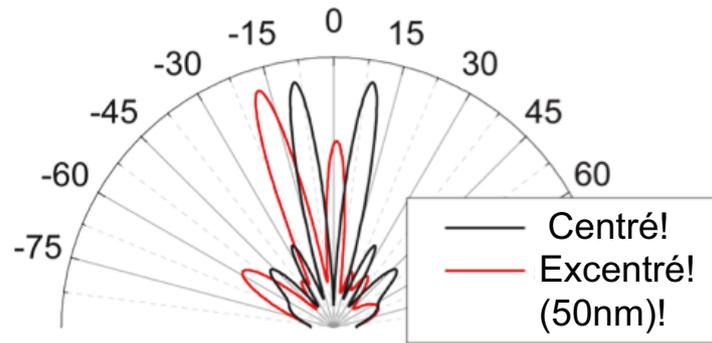


FIGURE 2.22 – Calcul des diagrammes de rayonnement pour un dipôle perpendiculaire à un patch de $1.6\mu\text{m}$ de diamètre et pour deux positions du dipôle. En noir : L'émetteur est parfaitement centré sur l'axe de symétrie de l'antenne. En rouge : L'émetteur est excentré de 50nm

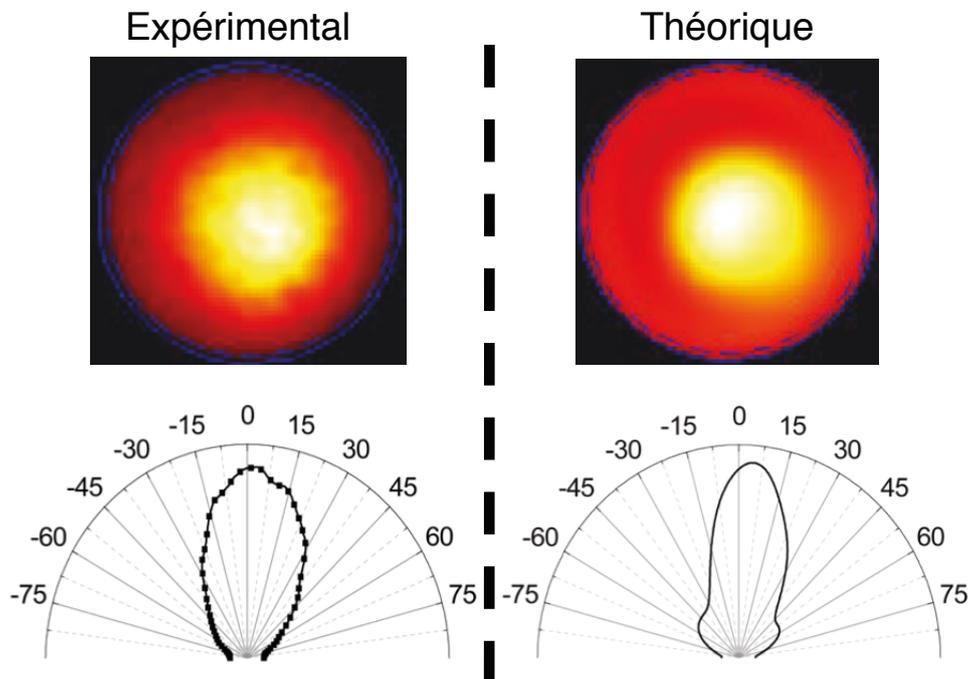


FIGURE 2.23 – Le contrôle du diagramme de rayonnement. En haut : Image obtenue dans le plan de Fourier. En bas : coupe du diagramme de rayonnement associé. A gauche : Diagramme de rayonnement mesuré pour une agrégat couplé à l'antenne patch 1 de $1.6\mu\text{m}$ de diamètre. A droite : Diagramme de rayonnement calculé pour un agrégat de QDs orientés aléatoirement espacé uniformément dans un cylindre de 10nm de haut et 50nm de diamètre, excentré de 15nm .

entre les diagrammes de rayonnement théorique et expérimentale. J'ai alors obtenu le diagramme de rayonnement théorique présenté en figure (2.23), correspondant à un agrégat de 100nm de diamètre, positionné à 15nm de l'axe de symétrie de l'antenne patch. Ces valeurs sont en accord avec la taille typique des agrégats mesurés à l'AFM (voir figure (2.13)) et avec la précision de centrage du patch dans la technique de lithographie optique.

Ainsi l'antenne patch peut être très directive. Il nous reste à étudier l'efficacité de l'antenne.

2.7 Efficacité de l'antenne

Les parties précédentes ont montré l'intérêt de la plasmonique pour l'ingénierie des propriétés optiques d'un émetteur unique. Toutefois, l'utilisation de métaux aux fréquences optiques introduit des pertes par absorption de l'énergie électromagnétique. Une question se pose alors : comment éviter que la puissance émise par une source soit perdue sous forme de chaleur ? D'abord, un émetteur unique peut se désexciter de façon non-radiative, indépendamment de l'environnement extérieur. Le rendement quantique η_0 caractérise la probabilité qu'un émetteur unique placé dans le vide se désexcite en émettant un photon. Il est défini par la fraction du taux de désexcitation d'un dipôle pouvant se coupler à un canal de désexcitation externe à l'émetteur. Ensuite, ce canal de désexcitation peut être radiatif ou non-radiatif. Comme il a été discuté en partie (2.3.2), en plaçant l'émetteur à une dizaine de nanomètre de toute interface métallique, on évite la désexcitation par chauffage électrostatique, le quenching. L'émetteur se couple essentiellement au mode plasmonique, qui lui dissipe son énergie sous forme de rayonnement ou sous forme de chauffage, par effet Joule. Pour caractériser la probabilité que le système {émetteur + antenne} produise effectivement un photon, on définit son efficacité radiative par le rapport du taux de désexcitation radiative sur le taux de désexcitation total de l'émetteur en présence de l'antenne. Prenons le cas d'un émetteur possédant un rendement quantique inférieur à l'unité, $\eta_0 < 1$. L'effet Purcell agissant sur les canaux de désexcitation externes à l'émetteur, le taux de désexcitation total du dipôle en présence de l'antenne est donné par la somme du taux de désexcitation non-radiative intrinsèque à l'émetteur $\gamma_0^{NR} = (1 - \eta_0)\gamma_0$ et du taux de désexcitation modifié par l'antenne $\gamma_{ant} = \gamma_{ant}^R + \gamma_{ant}^{NR} = \eta_0\gamma_0 F_p$, où γ_0 est le taux comptabilisant toute forme de désexcitation intrinsèque à l'émetteur, et F_p est le facteur de Purcell de la source couplée à l'antenne. Cette expression de γ_{ant} fait apparaître le taux de désexcitation radiative γ_{ant}^R . Cette quantité désigne la fraction du taux de désexcitation modifié par l'antenne qui conduit effectivement au rayonnement d'un photon $\gamma_{ant}^R = \eta_{ant}\gamma_{ant}$, où η_{ant} est le rendement radiatif de l'antenne seule, égale au rendement du système {émetteur+antenne} pour un émetteur de rendement quantique $\eta_0 = 1$. Finalement, le rendement radiatif du système complet {émetteur+antenne} est donné par :

$$\eta_{rad} = \frac{\gamma_{ant}^R}{\gamma_0^{NR} + \gamma_{ant}^R + \gamma_{ant}^{NR}} = \frac{\eta_{ant}\eta_0 F_p}{1 + \eta_0(F_p - 1)} \quad (2.26)$$

Deux remarques sous-jacentes à la structure de l'équation (2.26) peuvent être formulées :

- il est possible d'améliorer le rendement radiatif d'un émetteur à l'aide d'une antenne. Pour cela, il faut que $\eta_{ant}F_p > \{1 + \eta_0(F_p - 1)\}$ donc il faut nécessairement que $\eta_{ant}F_p > 1$,
- lorsque $\eta_0 F_p \gg 1$, alors le rendement du système est dominé par le rendement radiatif de l'antenne $\eta_{rad} \simeq \eta_{ant}$.

Dans le cas de l'étude expérimentale présentée dans (Belacel *et al.* 2013), le rendement quantique des QDs avoisine $\eta_0 = 40\%$. Au mieux, le facteur de Purcell est de l'ordre de 80, de sorte que le rendement radiatif du système est donné par le rendement de l'antenne. Pour des antennes patch possédant un diamètre compris entre $1.5\mu\text{m}$ et $2\mu\text{m}$, le rendement radiatif de l'antenne à $\lambda = 630\text{nm}$ est de l'ordre de $\eta_{ant} = 1\%$. Ainsi $\eta_{ant}F_p \simeq 0.8 < 1$, aucun gain de rendement radiatif n'est possible avec ces antennes à cette longueur d'onde.

D'après cette analyse, le rendement radiatif du système complet est donc de l'ordre de $\eta_{rad} \simeq \eta_{ant} = 1\%$.

Cette faible valeur du rendement radiatif de l'antenne η_{ant} est attribuée à deux choses. D'une part, les diamètres d'antennes considérés sont grands devant la longueur de propagation L_{prop} du mode plasmonique. De sorte que tout se passe comme si le diamètre de l'antenne était infini. Le mode plasmonique n'atteint pas le bord de l'antenne, et ne peut pas être diffracté dans des ondes planes. Le problème est donc similaire à celui d'un MIM, pour lequel le désaccord en vecteur d'onde entre le mode plasmonique et une onde plane empêche le rayonnement du mode. D'autre part, même pour une petite antenne patch, le rendement radiatif à $\lambda = 630\text{nm}$ ne dépasse pas 10%. Un mode plasmonique étant une densité de courant oscillant en surface d'un métal, les charges en surface du disque vont voir leur image dans le miroir d'or, ces images ont une charge opposée, de sorte que pour un petit disque, on peut assimiler le mode d'antenne à un quadrupole. Ce quadrupole, formé de deux dipôles très rapprochés et en opposition de phase, est un mauvais radiateur. L'antenne patch telle qu'elle a été conçue jusqu'à présent est intrinsèquement mauvaise pour rayonner.

Il a été montré que pour qu'un ordinateur quantique soit efficace, il faut que (Varnava *et al.* 2008),

$$\eta_{\text{emetteur}} \times \eta_{\text{detecteur}} > 2/3 \quad (2.27)$$

où η_{emetteur} est l'efficacité totale de la source de photons uniques, comprenant l'efficacité de collection des photons et le rendement radiatif, et $\eta_{\text{detecteur}}$ est l'efficacité du détecteur. Il n'est donc pas nécessaire d'avoir un rendement radiatif unité pour certaines applications, ce qui réduit les contraintes sur la source. Il faut toutefois que le rendement radiatif soit supérieur à $2/3$. Avec un objectif à immersion, on peut collecter quasiment l'ensemble des photons émis grâce à la grande directivité de l'antenne patch (voir figure (2.23)). Pour les applications, le rendement radiatif de l'antenne est donc le facteur limitant.

2.8 Conclusion

Pour conclure ce chapitre, les sources de photons uniques présentent un grand intérêt pour de nombreuses applications, essentiellement dans le domaine de la manipulation de l'information quantique. L'utilisation d'émetteur unique permet d'obtenir des sources déterministes. Pour améliorer ces sources, et notamment la collection des photons uniques et la cadence d'émission, les antennes optiques constituent de bons candidats. Une antenne peut contrôler la directivité, la cadence d'émission et le rendement radiatif. L'effet Purcell garantit le contrôle des propriétés de la source par l'antenne. Deux stratégies permettent d'obtenir un grand facteur de Purcell : un grand facteur de qualité ou des modes très confinés. Pour pouvoir utiliser des émetteurs à température ambiante, la seconde stratégie est nécessaire. La plasmonique constitue une plate-forme intéressante pour pouvoir confiner l'énergie électromagnétique. L'antenne patch métallique est un exemple d'antenne permettant d'allier confinement modal et directivité. Elle a été réalisée et caractérisée avec succès, en utilisant une méthode de fabrication relativement simple permettant de positionner de façon déterministe des QDs pour lesquels la fabrication est bien contrôlée. On a pu montrer notamment le contrôle de la directivité et du taux de désexcitation. L'accélération du taux de désexcitation résulte du couplage à 95% de l'émetteur avec des modes plasmoniques confinés, qui peuvent être dissipés par rayonnement ou par effet Joule. Nous montrons

qu'aux longueurs d'onde du visible, la dissipation par effet Joule est dominante. Pour pouvoir remplir le cahier des charges des applications manipulant l'information quantique, il est nécessaire de se tourner vers de nouvelles stratégies pour améliorer les performances de l'antenne patch, et notamment pour augmenter les pertes radiatives. Le chapitre suivant se focalise sur quelques unes de ces stratégies.

Chapitre 3

Améliorer les performances des antennes patch

Table des matières

2.1	Introduction	50
2.2	Quelques propriétés fondamentales des Quantum Dots	54
2.3	Plasmonique: augmenter le débit avec une large bande passante	56
2.3.1	L'effet Purcell	56
2.3.2	Plasmon, Quenching et cavité MIM	59
2.4	L'antenne patch : rayonner à haut débit et de façon directive.	64
2.4.1	Principes de l'antenne patch	64
2.4.2	Modification de l'émission spontanée	65
2.4.3	La directivité de l'antenne patch	69
2.5	Cas limites de l'effet Purcell	70
2.5.1	Cas limite: $\tau_{excitation} > 1/\gamma_{emetteur}$	70
2.5.2	Cas limite : $\gamma_{emetteur} > \gamma_{cav}$	70
2.5.3	Cas limite : le couplage fort	70
2.6	Passage à l'expérience	71
2.6.1	Les QDs de CdSe/CdS	71
2.6.2	La technique de fabrication	74
2.6.3	Propriétés spectrales et temporelles	77
2.6.4	Mesure de diagramme de rayonnement	79
2.7	Efficacité de l'antenne	83
2.8	Conclusion	84

Dans ce chapitre, on souhaite étudier des stratégies permettant d'améliorer le rendement radiatif des antennes patch. J'appuierai mon étude par des simulations numériques. Dans un premier temps, je développerai dans la partie (3.1) une théorie permettant d'obtenir une expression du rendement radiatif dans le cas d'une antenne métallique de dimensions finies, placée dans un milieu homogène. Cela permettra de déduire quelques pistes d'investigation. Puis, on s'intéressera dans la partie (3.2) aux paramètres de l'antenne patch que l'on peut modifier en vue d'une amélioration du rendement purement radiatif, quitte à réduire d'autres performances de l'antenne. On verra notamment que cela implique une baisse de

la directivité. Ainsi, dans les parties suivantes, nous étudierons deux stratégies permettant d'abord d'améliorer la directivité de l'antenne patch, et ensuite d'améliorer davantage le rendement radiatif de l'antenne. En partie (3.3), on s'intéressera à l'ajout d'un réseau annulaire concentrique. En partie (3.4), on traitera le cas d'une antenne patch hybride, associant une antenne patch métallique et un résonateur diélectrique.

3.1 Expression générale du rendement radiatif d'une antenne

Dans cette partie, nous cherchons à exprimer le rendement radiatif d'une antenne de forme quelconque. L'analyse de cette expression nous donnera des pistes à investiguer pour augmenter ce rendement.

Dans la plupart des cas, on souhaite que les propriétés de rayonnement d'un système {source+antenne} soient pilotées par les propriétés de l'antenne. Pour cela, il faut que :

- le couplage du dipôle-source à un ou plusieurs modes de l'antenne soit efficace. Cela revient dans un premier temps à avoir un facteur de Purcell très élevé ($F_p > 10$) de sorte que le couplage direct du dipôle à l'espace libre soit négligeable.
- la contribution du quenching soit négligeable. Comme on l'a vu précédemment, il suffit pour cela de placer la source à une distance $d \sim 10\text{nm}$ de l'antenne.

Nous allons maintenant décrire le rayonnement de l'antenne dans le cadre d'un formalisme de diffusion. Pour cela, nous comparons dans un premier temps deux situations : le rayonnement du dipôle-source électrique dans un milieu en présence de l'antenne (milieu caractérisé par la constante diélectrique $\epsilon(\vec{r})$ voir figure (3.1) (a)), puis le rayonnement du dipôle-source dans un milieu de référence qu'on considèrera ici comme étant homogène (milieu caractérisé par la constante diélectrique ϵ_{ref} voir figure (3.1) (b)).

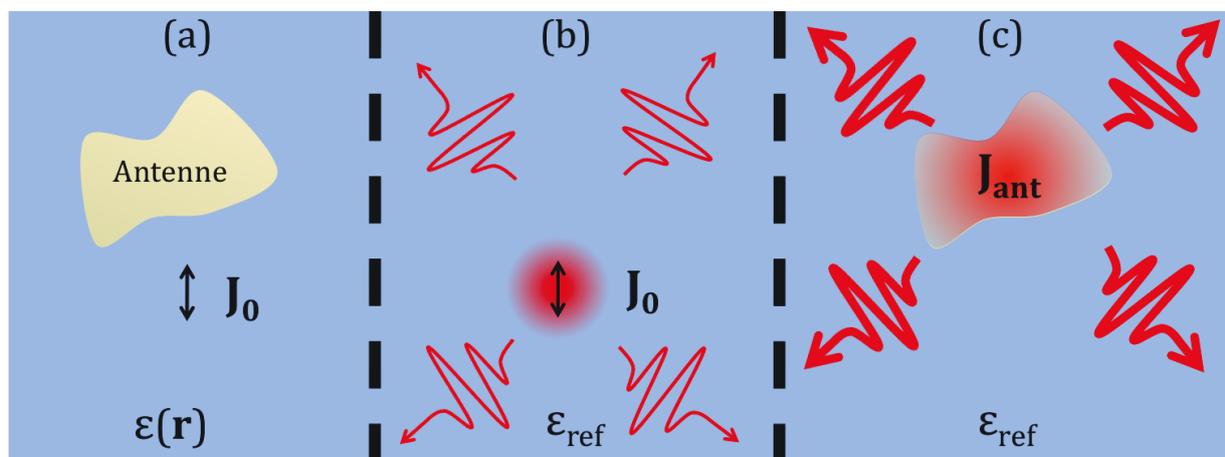


FIGURE 3.1 – (a) Le dipôle source \vec{J}_0 en présence de l'antenne. (b) Le rayonnement du dipôle source dans un milieu en l'absence d'antenne. (c) Le rayonnement de l'antenne en tant que source secondaire dans le même milieu, en l'absence de la source dipolaire primaire.

On choisit de considérer des milieux non-magnétiques, i.e. la perméabilité magnétique dans chaque situation vaut toujours la perméabilité du vide μ_0 . Écrivons les équations de Maxwell en régime harmonique $e^{-i\omega t}$ pour les deux situations :

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \times \vec{E} = i\omega\mu_0\vec{H} \\ \vec{\nabla} \times \vec{H} = -i\omega\epsilon\vec{E} + \vec{j}_0 \cdot \delta(\vec{r} - \vec{r}_s), \end{cases} \quad (3.1)$$

et

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \times \vec{E}_{ref} = i\omega\mu_0\vec{H}_{ref} \\ \vec{\nabla} \times \vec{H}_{ref} = -i\omega\epsilon_{ref}\vec{E}_{ref} + \vec{j}_0 \cdot \delta(\vec{r} - \vec{r}_s), \end{cases} \quad (3.2)$$

où \vec{E} et \vec{H} (resp. \vec{E}_{ref} et \vec{H}_{ref}) sont les champs électrique et magnétique en présence de l'antenne (resp. dans le milieu de référence), ϵ (resp. ϵ_{ref}) est la permittivité électrique locale en présence de l'antenne (resp. dans le milieu de référence) et \vec{j}_0 est l'amplitude de la densité de courant dipolaire électrique de la source. En écrivant le champ en présence de l'antenne $\vec{E} = \vec{E}_{ref} + \vec{E}_S$ comme la somme du champ émis en l'absence d'antenne \vec{E}_{ref} et du champ diffusé par l'antenne \vec{E}_S , la soustraction des deux systèmes d'équations (3.1) et (3.2) donne les équations de Maxwell vérifiées par le champ diffusé E_S :

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \times \vec{E}_S = i\omega\mu_0\vec{H}_S \\ \vec{\nabla} \times \vec{H}_S = -i\omega\epsilon_{ref}\vec{E}_S - i\omega\Delta\epsilon(\vec{r}, \omega)\vec{E}, \end{cases} \quad (3.3)$$

où $\Delta\epsilon = \epsilon(\vec{r}) - \epsilon_{ref}$ est une quantité à valeurs non-nulles uniquement dans l'antenne. De l'équation (3.3), il apparaît que le champ diffusé par l'antenne est le champ émis dans le milieu de référence par une source de densité de courant $\vec{J}_{ant} = -i\omega\Delta\epsilon(\vec{r}, \omega)\vec{E}$, qui est localisée dans le volume de l'antenne, comme schématisé sur la figure (3.1) (c).

Écrivons maintenant la puissance émise par cette densité de courant. Pour simplifier le problème, on considère maintenant que l'antenne et le milieu de référence sont des milieux distincts homogènes. Alors la variation de permittivité $\Delta\epsilon$ est uniforme $\Delta\epsilon = \epsilon_0\delta\epsilon$ dans le volume de l'antenne. En partant de l'expression du potentiel retardé dans un milieu homogène sans perte, on peut écrire le potentiel vecteur rayonné en champ lointain par cette densité de courant (Jackson 1962) :

$$\vec{A}_{lointain}(\vec{r}) = -i\omega\epsilon_0\delta\epsilon \frac{\mu_0 \exp(in_{ref}k_0r)}{4\pi r} \int_{V_{ant}} \vec{E}_{TOT}(\vec{r}_p) \exp(-in_{ref}k_0\vec{u}_r \cdot \vec{r}_p) d^3\vec{r}_p, \quad (3.4)$$

où on remarque que l'intégration n'est effectuée que sur le volume de l'antenne V_{ant} , où $\Delta\epsilon \neq 0$. Ainsi, l'amplitude du champ lointain est déterminée par l'intégrale de recouvrement entre le champ proche dans l'antenne et une onde plane. En définissant le produit scalaire :

$$\langle \Psi_f || \Psi_i \rangle = \int_{V_{ant}} \Psi_f^*(\vec{r}_p) \Psi_i(\vec{r}_p) d^3\vec{r}_p, \quad (3.5)$$

on peut réécrire l'équation (3.4) sous la forme :

$$\vec{A}_{lointain}(\vec{r}) = -i\omega\delta\epsilon \frac{\exp(in_{ref}k_0r)}{4\pi c^2 r} \langle \Psi_{OP}(\vec{u}_r) || \vec{\Psi} \rangle, \quad (3.6)$$

où $\Psi_{OP}(\vec{u}_r) = \exp(+in_{ref}k_0\vec{u}_r \cdot \vec{r}_p)$ est une onde plane se propageant suivant \vec{u}_r , et $\vec{\Psi} = \vec{E}$ est le champ proche total de l'antenne. Pour chaque composante $j \in \{x, y, z\}$, l'inégalité de Cauchy-Schwarz donne :

$$|\langle \Psi_{OP}(\vec{u}_r) | \Psi_j \rangle| \leq \| \Psi_{OP}(\vec{u}_r) \| \cdot \| \Psi_j \| = V_{ant} \sqrt{|E_j|^2} \quad (3.7)$$

où $\| \Psi \| = \sqrt{\langle \Psi | \Psi \rangle}$ définit la norme de Ψ pour le produit scalaire de l'équation (3.5), et $\overline{E_j} = \frac{1}{V_{ant}} \int_{V_{ant}} E_j(\vec{r}_p) d^3\vec{r}_p$ définit la valeur moyenne de la composante j du champ \vec{E} dans le volume de l'antenne.

L'égalité dans la formule (3.7) a lieu lorsque $\Psi_{OP}(\vec{u}_r)$ et Ψ_j sont colinéaires, i.e. lorsqu'il existe une constante $\beta_j \in \mathbb{C}$ telle que $E_j(\vec{r}_p) = \beta_j \exp(+in_{ref}k_0\vec{u}_r \cdot \vec{r}_p)$. D'autre part, le champ électrique rayonné par l'antenne (le champ *lointain*) se déduit du potentiel vecteur $\vec{A}_{lointain}$ par la relation :

$$\vec{E}_{S,lointain} = i\omega \vec{A}_{lointain,\perp} = i\omega \left[\vec{A}_{lointain} - (\vec{A}_{lointain} \cdot \vec{u}_r) \vec{u}_r \right] \quad (3.8)$$

où $\vec{A}_{lointain,\perp}$ est la composante de $\vec{A}_{lointain}$ perpendiculaire à la direction \vec{u}_r . Pour obtenir l'expression (3.8), on a fait l'approximation d'onde plane pour les champs électrique et magnétique, comme pour le potentiel vecteur. L'équation (3.8) montre que chaque composante $j \in \{x, y, z\}$ du champ lointain rayonné par l'antenne possède une amplitude $\|E_{S,lointain,j}\| = \|A_{lointain,j}\| \sin(\theta_j)$ où θ_j est l'angle formé entre l'axe (Oj) et la direction d'observation $\vec{u}_r(\theta_j)$.

Exprimons maintenant la puissance totale rayonnée. En supposant que l'antenne rayonne beaucoup plus qu'un simple dipôle dans le milieu de référence, alors la puissance totale rayonnée par le système $\{source + antenne\}$ peut être approchée par la puissance diffusée par l'antenne, négligeant alors l'interférence entre les champs \vec{E}_{ref} et \vec{E}_S . Il suffit alors d'intégrer le flux du vecteur de Poynting sur une sphère de rayon R en champ lointain :

$$\begin{aligned} P_{ray} &= \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \frac{\epsilon_0 c}{2n_{ref}} |\vec{E}_{S,lointain}|^2 R^2 \sin(\theta) d\theta d\phi \\ &= \frac{\epsilon_0 c k_0^4 |\delta\epsilon|^2}{2n_{ref} (4\pi)^2} \sum_j \int_0^{2\pi} \int_0^\pi |\langle \Psi_{OP}(\vec{u}_r(\theta)) | \Psi_j \rangle|^2 \sin^3(\theta) d\theta d\phi. \end{aligned} \quad (3.9)$$

L'équation (3.9) et l'inégalité de Cauchy-Schwarz permettent d'écrire :

$$P_{ray} \leq P_{ray,MAX} = \frac{\epsilon_0 c k_0^4 |\delta\epsilon|^2}{12\pi n_{ref}} V_{ant}^2 \overline{|E|^2}. \quad (3.10)$$

où $\overline{|E|^2} = \sum_j \overline{|E_j|^2}$. Pour des raisons pratiques, on définit la quantité suivante :

$$\eta_{P-L} = \sum_j \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^\pi |\langle \Psi_{OP}(\vec{u}_r(\theta_j)) | \Psi_j \rangle|^2 \sin^3(\theta_j) d\theta_j d\phi_j}{V_{ant}^2 \overline{|E|^2}}. \quad (3.11)$$

L'équation (3.10) garantit $\eta_{P-L} \leq 1$.

Il faut maintenant exprimer la puissance absorbée dans l'antenne. On peut l'estimer en considérant la puissance dissipée par la densité de courant \vec{J}_{ant} :

$$P_{abs} = \int_{V_{ant}} \frac{1}{2} \text{Re}(\vec{J}_{ant} \cdot \vec{E}) d^3\vec{r}_p = \frac{\epsilon_0 c k_0}{2} \text{Im}(\delta\epsilon) V_{ant} \overline{|E|^2}. \quad (3.12)$$

Le rendement radiatif de l'antenne η_{ant} étant défini ici comme la fraction rayonnée sur la puissance totale émise, les considérations précédentes mènent à l'expression :

$$\eta_{ant} = \frac{P_{ray}}{P_{ray} + P_{abs}} = \frac{1}{1 + \frac{\text{Im}(\delta\epsilon) 6\pi n_{ref}}{|\delta\epsilon|^2} \frac{1}{k_0^3 V_{ant} \eta_{P-L}}} \leq \frac{1}{1 + \frac{V_{50\%}}{V_{ant}}} \quad (3.13)$$

où $V_{50\%} = \frac{\text{Im}(\delta\epsilon) 6\pi n_{ref}}{|\delta\epsilon|^2} \frac{1}{k_0^3}$ est le volume de l'antenne permettant d'atteindre un rendement de 50% lorsque $\eta_{P-L} = 1$. On remarque que le rendement radiatif est maximal lorsque $\eta_{P-L} = 1$. En ce sens, η_{P-L} peut être interprétée comme une efficacité de couplage entre le champ proche de l'antenne et le champ lointain. Lorsque η_{P-L} est le plus proche de l'unité alors le champ \vec{E} est optimal du point de vue du rendement radiatif. En pratique toutefois, il est difficile de déterminer la géométrie et les matériaux permettant de maximiser cette efficacité de couplage η_{P-L} . Il en est de même pour le rendement radiatif.

On peut néanmoins tirer quelques pistes d'investigations à partir de l'équation (3.13). Tout d'abord, il faut chercher une structure telle que, d'une part, le champ soit distribué dans tout le volume de l'antenne, d'autre part, le volume de l'antenne soit maximal. En remplissant ces deux conditions, on maximise le volume rayonnant de l'antenne. Comme on l'a vu, la puissance absorbée est proportionnelle à ce volume alors que la puissance rayonnée est proportionnelle au carré de ce volume. Il est donc possible de gagner en rendement radiatif en suivant cette stratégie. Les plasmons étant des champs évanescents, une antenne métallique efficace doit posséder des dimensions caractéristiques qui ne dépassent pas $\sim 100\text{nm}$. Ensuite, des choix judicieux de la longueur d'onde d'émission et du métal utilisé permettent de minimiser le volume $V_{50\%}$, ce qui réduit l'absorption. Ces stratégies sont au coeur de la partie (3.2). Enfin, on peut étudier des antennes hybrides, comprenant des métaux et des diélectriques. Ainsi, on peut diminuer le volume des pertes ohmiques tout en gardant un grand volume rayonnant. Lorsque l'antenne est conçue judicieusement, les parties métalliques peuvent permettre d'exalter fortement l'EM-LDOS tandis que les parties diélectriques peuvent permettre de contrôler le rayonnement sans ajouter de pertes par absorption. C'est la stratégie qui sera étudiée dans la dernière partie de ce chapitre.

A présent, étudions les différents paramètres permettant de maximiser le rendement de l'antenne patch.

3.2 L'antenne patch : du visible vers le proche IR

Repartons des bases de l'antenne patch. On a vu que pour une antenne patch infiniment petite, le facteur de qualité est limité au facteur de qualité électrostatique. En outre, on a vu qu'en augmentant le diamètre de l'antenne, on augmente les pertes radiatives et les

pertes par propagation du mode. Par conséquent, le facteur de qualité diminue. On a vu notamment que pour une antenne patch résonante à $\lambda = 0.63\mu\text{m}$, les pertes sont dominées par les pertes par absorption lors de la propagation du mode. Afin de maximiser le rendement radiatif de l'antenne, il faut dans un premier temps minimiser ces pertes. Cela revient à augmenter la longueur de propagation du mode plasmonique. En partie (3.2.1), nous étudierons les paramètres permettant d'augmenter la longueur de propagation du mode. Ensuite dans la partie (3.2.2), on cherchera les dimensions d'antenne patch permettant de maximiser la puissance rayonnée. Enfin en partie (3.2.3), on discutera l'effet d'un changement de métal sur les performances de l'antennes patch.

3.2.1 Augmenter la longueur de propagation du mode plasmonique

La longueur de propagation d'un mode d'une antenne patch, à l'instar de son indice effectif, peut être estimée à partir de la relation de dispersion de la structure MIM correspondant à l'antenne patch étudiée. Dans un premier temps, on va étudier la relation de dispersion d'une structure MIM symétrique, comprenant un film diélectrique de permittivité ϵ_d entre deux demi-espaces métalliques infinis de permittivité $\epsilon_m = \epsilon'_m + i\epsilon''_m$ telle que $\epsilon_d < -\epsilon'_m$. Cette étude permettra de déterminer l'impact de l'épaisseur de diélectrique d'une antenne patch sur les caractéristiques d'un mode plasmonique. Notons que les résultats présentés dans cette partie sont obtenus dans le cadre d'une description locale de la permittivité du métal. Une description non-locale basée sur un modèle hydrodynamique peut être trouvée dans la référence ((Moreau *et al.* 2013)). La relation de dispersion peut être obtenue en cherchant les pôles d'une amplitude de diffusion de la structure, par exemple les pôles du facteur de réflexion en amplitude. Un modèle Fabry-Pérot de la cavité permet de déduire ce facteur de réflexion. Chercher les pôles de ce facteur de réflexion revient à chercher les zéros complexes, pour une fréquence réelle fixée, du dénominateur du facteur de réflexion. Il faut alors résoudre l'équation :

$$1 - (r_{dm})^2 \exp(-2u_d d) = 0 \quad (3.14)$$

où $r_{dm} = \frac{\epsilon_m u_d - \epsilon_d u_m}{\epsilon_m u_d + \epsilon_d u_m}$ est le facteur de réflexion en amplitude à une interface métal-diélectrique, $u_\alpha = \sqrt{k_{//}^2 - \epsilon_\alpha k_0^2}$, $\alpha \in \{m, d\}$, $k_{//}$ est la composante parallèle du vecteur d'onde du mode et $k_0 = \omega/c$. On a vu au chapitre précédent que pour un mode plasmonique $Re(u_d) > 0$. D'après cette équation, on voit notamment que, lorsque $d \rightarrow +\infty$, $\exp(-2u_d d) \rightarrow 0$ et une solution n'est possible que lorsque $|r_{dm}| \rightarrow +\infty$. Autrement dit, pour une épaisseur de diélectrique suffisamment grande, on retrouve la relation de dispersion plasmonique pour une simple interface diélectrique-métal. L'épaisseur en dessous de laquelle la relation de dispersion dévie de celle d'une interface simple est de l'ordre de l'épaisseur de peau du mode dans le diélectrique δ_d . Dans ce cas, les modes de chaque interface peuvent interagir fortement ce qui génère des relations de dispersion différentes. Pour une simple interface diélectrique-métal, l'épaisseur de peau s'écrit :

$$\delta_d = \frac{1}{Re(u_d)} = \frac{\lambda}{2\pi Im\left(\frac{-\epsilon_d}{\sqrt{\epsilon_m + \epsilon_d}}\right)} \approx \frac{\lambda^2}{2\pi\epsilon_d\lambda_p} \quad (3.15)$$

où le terme de droite est déduit d'un modèle de Drude dans l'approximation des grandes longueurs d'onde et des pertes négligeables, $\epsilon_m \simeq -\left(\frac{\lambda}{\lambda_p}\right)^2$, où λ_p est la longueur d'onde

plasma du métal. L'équation (3.15) montre que δ_d dépend fortement de la longueur d'onde, et pour un MIM composé d'or et de silice, l'épaisseur de peau dans le diélectrique est de l'ordre de $\delta_d \sim 1\mu\text{m}$. Pour des épaisseurs nanométriques de diélectrique, un modèle d'une simple interface ne suffit pas à décrire les propriétés des modes plasmoniques.

En développant l'équation (3.14), on obtient deux relations de dispersion lorsque $d < \delta_d$, correspondant aux deux modes plasmoniques de cette structure (Maier 2007) :

$$\tanh\left(\frac{u_d d}{2}\right) = -\frac{u_d \epsilon_m}{u_m \epsilon_d} \quad (3.16)$$

et

$$\tanh\left(\frac{u_d d}{2}\right) = -\frac{u_m \epsilon_d}{u_d \epsilon_m} \quad (3.17)$$

L'équation (3.16) (resp. l'équation (3.17)) correspond à un mode *anti-symétrique* (resp. *symétrique*), dont la composante verticale du champ électrique $E_z(z)$ est une fonction impaire (resp. paire) de la coordonnée verticale z . Ainsi, pour le mode anti-symétrique, $E_z(z=0) = 0$. Par conséquent, un dipôle placé au milieu de la couche de diélectrique et orienté verticalement ne peut se coupler qu'au mode symétrique. Une analyse plus complète de ces modes montre que le mode anti-symétrique possède une longueur de propagation plus grande que le mode symétrique. C'est pourquoi dans la littérature, on se réfère au mode anti-symétrique par l'appellation *Long Range Surface Plasmon Polariton* (LR-SPP), par opposition au *Short Range Surface Plasmon Polariton* (SR-SPP) pour le mode symétrique.

Analysons maintenant la limite électrostatique des équations (3.16) et (3.17). Dans cette limite, on considère les effets de retard ondulatoire négligeables, ce qui est équivalent à prendre $c \rightarrow +\infty$ ou encore $k_0 \rightarrow 0$. Dans ce cas, on a $u_{m,d} \rightarrow k_{spp}^{stat}$. Pour l'équation (3.16), aucune solution n'existe étant donné que $-\epsilon'_m/\epsilon_d > 1$ et que $\tanh(x) \leq 1$, $x \in \mathbb{R}$. Pour des épaisseurs d infinitésimales, les effets de retard ondulatoire sont négligeables, de sorte que le LR-SPP ne peut exister. Il y a donc une épaisseur minimale dite de *coupure* garantissant l'existence de ce mode. Pour l'équation (3.17), on obtient dans la limite électrostatique :

$$\tanh\left(\frac{k_{spp}^{stat} d}{2}\right) = -\frac{\epsilon_d}{\epsilon_m} \quad (3.18)$$

En pratique, en considérant les propriétés de l'or et de la silice aux fréquences optiques, $-\epsilon_d/\epsilon'_m \ll 1$. Contrairement au LR-SPP, il n'y a pas d'épaisseur de *coupure* du mode et un développement limité au premier ordre en 0 de la fonction $\tanh(x) \simeq x$ nous permet d'obtenir la relation de dispersion quasi-statique simplifiée :

$$k_{spp}^{stat} = -\frac{2\epsilon_d}{\epsilon_m d} \quad (3.19)$$

Nous allons analyser les tendances d'évolutions de l'indice effectif n_{eff} et de la longueur de propagation L_{prop} du mode symétrique à partir de l'équation (3.19). D'abord, on a vu au chapitre précédent que pour l'or aux fréquences optiques, $-\epsilon'_m \gg \epsilon''_m$. Dans ces conditions, l'indice effectif n_{eff} et la longueur de propagation L_{prop} du mode peuvent s'écrire :

$$n_{eff}^{stat} = \frac{\text{Re}(k_{spp}^{stat})}{k_0} \simeq -\frac{2\epsilon_d}{\epsilon'_m k_0 d} \quad (3.20)$$

et

$$L_{prop} = \frac{1}{\text{Im}(k_{spp}^{stat})} \simeq \frac{d\epsilon'_m{}^2}{2\epsilon_d\epsilon''_m} = \frac{Q_{Drude}^S}{n_{eff}^{stat}k_0} \quad (3.21)$$

L'équation (3.20) montre que l'indice effectif du mode est grand pour des épaisseurs à l'échelle sub-longueur d'onde (i.e. $k_0d \ll 1$). Cette équation montre également que l'indice effectif du mode décroît lorsque $|\epsilon'_m|$ croît. L'équation (3.21) montre que la longueur de propagation suit une tendance inverse à celle de l'indice effectif, et qu'elle est proportionnelle au facteur de qualité quasi-statique de Drude, défini au chapitre précédent par $Q_{Drude}^S = -\frac{\epsilon'_m}{\epsilon''_m}$. On a vu que Q_{Drude}^S prend des valeurs comprises entre 8 et 15 en changeant la longueur d'onde. Il est donc possible de doubler la longueur de propagation en jouant sur ce paramètre. En outre, un simple modèle de Drude suffit à montrer que $-\epsilon'_m \simeq \left(\frac{\lambda}{\lambda_p}\right)^2$ croît fortement lorsqu'on passe du visible à l'infrarouge. On a vu au chapitre 2 que pour une épaisseur $d = 30\text{nm}$, on peut atteindre un facteur de Purcell de l'ordre de 100 tout en s'assurant que la contribution du mode plasmonique est majoritaire. Afin de conserver un grand facteur de Purcell, on souhaite garder un bon confinement vertical du mode plasmonique. L'épaisseur d doit pour cela rester fixée et il est alors nécessaire de se tourner vers l'infrarouge pour espérer obtenir une antenne patch performante avec de l'or.

On a vu cependant que cela implique de diminuer l'indice effectif du mode. On risque alors de perdre en confinement latéral. En réalité, si l'équation (3.21) donne de bons ordres de grandeur et la tendance d'évolution de la longueur de propagation, la validité de l'équation (3.20) fait défaut lorsque $|\epsilon'_m| \rightarrow +\infty$. En reprenant l'équation (3.17) dans l'approximation $\left|\frac{u_d d}{2}\right| < 1$, on résout une équation de degré 4 permettant de déduire une bien meilleure approximation de l'indice effectif :

$$k_{spp} = k_0 \sqrt{\epsilon_d + \frac{\alpha^2}{2} \left(1 + \sqrt{1 + \frac{4(\epsilon_d - \epsilon_m)}{\alpha^2}}\right)} \quad (3.22)$$

où $\alpha = k_{spp}^{stat}/k_0$. Dans la limite quand $k_0d \rightarrow 0$, On retrouve $k_{spp} \rightarrow k_{spp}^{stat}$. Toutefois, lorsque $|\epsilon'_m| \rightarrow +\infty$, alors $k_{spp}^{stat} \rightarrow 0$ et l'équation (3.22) permet d'approcher l'indice effectif par la formule :

$$n_{eff} \simeq \sqrt{\epsilon_d} \sqrt{1 - \frac{2}{\sqrt{|\epsilon'_m|}k_0d}}. \quad (3.23)$$

Contrairement à l'équation (3.20), l'équation (3.23) montre que l'indice effectif du mode varie lentement avec des variations de $|\epsilon'_m|$ et qu'il présente un minimum égal à l'indice de la couche diélectrique, ce qui garantit un bon confinement latéral.

La figure (3.2) donne les valeurs de l'indice effectif et de la longueur de propagation du SR-SPP en fonction de la longueur d'onde, et compare les différentes approximations évoquées précédemment. On voit qu'en passant d'une longueur d'onde $\lambda = 0.63\mu\text{m}$ à $\lambda = 1.55\mu\text{m}$, on augmente d'un facteur ~ 3.5 la longueur de propagation tandis que l'indice effectif subit une baisse de seulement 20%.

A titre indicatif, la figure (3.3) donne l'évolution de l'indice effectif et de la partie imaginaire du vecteur d'onde du SR-SPP en fonction de l'épaisseur de silice. On retrouve que l'indice

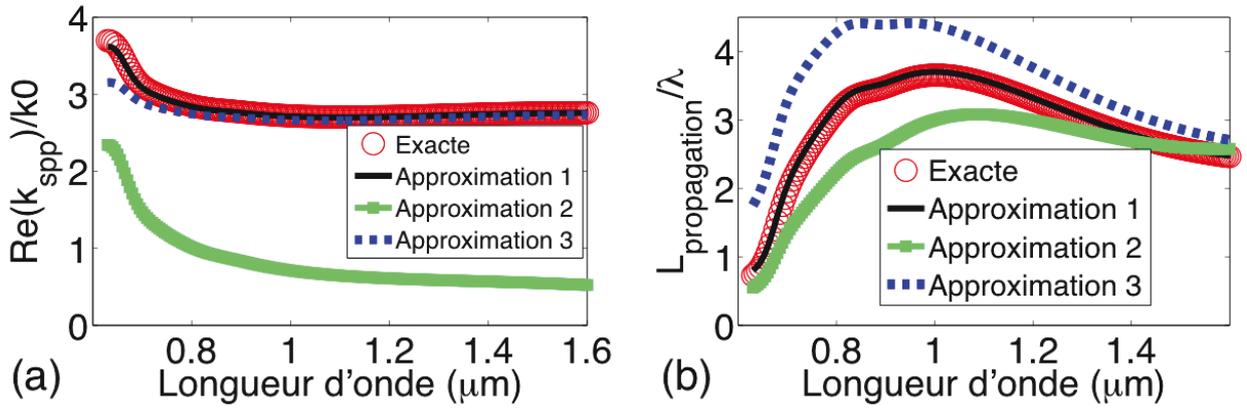


FIGURE 3.2 – Comparaison entre un calcul exact et les approximations évoquées dans la partie (3.2.1) pour un MIM {Or-Silice-Or} d'épaisseur $d=30\text{nm}$. (Approximation 1 = équation (3.22), approximation 2 = équation (3.19) et approximation 3 = équation (3.23)). (a) Evolution de l'indice effectif du SR-SPP en fonction de la longueur d'onde. (b) Evolution de la longueur de propagation du SR-SPP en fonction de la longueur d'onde.

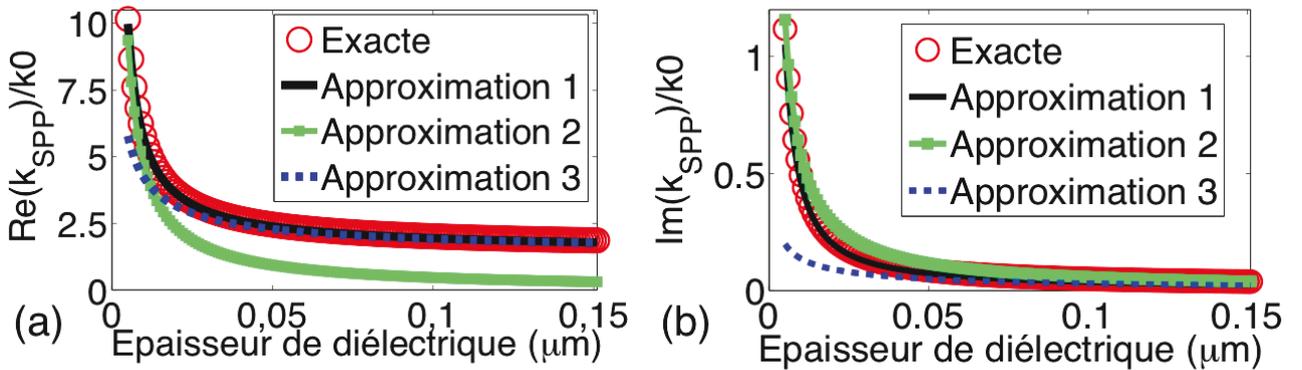


FIGURE 3.3 – Comparaison entre un calcul exact et les approximations évoquées dans la partie (3.2.1) pour un MIM {Or-Silice-Or} à la longueur d'onde $\lambda = 630\text{nm}$. (Approximation 1 = équation (3.22), approximation 2 = équation (3.19) et approximation 3 = équation (3.23)). (a) Evolution de l'indice effectif du SR-SPP en fonction de l'épaisseur de silice. (b) Evolution de la partie imaginaire du vecteur d'onde du SR-SPP en fonction de l'épaisseur de silice.

effectif décroît lorsqu'on augmente l'épaisseur de silice, et que la longueur de propagation ($L_{prop} = 1/\text{Im}(k_{spp})$) suit une tendance inverse.

En réduisant l'un des miroirs métalliques à un film, la relation de dispersion devient plus complexe, et il est difficile de trouver une forme analytique simple désignant chaque mode, analogue aux équations (3.16) et (3.17). Plutôt que d'écrire les équations donnant la relation de dispersion complète, tentons de deviner la tendance d'évolution des caractéristiques du SR-SPP en fonction de l'épaisseur du film métallique à partir des résultats précédents. Pour cela, on considère une structure MIM symétrique comprenant un film métallique entre deux demi-espaces infinis diélectriques. La relation de dispersion de ce système est donnée par une équation similaire à l'équation (3.14) :

$$1 - (r_{dm})^2 \exp(-2u_m e_m) = 0 \quad (3.24)$$

où e_m est l'épaisseur du film métallique. Les similitudes entre les équations (3.14) et (3.24) et les résultats discutés précédemment permettent de conclure que lorsque l'épaisseur du film e_m devient plus petite que la profondeur de peau δ_m du champ du mode dans le métal (i) la longueur de propagation du SR-SPP diminue (ii) l'indice effectif du mode augmente. On peut s'attendre à observer les mêmes tendances d'évolution lorsqu'on réduit l'épaisseur e_m du film d'or de la structure MIM complète. Pour une simple interface diélectrique-métal, l'épaisseur de peau dans le métal s'écrit :

$$\delta_m = \frac{1}{\text{Re}(u_m)} = \frac{\lambda}{2\pi \text{Im}\left(\frac{\epsilon_m}{\sqrt{\epsilon_m + \epsilon_d}}\right)} \approx \frac{\lambda_p}{2\pi}. \quad (3.25)$$

L'équation (3.25) montre que δ_m dépend peu de la longueur d'onde et pour l'or $\delta_m \sim 25\text{nm}$. Ainsi, pour une épaisseur du film métallique supérieure à $e_m > \delta_m \sim 25\text{nm}$, on s'attend à ce que la longueur de propagation du SR-SPP soit maximale. La figure (3.4) présente les résultats d'un calcul exact des propriétés du mode. Cette figure montre que pour une épaisseur $e_m \gtrsim 25\text{nm}$, la longueur de propagation et l'indice effectif du SR-SPP varient peu, et que la longueur de propagation est augmentée de $\sim 33\%$ pour un film d'épaisseur passant de $e_m = 20\text{nm}$ à $e_m = 40\text{nm}$.

Finalement, pour minimiser les pertes par propagation du mode plasmonique de l'antenne patch, tout en gardant un facteur de Purcell élevé, il faut :

- garder une épaisseur de 30nm de silice,
- augmenter l'épaisseur du disque d'or d'un facteur ~ 2 ($e_m \sim 40\text{nm}$),
- passer du visible à l'infrarouge. On choisira pour cela la longueur d'onde des télécommunications $\lambda = 1.55\mu\text{m}$.

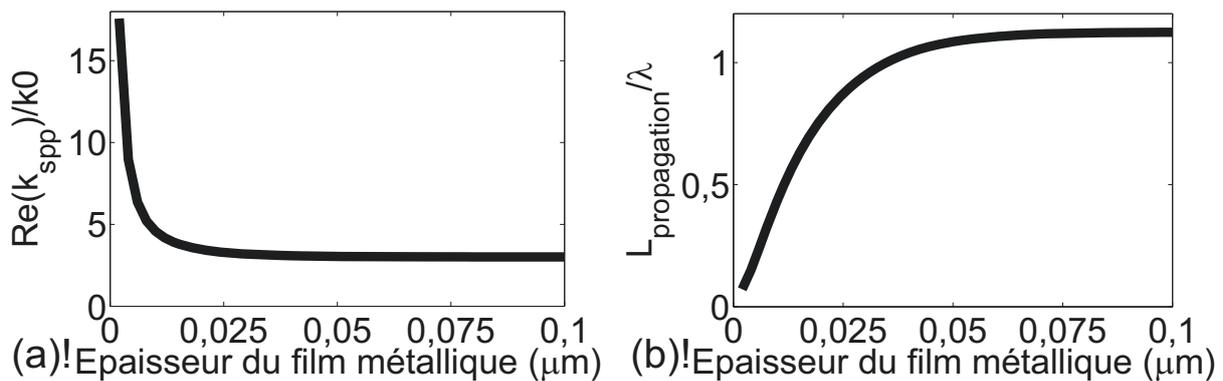


FIGURE 3.4 – Pour une structure MIM d'épaisseur de silice $d=30\text{nm}$, avec un film métallique sous immersion d'huile d'indice de réfraction égale à celui de la silice $n_{\text{huile}} = 1.45$ (i.e. pour un système {Silice-Or-Silice-Or}). Les calculs exacts sont effectués à $\lambda = 630\text{nm}$. (a) Evolution de l'indice effectif du SR-SPP en fonction de l'épaisseur du film métallique. (b) Evolution de la longueur de propagation du SR-SPP normalisé à la longueur d'onde, en fonction de l'épaisseur du film métallique.

La figure (3.5) résume les performances d'une telle antenne patch placée dans l'air et compare les rendements radiatifs de l'antenne dans le visible et l'infrarouge.

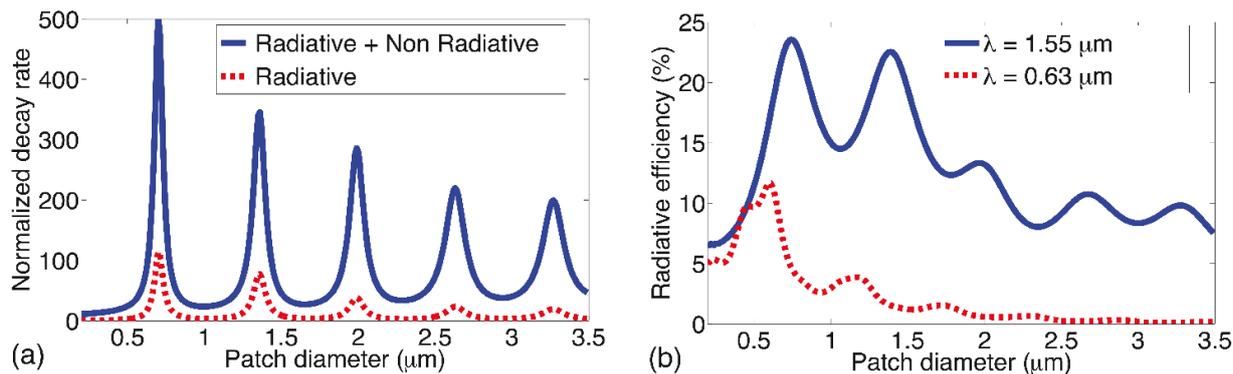


FIGURE 3.5 – Résultats numériques pour une antenne patch comprenant une couche de 30nm de silice et un disque d'or 38nm d'épaisseur. Le dipôle possède un rendement quantique unité, il est centré et orienté perpendiculairement au patch et il est placé au milieu de la couche de silice. (a) Evolution du taux de désexcitation d'un dipôle couplé avec une antenne patch, normalisé par le taux de désexcitation d'un dipôle dans de la silice massive. Les résultats sont calculés à une longueur d'onde d'émission $\lambda = 1.55\mu\text{m}$. (b) Rendement radiatif d'un dipôle couplé à une antenne patch pour une longueur d'onde d'émission $\lambda = 1.55\mu\text{m}$ (en bleu solide) et $\lambda = 0.63\mu\text{m}$ (en rouge pointillé).

Alors qu'à $\lambda = 630\text{nm}$, l'antenne patch composée d'un disque d'or de 20nm d'épaisseur rayonne au mieux avec une efficacité de 5%, avec un disque de 38nm d'épaisseur son rendement radiatif maximum est doublé. Si de plus on change la longueur d'onde d'émission en passant à $\lambda = 1.55\mu\text{m}$, le rendement radiatif peut atteindre 25%, y compris pour un diamètre d'antenne $D = 1.5\mu\text{m}$, correspondant au diamètre moyen des antennes étudiées expérimentalement au chapitre précédent. Ces performances radiatives s'accompagnent d'un facteur de Purcell de plusieurs centaines. On peut tirer trois conclusions :

- la longueur de propagation du mode est suffisamment grande pour que celui-ci puisse être dissipé par rayonnement,
- la densité de courant du mode s'étendant sur une épaisseur de l'ordre de deux fois l'épaisseur de peau δ_m dans le métal, augmenter l'épaisseur du disque tout en restant inférieure à cet ordre de grandeur a pour effet d'augmenter le volume rayonnant V_{ant} . Puisque les pertes ohmiques croissent avec ce volume $P_{abs} \propto V_{ant}$ et que les pertes radiatives croissent avec le carré du volume $P_{ray} \propto V_{ant}^2$, il est possible d'augmenter le rendement radiatif.
- il est envisageable de fabriquer une antenne possédant de telles performances avec la technique de lithographie optique détaillée au chapitre précédent, avec des sources émettant à $\lambda = 1.55\mu\text{m}$. On pourrait par exemple utiliser des quantum dots d'InAsP, des quantum dots dans des nanofils d'InP (Borgström *et al.* 2005) ou encore des nanotubes de carbone (Högele *et al.* 2008).

Dans la partie suivante, nous allons voir qu'il est possible d'augmenter davantage le rendement radiatif de l'antenne.

3.2.2 Augmenter les pertes radiatives

Dans cette partie, on souhaite connaître le rendement maximum que l'on peut atteindre avec une antenne patch couplée à un dipôle émettant à $\lambda = 630\text{nm}$. On fixe l'épaisseur de silice à $d = 30\text{nm}$, et on cherche la configuration des paramètres géométriques qui maximise à la fois le rendement et le facteur de Purcell. Afin de pouvoir collecter le maximum du flux rayonné, on considère une antenne patch immergée sous huile. A noter que sous immersion d'huile, le rendement radiatif est meilleur que dans l'air.

La figure (3.6) donne les propriétés de rayonnement d'une antenne patch dont on fait varier le diamètre et la hauteur du disque d'or.

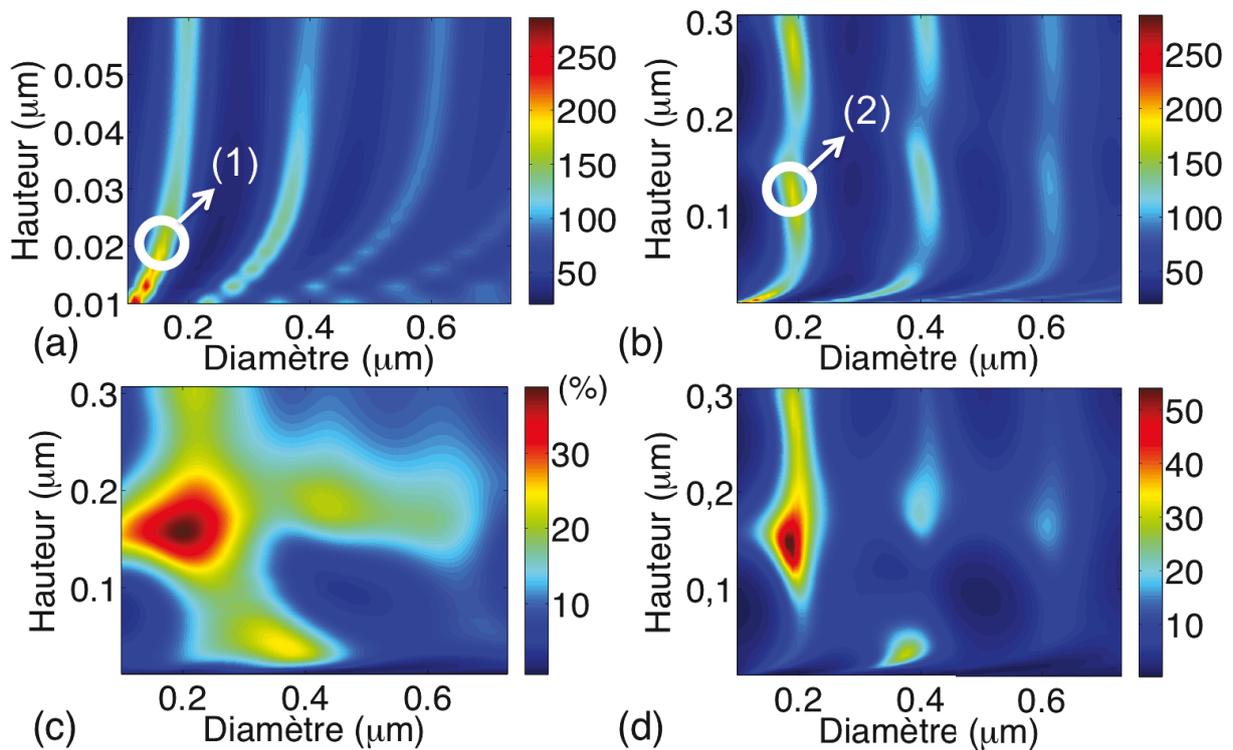


FIGURE 3.6 – Calculs numériques des propriétés de rayonnement d'une antenne patch immergée dans de l'huile ($n_{\text{huile}} = n_{\text{SiO}_2} = 1.45$), comprenant une couche de 30nm de silice. Les calculs sont réalisés à une longueur d'onde d'émission $\lambda = 630\text{nm}$. Le dipôle possède un rendement quantique unité, il est centré et orienté perpendiculairement au patch et il est placé au milieu de la couche de silice. (a) taux de désexcitation d'un dipôle couplé avec une antenne patch, normalisé par le taux de désexcitation d'un dipôle dans de la silice massive, en fonction de la hauteur et du diamètre du disque d'or. L'antenne (1) discutée dans le manuscrit est indiquée en blanc. (b) Mêmes calculs que précédemment mais pour de plus grandes hauteurs du disque d'or. L'antenne (2) discutée dans le manuscrit est indiquée en blanc. (c) Rendement radiatif du dipôle couplé à l'antenne patch en fonction de la hauteur et du diamètre du disque d'or. (d) Fraction radiative du facteur de Purcell, en fonction de la hauteur et du diamètre du disque d'or.

Les figures (3.6)(a-b) montrent d'une part que le facteur de Purcell est maximum pour une faible hauteur du disque et pour un diamètre résonant. Cela concorde avec les résultats

de la partie (3.2.1) donnant un indice effectif plus grand du SR-SPP pour une plus faible hauteur de disque, et donc un champ latéralement plus confiné.

En outre, la figure (3.6)(b) montre que des résonances du facteur de Purcell apparaissent pour des hauteurs suffisamment grandes. Cela indique que le mode plasmonique de l'antenne se propage dans tout le volume du cylindre. Le mode va donc avoir une longueur de propagation sur ces deux degrés de liberté.

La figure (3.6)(c) montre qu'un maximum global du rendement radiatif $\eta_{ant} \sim 40\%$ est atteint pour un diamètre $D_{MAX} \sim 200\text{nm}$ et une hauteur de disque $H_{MAX} \sim 140\text{nm}$. Cette hauteur de disque étant bien supérieure à l'épaisseur de peau $\delta_m \sim 25\text{nm}$ du SR-SPP dans le métal, la partie précédente a permis de montrer que la longueur de propagation radiale du mode est maximisée. L'antenne peut alors rayonner si le diamètre de l'antenne est inférieur à cette longueur de propagation. Maintenant pour comprendre pourquoi cette configuration rayonne le mieux, nous allons comparer les propriétés de l'antenne patch pour deux configurations : l'antenne patch (1), qui possède un diamètre $D_1 = 163\text{nm}$ et une hauteur du disque $H_1 = 20\text{nm}$, et l'antenne patch (2), qui possède un diamètre légèrement plus grand $D_2 = 185\text{nm}$ et une hauteur de disque $H_2 = 140\text{nm}$. Ces deux configurations correspondent au plus petit diamètre résonant, pour une hauteur fixée, permettant d'atteindre des facteurs de Purcell équivalents $F_P \sim 180$ par rapport à un dipôle placé dans de la silice massive.

On a vu pour l'antenne (1) (voir chapitre 2 et partie précédente) que les pertes par propagation du mode plasmonique dominaient l'ensemble des pertes du mode, ce qui explique le faible rendement radiatif de l'antenne $\eta_1 \sim 10\%$ (voir figure (3.6)(c)). La figure (3.6)(d) montre que l'antenne (2) correspond au maximum global de la puissance rayonnée par l'antenne, avec un rendement de l'ordre de $\eta_2 \sim 30\%$.

Les figures (3.7) (a-b) donnent la cartographie du champ du mode pour les deux configurations d'antenne.

La composante E_z du champ électrique étant largement prépondérante, seule cette quantité est cartographiée. Dans le gap de silice, on observe une amplitude et une distribution spatiale du champ similaires, ce qui concorde avec le fait qu'un dipôle placé au centre va voir la même exaltation du taux de désexcitation dans les deux situations.

Les figures (3.7) (c-d) donnent la cartographie de la densité de courant pour les deux antennes. La partie réelle de la densité de courant étant largement prépondérante, seule cette quantité est cartographiée. On note que pour les deux antennes, la densité de courant s'étend quasiment sur le diamètre $D \sim \lambda/2n_{SiO_2}$. Toutefois, pour l'antenne (2), la densité de courant est distribuée sur un volume plus grand que pour l'antenne (1). En effet, la densité de courant s'étend sur une hauteur $H_1 \sim \lambda/8n_{SiO_2}$ pour l'antenne (1) contre $H_2 \sim \lambda/4n_{SiO_2}$ pour l'antenne (2). A la différence d'un mode d'une structure planaire, le mode de l'antenne (2) se propage dans tout le volume du cylindre, sur une hauteur 5 fois supérieure à l'épaisseur de peau δ_m dans le métal. En considérant le cylindre métallique et son image dans le miroir, on comprend que l'antenne (2) forme une antenne filaire "demi-onde". D'une part, la densité de courant parcourant tout le volume de l'antenne (2), celle-ci possède un volume rayonnant plus grand que l'antenne (1). D'autre part, l'antenne (2) représente la plus petite antenne filaire résonante. Une antenne résonante plus haute que $\sim \lambda/4n_{SiO_2}$ impliquerait (i) une augmentation des pertes par propagation longitudinale du mode (ii) l'apparition d'interférences destructives en champ lointain, qui réduisent le rendement de l'antenne (iii) un mode possédant un minimum du champ à la position du dipôle, résultant en un

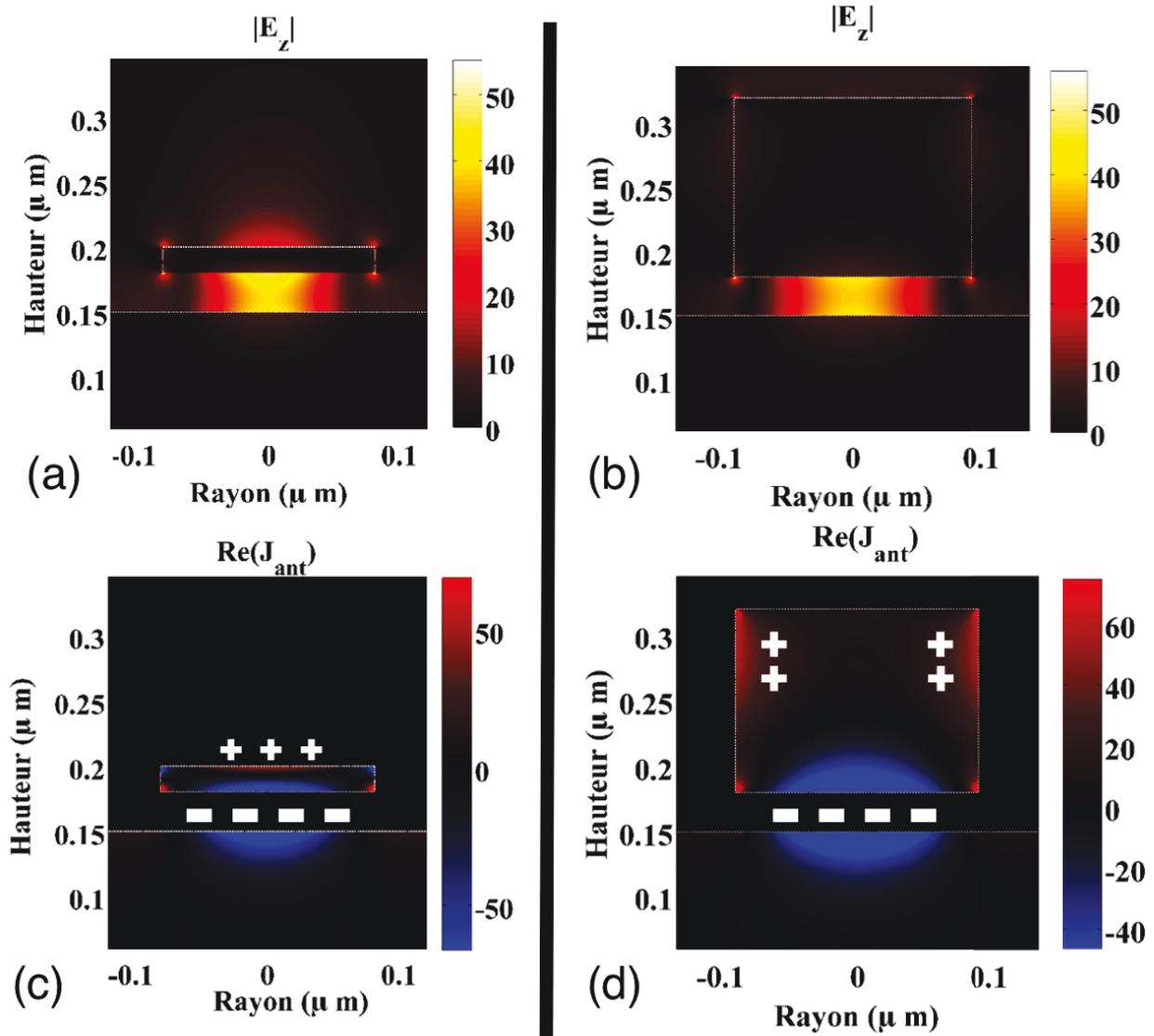


FIGURE 3.7 – Coupe transverse du module de la composante E_z du champ du mode quasi-normal ((a) et (b)) et de la partie réelle de la densité de courant $J_{ant} = -i\omega(\epsilon_m - \epsilon_{SiO_2})E_z$ ((c) et (d)) pour l'antenne (1) ((a) et (c), de longueur d'onde de résonance $\lambda_1 = 632 + 79inm$) et pour l'antenne (2) ((b) et (d), de longueur d'onde de résonance $\lambda_2 = 632 + 49inm$). En (c) et (d), la polarité de la densité de courant est spatialement accentuée par les marqueurs blancs.

couplage inefficace du dipôle au mode d'antenne. On en déduit que l'antenne filaire demi-onde maximise le rendement radiatif.

On conclut de cette analyse que la configuration des paramètres géométriques optimale du point de vue du rendement radiatif correspond à une antenne filaire demi-onde, relativement aussi haute que large pour maximiser le volume rayonnant de l'antenne tout en minimisant les pertes par propagation. A $\lambda = 630nm$ sous immersion d'huile, le rendement radiatif maximum est de l'ordre de $\eta_{ant} \sim 40\%$. Toutefois, la méthode de lithographie optique présentée dans le chapitre précédent ne permet pas de fabriquer des antennes aussi petites. On peut encore une fois contourner cette difficulté en choisissant des sources émettant à $\lambda = 1550nm$.

Dans les différentes analyses de ce chapitre, seul l'or a été considéré comme métal constituant l'antenne. Dans la partie suivante, on discute les performances de l'antenne patch en utilisant un autre métal.

3.2.3 Changer de matériaux ?

Plutôt que de se tourner vers l'infrarouge, on pourrait fabriquer des antennes en utilisant un autre métal, par exemple de l'argent. D'après les valeurs de la référence (Palik 1985) à $\lambda = 630\text{nm}$, l'argent possède un facteur de qualité quasi-statique de Drude :

$$Q_{Drude,Ag}^S \sim 1.8Q_{Drude,Au}^S, \quad (3.26)$$

et sa permittivité diélectrique vaut :

$$\epsilon'_{Ag} \sim 1.8\epsilon'_{Au}. \quad (3.27)$$

On en déduit que la longueur de propagation du SR-SPP est de l'ordre de :

$$L_{prop,Ag} \sim 3L_{prop,Au} \sim 2\lambda, \quad (3.28)$$

pour un indice effectif du mode équivalent au cas de l'or. Ainsi, pour les mêmes épaisseurs considérées au chapitre précédent ($d = 30\text{nm}$ de silice et $e_m = 20\text{nm}$ de métal), une antenne en argent permet d'atteindre des facteurs de Purcell aussi élevés qu'avec une antenne en or, mais l'antenne patch peut désormais rayonner beaucoup plus, des calculs donnant un rendement maximum de $\eta_{ant,MAX} \sim 45\%$ pour une antenne patch de diamètre $D \sim \lambda/2$ sous immersion d'huile. En outre, pour des diamètres d'antenne correspondant aux valeurs expérimentales, on trouve un rendement de l'ordre de 10%. On pourrait alors augmenter le rendement de l'antenne d'un facteur 10, en changeant simplement la nature du métal utilisé lors de la fabrication.

Toutefois en pratique, contrairement à l'or, l'argent peut facilement s'oxyder, ce qui modifie sa permittivité diélectrique, et notamment les performances de l'antenne. L'utilisation d'argent requiert une extrême précaution lors des différentes étapes de fabrication. C'est l'une des raisons pour laquelle les échantillons étudiés au chapitre 2 étaient en or.

En conclusion de la partie (3.2), pour des contraintes de fabrication, il est préférable de fabriquer une antenne patch dipolaire en or, possédant un disque d'épaisseur de l'ordre de deux fois l'épaisseur de peau δ_m pour maximiser à la fois la longueur de propagation radiale du mode et le volume rayonnant. En outre, en couplant l'antenne à une source émettant à $\lambda = 1550\text{nm}$, on augmente davantage la longueur de propagation du mode ce qui permet de diminuer les pertes par propagation pour une géométrie donnée, et donc d'augmenter les pertes radiatives.

Dans l'idéal, on souhaite pouvoir collecter les photons uniques sans avoir besoin de mettre l'échantillon sous immersion d'huile, afin (i) de pouvoir réutiliser la source sans risquer de polluer l'échantillon (ii) d'éviter l'utilisation d'un objectif de microscope onéreux. Or, l'antenne patch qui rayonne le mieux possède un diamètre $D < \lambda$ ce qui ne permet pas de collecter tous les photons avec un objectif de microscope usuel. Il faut alors recourir à de nouvelles stratégies pour augmenter la directivité de l'antenne, et pourquoi pas améliorer davantage son rendement. Dans les parties suivantes, nous allons étudier deux de ces stratégies appliquées à une petite antenne patch.

3.3 L'antenne patch-bull's eye

Lorsqu'on souhaite rendre une antenne directive, l'une des premières idées qui vient à l'esprit est d'utiliser un réseau d'antennes. C'est par exemple le cas des antennes Yagi-Uda, qui utilise l'interférence d'une antenne source avec plusieurs petites antennes filaires (des directeurs) et avec une antenne filaire plus grosse (le réflecteur) pour diriger efficacement le flux dans un angle solide donné.

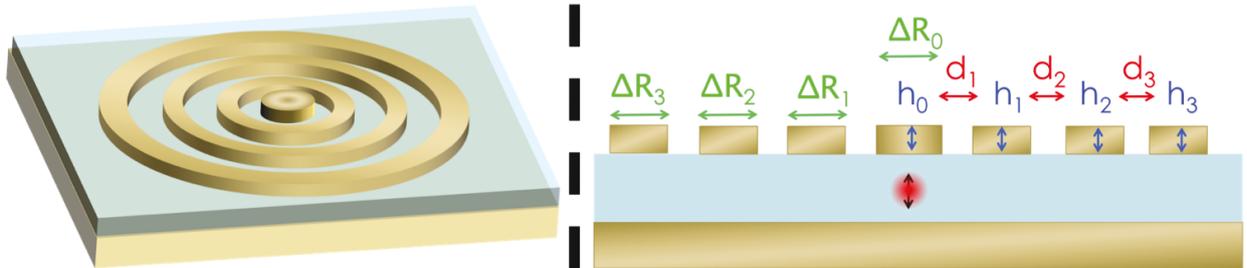


FIGURE 3.8 – *A gauche : Schéma 3D d'une antenne patch-bull's eye. 3 anneaux métalliques concentriques sont ajoutés à une antenne patch. A droite : la définition des paramètres géométriques de l'antenne patch-bull's eye.*

Pour garder la symétrie de révolution et avoir une antenne la plus compacte possible longitudinalement, l'antenne bull's eye, constituée d'un réseau d'anneaux métalliques concentriques, a été proposée et fabriquées pour diverses applications, allant de la transmission résonante (Mahboub *et al.* 2010; Bhardwaj et Kumar 2012) à la photodétection (Ren *et al.* 2011; Ren *et al.* 2014) en passant par la spectroscopie miniature et le multiplexage spatial et spectral (Aouani *et al.* 2011; Arabi *et al.* 2013). On s'est alors intéressé aux performances qu'on peut atteindre en ajoutant à une petite antenne patch, un réseau d'anneaux métalliques concentriques : le disque central joue alors le rôle d'antenne source, le miroir joue le rôle de réflecteur et les anneaux sont les directeurs, en poursuivant l'analogie avec l'antenne Yagi-Uda. C'est l'antenne patch-bull's eye (voir figure (3.8)).

On a choisi d'ajouter 3 anneaux métalliques, car une étude préliminaire (non-développée dans cette partie) a montré qu'un nombre supérieur d'anneaux concentriques ne fournit pas un gain substantiel aux performances de l'antenne. Ces performances ont été évaluées par l'efficacité totale de l'antenne η_{TOT} , qu'on définit dans ce chapitre par le produit :

$$\eta_{TOT} = \eta_{rad} \times \eta_{coll} \quad (3.29)$$

où η_{rad} est le rendement radiatif de l'antenne et η_{coll} est l'efficacité de collection dans une ouverture numérique $O.N. = 0.85$. On a choisi cette dernière valeur car elle correspond à une ouverture numérique standard d'un objectif de microscope commercial. On optimise ensuite la structure dans un espace à 11 dimensions (diamètres, hauteurs et positions du disque central et des anneaux) pour maximiser l'efficacité totale de l'antenne pour un facteur de Purcell maximal. Pour opérer cette optimisation globale, j'ai utilisé un algorithme génétique parallélisé (Holland 1975) que j'ai développé lors de ma thèse. Etant donné le grand nombre de paramètres à optimiser, il est nécessaire d'opérer un grand nombre de calculs pour converger vers un optimum global. Ainsi, la seule contrainte que j'ai imposé était une hauteur maximum d'or de $H_{max} = 120\text{nm}$ afin d'effectuer les calculs dans un temps

raisonnable tout en sachant que pour une simple antenne patch dipolaire, une augmentation de la hauteur ne présente pas une amélioration significative du rendement radiatif. Pour une longueur d'onde d'émission $\lambda = 1550\text{nm}$, j'ai trouvé une structure de paramètres ($h_0 = 116.5\text{nm}$, $\Delta R_0 = 694.6\text{nm}$, $d_1 = 665.0\text{nm}$, $h_1 = 118.5\text{nm}$, $\Delta R_1 = 538.4\text{nm}$, $d_2 = 379.9\text{nm}$, $h_2 = 66.8\text{nm}$, $\Delta R_2 = 507.4\text{nm}$, $d_3 = 974.6\text{nm}$, $h_3 = 115.3\text{nm}$, $\Delta R_3 = 281.0\text{nm}$). L'efficacité totale de la structure atteint $\eta_{TOT} \sim 40\%$ avec un facteur de Purcell $F_p \sim 300$ par rapport à la silice massive. Cette efficacité totale se décompose par le produit d'un rendement radiatif de l'antenne $\eta_{rad} = 42\%$ et d'une efficacité de collection $\eta_{coll} = 96\%$ dans une ouverture numérique $O.N. = 0.85$.

Pour analyser les propriétés de cette antenne, regardons d'abord les propriétés de l'antenne patch seule associée, définie par les paramètres ($h_0 = 116.5\text{nm}$ et $\Delta R_0 = 694.6\text{nm}$). La figure (3.9)(a) donne le facteur de Purcell en fonction de la longueur d'onde d'émission. On voit que l'antenne est résonnante à $\lambda = 1550\text{nm}$ avec un facteur de Purcell maximum $F_p \sim 300$. La figure (3.9)(b) montre que le rendement radiatif de l'antenne est de l'ordre de $\eta_{rad} \sim 33\%$ et que l'efficacité totale atteint $\eta_{TOT} \sim 15\%$ dont on déduit une efficacité de collection $\eta_{coll} \sim 45\%$.

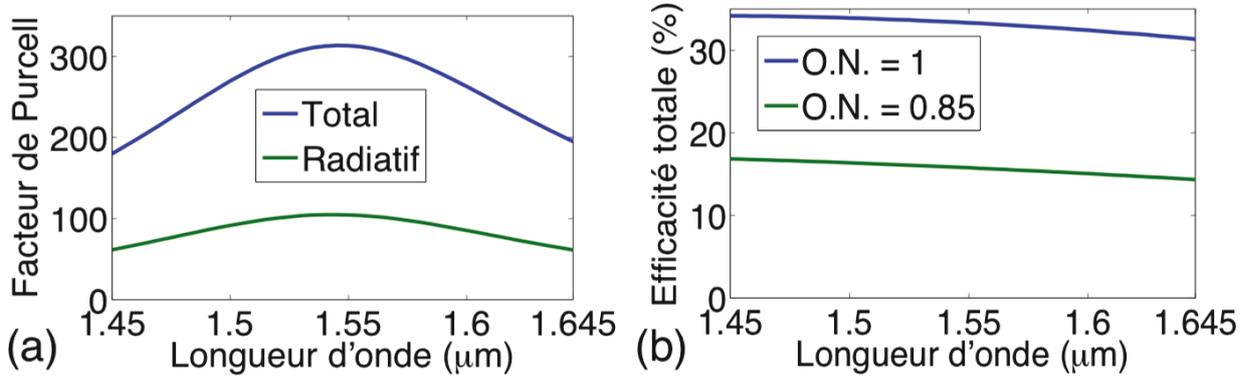


FIGURE 3.9 – Résultats numériques pour une antenne patch comprenant une couche de 30nm de silice et un disque d'or 116.5nm d'épaisseur et de 694.6nm de diamètre. Le dipôle possède un rendement quantique unité, il est centré et orienté perpendiculairement au patch et il est placé au milieu de la couche de silice. (a) Evolution spectrale du taux de désexcitation d'un dipôle couplé avec une antenne patch, normalisé par le taux de désexcitation d'un dipôle dans de la silice massive. La fraction rayonnée est indiquée en vert. (b) Evolution spectrale de l'efficacité totale d'un dipôle couplé à une antenne patch dans une ouverture numérique $O.N. = 1$ (i.e. tout le flux est collecté) et une ouverture numérique $O.N. = 0.85$.

Ainsi, le facteur de Purcell et le rendement radiatif de l'antenne patch-bull's eye à la longueur d'onde $\lambda = 1550\text{nm}$ sont des propriétés essentiellement pilotées par l'antenne patch seule. C'est principalement l'efficacité de collection qui est amélioré par la structure diffractive concentrique.

Etudions maintenant un peu plus en détail les propriétés de la structure bull's eye optimisée. La figure (3.10)(a) montre que cette fois-ci la longueur d'onde de résonance est légèrement décalée vers $\lambda_{res} \sim 1580\text{nm}$ tandis que la figure (3.10)(b) montre bien un optimum d'efficacité totale à $\lambda = 1550\text{nm}$. En outre, on voit qu'en réduisant l'ouverture numérique de l'objectif de collection à la valeur standard de $O.N. = 0.50$, on peut obtenir une efficacité totale $\eta_{TOT} > 35\%$, correspondant à une efficacité de collection $\eta_{coll} \sim 85\%$, ce qui atteste

de la grande directivité de l'antenne. Il est intéressant de noter que ces propriétés sont large-bande, malgré la présence d'un réseau. Cette observation est en accord avec le faible facteur de qualité des modes plasmoniques.

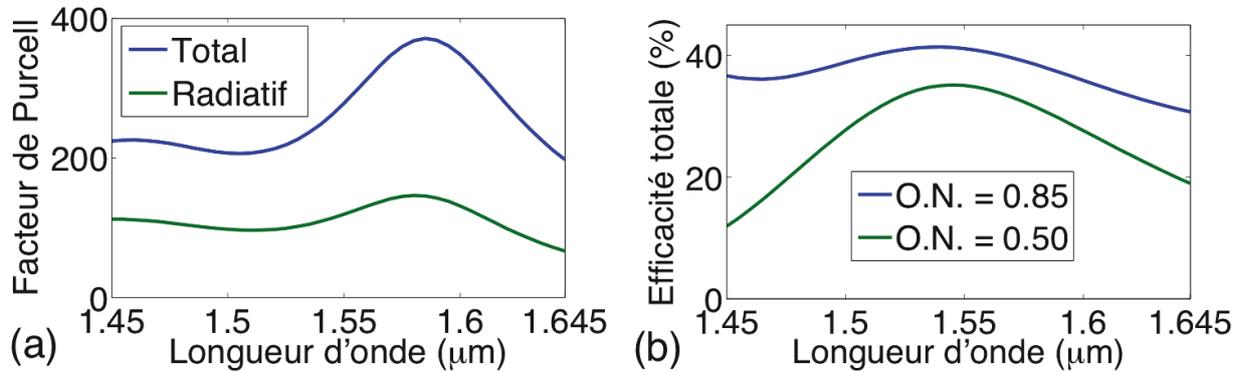


FIGURE 3.10 – Résultats numériques pour l'antenne patch-bull's eye optimisée et définie dans le manuscrit. Le dipôle possède un rendement quantique unité, il est centré et orienté perpendiculairement au patch et il est placé au milieu de la couche de silice. (a) Evolution spectrale du taux de désexcitation d'un dipôle couplé avec une antenne patch, normalisé par le taux de désexcitation d'un dipôle dans de la silice massive. La fraction rayonnée est indiquée en vert. (b) Evolution spectrale de l'efficacité totale d'un dipôle couplé à une antenne patch dans une ouverture numérique $O.N. = 0.85$ (en bleu) et dans une ouverture numérique $O.N. = 0.50$ (en vert).

La figure (3.11) montre la robustesse des propriétés de rayonnement de l'antenne avec un excentrement du dipôle source. Pour un excentrement de 125nm, le facteur de Purcell est divisé par 2 tandis que l'efficacité radiative reste constante. En effet, même pour un tel excentrement, le dipôle se couple au même mode que lorsqu'il est centré. Par symétrie axiale, le couplage à ce mode est maximale sur l'axe. Le coefficient de couplage au mode s'amointrit donc avec un excentrement, ce qui diminue le facteur de Purcell. Toutefois, si le dipôle se désexcite essentiellement dans le mode d'antenne, le rendement radiatif ne dépend pas du coefficient de couplage mais de la distribution spatiale du mode. De même, la directivité de l'émission dépend essentiellement du rayonnement du mode. Ainsi, l'efficacité totale de l'antenne est robuste avec un excentrement du dipôle.

Pour conclure, on a vu qu'en rajoutant un réseau d'anneaux d'or concentriques à une antenne patch dipolaire, on est capable de traiter le problème de la directivité, tout en gardant un très grand facteur de Purcell et en améliorant de $\sim 30\%$ le rendement radiatif. Le faible facteur de qualité des modes plasmoniques assure une bande passante $\Delta\lambda \gtrsim 200\text{nm}$. Les calculs ayant été effectués pour une épaisseur d'or maximum de 120nm, il est possible qu'une optimisation avec une épaisseur maximum supérieure mènent à de meilleures performances. Toutefois, si on considère que le rendement radiatif est déterminé essentiellement par l'antenne patch seule, alors on peut estimer que l'optimum global ne mène pas à une antenne beaucoup plus performante que celle étudiée dans cette partie. Etant donné le cahier des charges des sources de photons uniques, nous allons maintenant investiguer une autre stratégie, permettant d'une part d'augmenter le rendement radiatif de l'antenne, et d'autre part de collecter la majorité des photons émis.

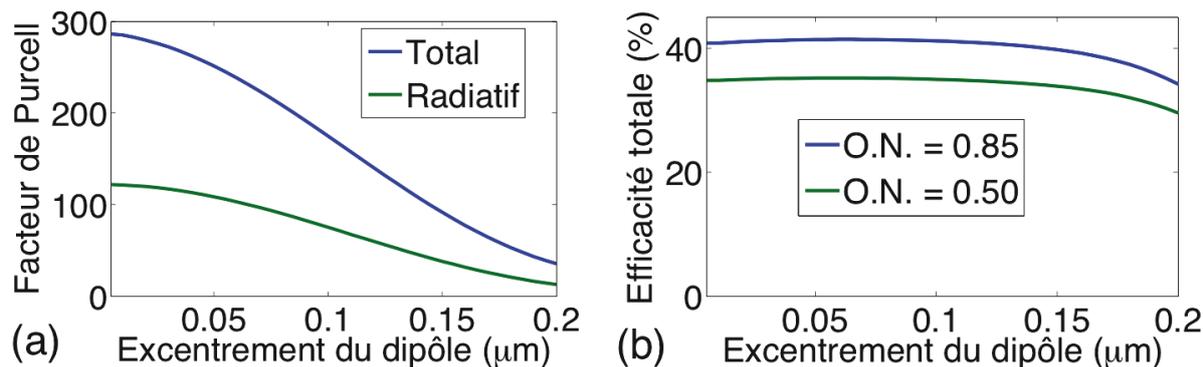


FIGURE 3.11 – Résultats numériques pour l'antenne patch-bull's eye optimisée et définie dans le manuscrit. Le dipôle possède un rendement quantique unité, il est orienté perpendiculairement au patch et il est placé au milieu de la couche de silice. (a) Evolution du facteur de Purcell d'un dipôle excentré, normalisé par le taux de désexcitation d'un dipôle dans de la silice massive. La fraction rayonnée est indiquée en vert. (b) Evolution de l'efficacité totale d'un dipôle couplé à une antenne patch dans une ouverture numérique $O.N. = 0.85$ (en bleu) et dans une ouverture numérique $O.N. = 0.50$ (en vert).

3.4 L'antenne patch métallo-diélectrique

Une autre approche permettant d'augmenter le rendement radiatif se base sur le concept de structure métallo-diélectrique. Des études théoriques précédentes ont présenté des antennes possédant à la fois un haut rendement radiatif et permettant d'atteindre un grand facteur de Purcell en combinant un résonateur métallique avec une antenne diélectrique (Devilez *et al.* 2010; Chen *et al.* 2012). Une antenne hybride métallo-diélectrique a également été utilisée expérimentalement pour combiner un grand facteur de Purcell et un rétrécissement spectral pour une source de photons émettant sur une grande bande passante (de Leon *et al.* 2012). Dans cette partie, nous suivons cette route en introduisant une antenne patch métallo-diélectrique. En partie (3.4.1), on montrera comment une antenne MIM immergée dans un milieu diélectrique de fort indice optique peut rayonner. Ensuite en partie (3.4.2), on montrera par l'appui de calculs numériques le potentiel d'une antenne patch hybride, alliant les bonnes propriétés des antennes métalliques et des résonateurs diélectriques. Ces travaux ont été publiés dans la référence ((b) Bigourdan *et al.* 2014).

3.4.1 La stratégie diélectrique pour un patch infini

Il est bien connu qu'en plaçant un dipôle à proximité d'un milieu de fort indice de réfraction, on induit deux effets : la puissance émise augmente et la majorité de la puissance est rayonnée dans ce milieu de fort indice (Lukosz et Kunz 1977). Cette propriété a été utilisée pour augmenter la collection de lumière pour la détection sensible de fluorophores (Choumane *et al.* 2005) ainsi que pour accroître le rendement radiatif de dispositifs émetteurs de lumière (Hryciw *et al.* 2009; (a) Jun *et al.* 2009). Cette idée a été revisitée et optimisée récemment pour obtenir une efficacité de collection proche de l'unité (Lee *et al.* 2011; Chen *et al.* 2011). Dans cette partie, nous illustrons cette idée en considérant un dipôle source placé au milieu d'une couche de 30nm de silice, déposée sur un miroir d'or et couverte d'un

milieu semi-infini de fort indice, comme le montre la figure (3.12)(a). Comme discuté au chapitre précédent, la couche de silice joue le rôle d'espaceur permettant de minimiser la contribution du quenching. Les figures (3.12)(b-c) donnent l'évolution du facteur de Purcell et du rendement radiatif de cette antenne en fonction de l'indice de réfraction du superstrat.

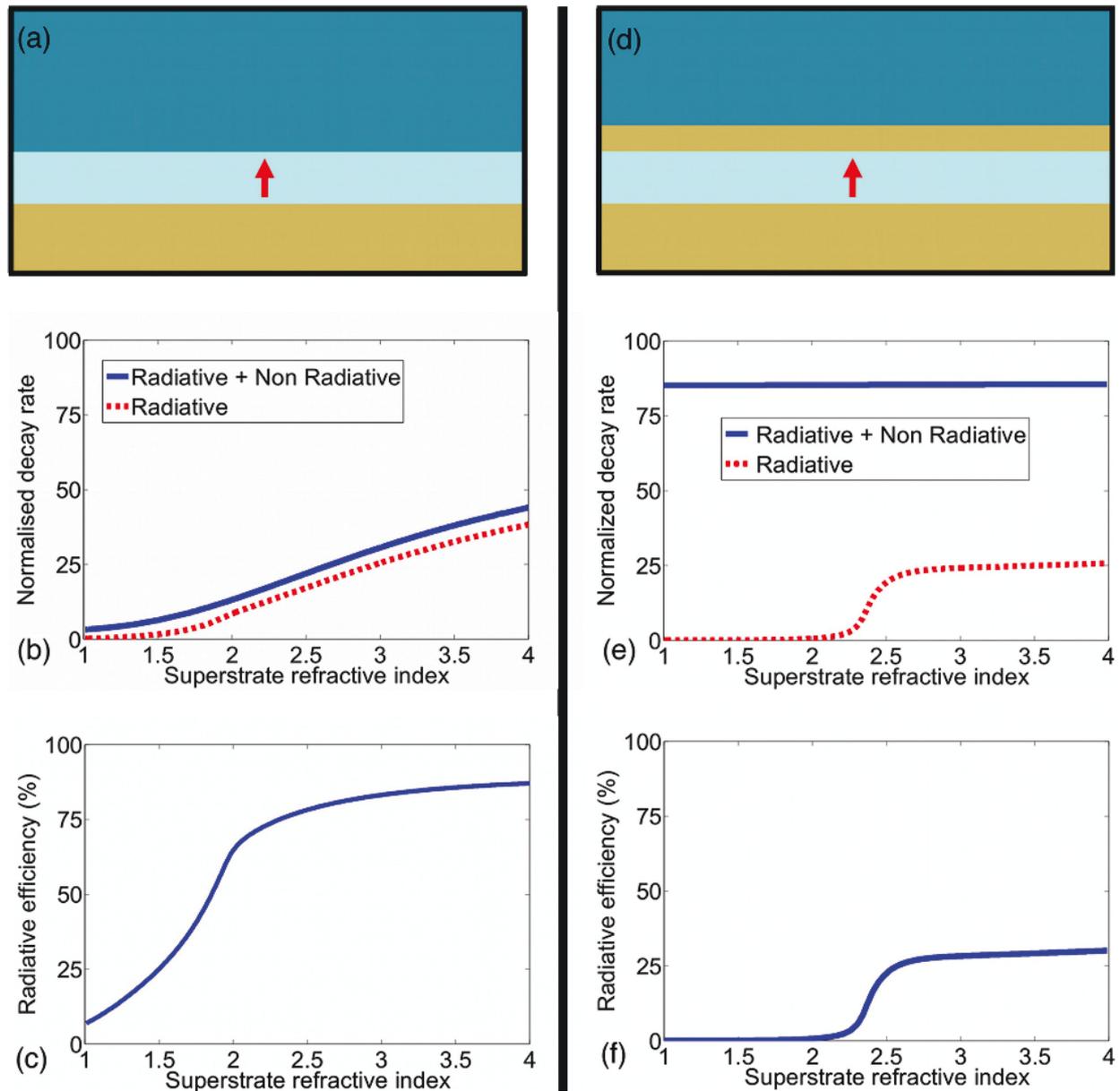


FIGURE 3.12 – *Effet d'un fort indice de réfraction. Un dipôle émettant à $\lambda = 1550\text{nm}$, orienté suivant la normal au système stratifié est placé au milieu d'une couche de 30nm de silice. (a) La couche de silice est couverte d'un demi-espace diélectrique. (d) La couche de silice est couverte d'une épaisseur d'un film d'or de 38nm d'épaisseur puis d'un demi-espace diélectrique (b),(e) Le taux de désexcitation d'un dipôle dans le système stratifié normalisé par le taux de désexcitation dans de la silice massive. (c),(f) Rendement radiatif du dipôle dans le système stratifié.*

Afin de se coupler au mode plasmonique de l'antenne, le dipôle a été orienté perpendicu-

lairement au système stratifié. Pour effectuer les calculs, on a utilisé un développement en onde plane permettant de déduire une forme explicite du taux de désexcitation total et de sa fraction radiative (Jun *et al.* 2008; Chance *et al.* 1975; Sipe 1987). On voit sur les figures (3.12)(b-c) qu'à la fois le facteur de Purcell et le rendement radiatif sont accrus lors d'une augmentation de l'indice de réfraction du superstrat. Ces figures montrent que ce phénomène apparaît lorsque l'indice de réfraction du superstrat devient supérieur à celui de la silice ($n_{SiO_2} = 1.45$). Ici, l'augmentation de rayonnement est un effet de champ proche. Elle est due au couplage entre des modes évanescents du champ dipolaire avec des modes propagatifs du superstrat. Plus l'indice de réfraction de ce dernier est élevé, plus des modes évanescent de la source peuvent se coupler avec des modes propagatifs du superstrat par effet tunnel optique (Lukosz et Kunz 1977; Novotny 1997). Ce phénomène n'intervient que lorsque l'indice du superstrat est supérieur à celui du milieu dans lequel se trouve la source, i.e. l'indice de la silice. Par conséquent, la puissance rayonnée est accrue avec une augmentation de l'indice de réfraction du superstrat. Ainsi, le taux de désexcitation de la source et le rendement radiatif de l'antenne suivent cette tendance, comme l'indiquent les figures (3.12)(b-c).

Considérons maintenant un MIM constitué d'un substrat d'or, d'une couche de silice de 30nm d'épaisseur, d'un film d'or de 38nm d'épaisseur couvert d'un milieu diélectrique de fort indice, comme illustré sur la figure (3.12)(d). L'épaisseur du film d'or permet de minimiser les pertes par propagation du SR-SPP et correspond à l'épaisseur du disque métallique dans l'antenne patch hybride de la partie suivante. On présente ici une étude similaire à la précédente : l'évolution du facteur de Purcell et du rendement radiatif en fonction de l'indice de réfraction du milieu supérieur.

Le comportement observé en figures (3.12)(e-f) est une augmentation abrupte du rayonnement pour indice du superstrat $n > 2.43$. Cette valeur correspond à l'indice effectif du SR-SPP ($k_{SPP}/k_0 = 2.43 + 0.0539i$) se propageant dans le MIM. Pour un superstrat d'indice supérieur à 2.43, le mode guidé devient un mode de fuite (en anglais *leaky*), de sorte que, malgré l'invariance par translation dans le plan de la structure stratifiée, une partie du décroissance du mode devient radiative. Ce résultat illustre le fait que le processus de rayonnement peut être vu comme un processus à deux étapes : (i) le dipôle se couple au SR-SPP, (ii) le SR-SPP se couple à des modes propagatifs du superstrat. Enfin, on note que la largeur de la transition est donnée par la partie imaginaire du vecteur d'onde normalisé du mode k_{SPP}/k_0 . Lorsqu'on compare les deux situations décrites en figure (3.12), on voit clairement que le confinement du champ produit par la structure MIM est nécessaire pour atteindre de grandes valeurs du taux de désexcitation, tandis qu'un fort indice du superstrat est utile pour extraire le rayonnement.

Cependant, cette structure planaire introduit une nouvelle difficulté puisqu'on a besoin d'extraire tous les photons émis d'un milieu de fort indice. Il a été montré (Lee *et al.* 2011; Chen *et al.* 2011) que collecter le rayonnement dans ce cas est une tâche difficile étant donné que la lumière se couple à des angles rasants. Ce problème a été contourné (Lee *et al.* 2011; Chen *et al.* 2011) en augmentant la distance entre l'émetteur et l'interface. Dans la partie suivante, on introduit une stratégie différente.

3.4.2 L'antenne patch hybride : le meilleur des deux mondes

D'après les résultats de la partie précédente, on peut déduire qu'une antenne patch placée à proximité d'un milieu de fort indice de réfraction peut radicalement améliorer son rendement radiatif dans le milieu de fort indice. On fait maintenant face au problème d'extraction de la lumière émise dans ce milieu. Pour contourner cette difficulté, on utilise un petit cylindre diélectrique en tant que résonateur diélectrique (RD, (Mongia et Bhartia 1994)).

En adaptant les paramètres géométriques d'un résonateur diélectrique de fort indice de réfraction ajouté sur une antenne patch (voir la figure (3.13)), le couplage entre des modes plasmoniques du patch et des modes du RD peut être optimisé.

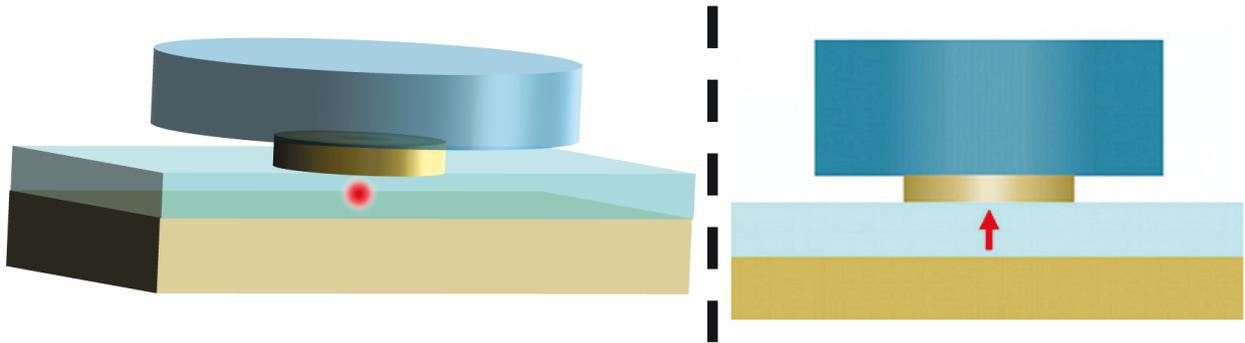


FIGURE 3.13 – Schéma de l'antenne patch hybride : Un résonateur diélectrique de fort indice de réfraction est ajouté sur une antenne patch métallique.

Notons que le RD n'absorbe pas mais rayonne la lumière. D'après l'analyse donnée en partie (3.1), si les longueurs caractéristiques du RD sont de l'ordre d'un multiple de la demi-longueur d'onde d'émission, les modes quasinormaux du RD qui sont excités peuvent se coupler efficacement à des photons se propageant dans l'espace libre. En conséquence, le système couplé Patch Métallique - Résonateur Dielectrique (PM-RD) peut avoir un meilleur rendement radiatif que le patch métallique seul, tout en conservant un grand facteur de Purcell grâce au confinement du mode dans le MIM. Concernant la directivité, le rayonnement est principalement extrait du RD, de sorte que le diamètre du RD est le paramètre pertinent. On peut alors profiter au mieux des propriétés de rayonnement d'un patch métallique dipolaire et utiliser un RD pour améliorer le rendement radiatif, tout en collectant la majorité des photons-uniques émis via un objectif de microscope.

Le concept d'antenne RD est un standard dans le domaine des micro-ondes. Des antennes RD cylindriques fonctionnant dans le domaine optique ont récemment été étudiées théoriquement (Malheiros-Silveira *et al.* 2013) et expérimentalement (Zou *et al.* 2013). Pour les simulations numériques de notre PM-RD, on a choisi de travailler avec un RD d'indice de réfraction 2.58, car c'est la valeur correspondant au SiC amorphe à $\lambda = 1550\text{nm}$ (Palik 1985). L'épaisseur de la couche de silice est encore de 30nm. Reste alors quatre paramètres inconnus : les épaisseurs et les diamètres à la fois du patch métallique et du RD. En utilisant l'algorithme génétique que j'avais conçu (Holland 1975), ces paramètres ont été optimisés afin d'obtenir la meilleure efficacité totale pour le plus grand facteur de Purcell possible. on rappelle que l'efficacité totale est définie dans ce chapitre par le produit du rendement radiatif de l'antenne avec l'efficacité de collection d'un objectif de microscope d'ouverture numérique $O.N. = 0.85$.

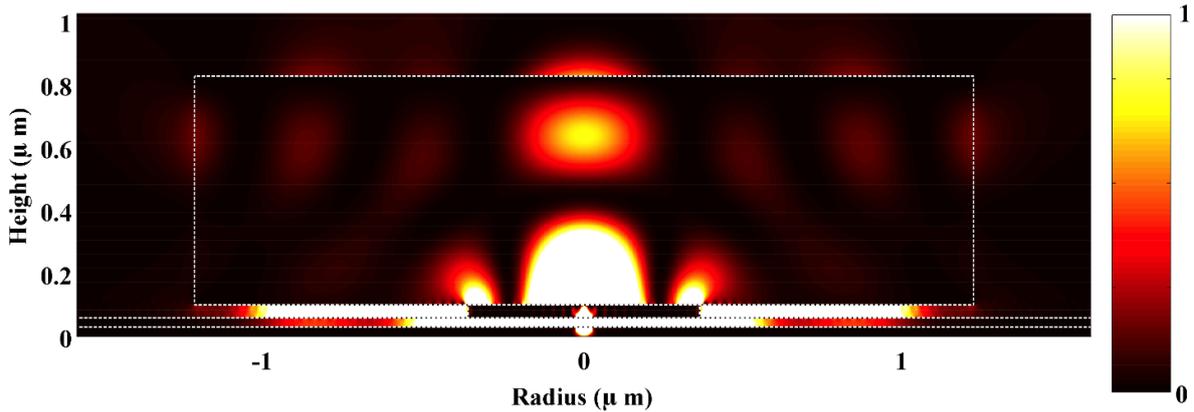


FIGURE 3.14 – Coupe de l'intensité du champ électrique total calculé dans le champ proche de l'antenne patch hybride optimisée, pour un dipôle orienté verticalement. Les calculs ont été effectués à $\lambda = 1550\text{nm}$. Les lignes blanches en pointillé illustre chaque partie de l'antenne. Etant donné la divergence du champ au niveau du dipôle, l'intensité a été saturée et normalisée par le maximum obtenu.

Le résultat de l'optimisation est donné en figure (3.14) où on a tracé l'intensité (le module carré du champ électrique) dans la structure. Le PM-RD optimisé est constitué d'un disque métallique de 38nm d'épaisseur et de 764nm de diamètre, ainsi que d'un disque diélectrique de 738nm d'épaisseur et de 2447nm de diamètre. Pour un dipôle-source centré et polarisé perpendiculairement au patch, les résultats numériques donnent un facteur de Purcell de $F_p = 150$ avec une efficacité totale $\eta_{TOT} = 74\%$. Cette efficacité totale se compose d'une efficacité de collection $\eta_{coll} = 99\%$ et d'un rendement radiatif $\eta_{rad} = 75\%$. Ces performances sont à comparer au cas d'un dipôle-source centré et orienté dans le plan du patch, pour lequel les résultats des simulations numériques donne un facteur de Purcell de 2.5 avec une efficacité totale de 0.1%. Ces derniers résultats garantissent que les propriétés de rayonnement d'un dipôle orienté aléatoirement sont pilotées par la composante verticale de ce dipôle.

La clé permettant de comprendre le mécanisme physique de l'augmentation du rendement radiatif réside dans la distribution du champ de la figure (3.14). On observe clairement qu'un mode hybride de la structure métallo-diélectrique est excité. Ce mode hybride est composé : (i) d'un mode plasmonique excité de façon résonante dans le patch métallique, (ii) d'un mode résonant du cylindre diélectrique. Puisque le volume occupé par le mode hybride est bien plus grand dans le diélectrique, une grande partie de l'énergie du mode hybride est située dans une région sans perte, de sorte que la désexcitation non-radiative est réduite. De surcroît, cette grande extension spatiale du RD donne lieu à une augmentation des pertes radiatives : le RD est un meilleur radiateur que l'antenne patch. Ces deux facteurs sont responsables de l'augmentation de rendement radiatif de l'antenne. Le caractère résonant de l'excitation du RD est un facteur important pour améliorer le rayonnement. Afin de comparer le rôle du fort indice du diélectrique et le rôle de la résonance du RD, j'ai également optimisé l'efficacité totale avec un cylindre de silice plutôt qu'un RD de SiC (étude non-rapportée ici). Il est intéressant de noter qu'il est possible d'atteindre une efficacité totale de 60% sans utiliser un diélectrique de fort indice.

La sensibilité des performances de l'antenne aux paramètres géométriques est un problème

important lors de la fabrication. Comme le montre la figure (3.15), l'exaltation du taux de désexcitation et l'efficacité totale de l'antenne PM-RD optimisée sont relativement peu sensible à un excentrement du dipôle source.

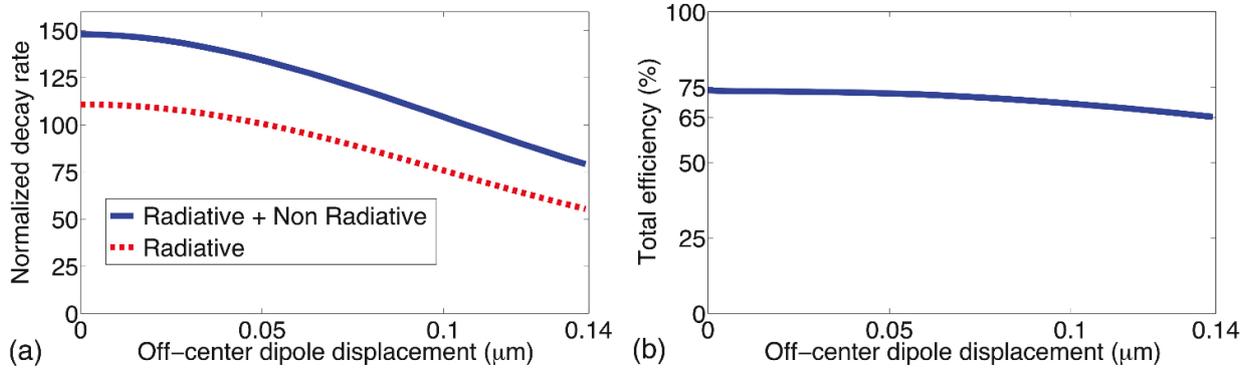


FIGURE 3.15 – Résultats numériques pour l'antenne patch hybride optimisée, en fonction d'un excentrement latéral du dipôle orienté verticalement. Les calculs sont effectués à $\lambda = 1550\text{nm}$. (a) taux de désexcitation d'un dipôle couplé à l'antenne PM-RD normalisé par le taux de désexcitation dans la silice massive. (b) Efficacité totale du dipôle couplé à l'antenne PM-RD pour une collection dans une ouverture numérique $O.N. = 0.85$.

La raison à cela est la même que celle discutée pour l'antenne bull's eye en partie (3.3). Notons que la technique de lithographie optique décrite au chapitre précédent possède une précision de 25nm sur la position du dipôle par rapport au centre du disque d'or. En pratique, aucune dégradation n'est attendue d'une erreur d'alignement. J'ai également vérifié que les performances de l'antenne ne sont pas fortement dépendantes des hauteurs et diamètres du patch métallique et du cylindre diélectrique. En effet, un écart de $\pm 5\%$ sur les valeurs des hauteurs et diamètres mène à une efficacité totale variant de 64% à 74%. Ce n'est pas surprenant puisqu'on ne s'attend pas à ce que des résonateurs à faible facteur de qualité soient très sensibles aux valeurs de leurs dimensions. En outre, j'ai vérifié que le gap d'air entre le RD et la couche de silice n'est pas crucial. Pour cela, j'ai optimisé l'efficacité totale pour un disque métallique inscrit dans le RD. Les résultats numériques montrent qu'il est possible d'obtenir une efficacité totale supérieure à 65% avec un facteur de Purcell de l'ordre de 100. Ainsi, même en l'absence du gap d'air, l'antenne hybride montre de bonnes performances.

Les figures (3.16)(a-b) montrent le diagramme de rayonnement de l'antenne PM-RD optimisée pour un dipôle centré et pour un dipôle excentré latéralement de 140nm. Les résultats numériques indiquent que 99% des photons émis peuvent être collectés par un objectif de microscope d'ouverture numérique $O.N. = 0.85$.

Enfin, une caractéristique essentielle des antennes plasmoniques est leur grande bande passante. On a vu que l'antenne diélectrique réduit les pertes ohmiques mais augmente les pertes par rayonnement. Les résultats numériques (voir les figures (3.17)(a-b)) montrent que la structure optimisée préserve cette grande bande passante. Des facteurs de Purcell allant de 75 à 160 et des efficacités totales allant de 60% à 74% peuvent être obtenus sur une largeur spectrale de 100nm.

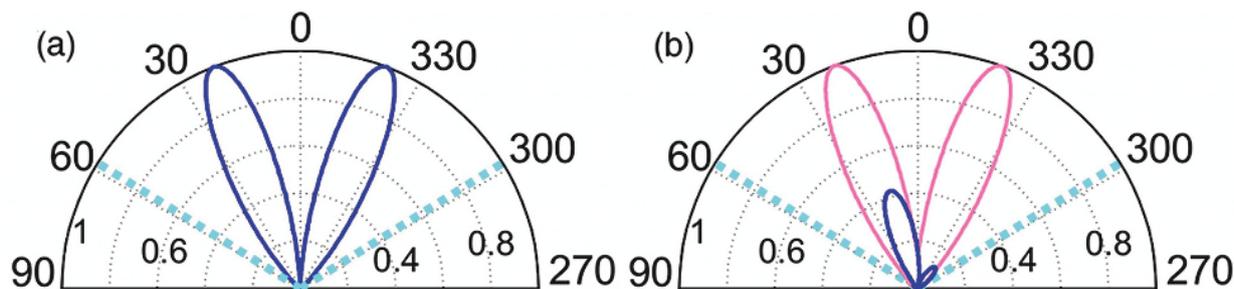


FIGURE 3.16 – Les calculs sont effectués à $\lambda = 1550\text{nm}$. Les traits en pointillés bleu clair correspondent à l'angle de collection pour un objectif d'ouverture numérique $O.N. = 0.85$. (a) (En bleu foncé) Diagramme de rayonnement de l'antenne PM-RD optimisé, calculé pour un dipôle centré et normalisé par sa valeur maximale. (b) Diagramme de rayonnement du PM-RD optimisé, calculé pour un dipôle excentré latéralement de 140nm , dans le plan d'excentrement (en bleu foncé) et dans le plan perpendiculaire à l'excentrement (en rose). Les valeurs sont normalisées par le maximum du diagramme de rayonnement 3D.

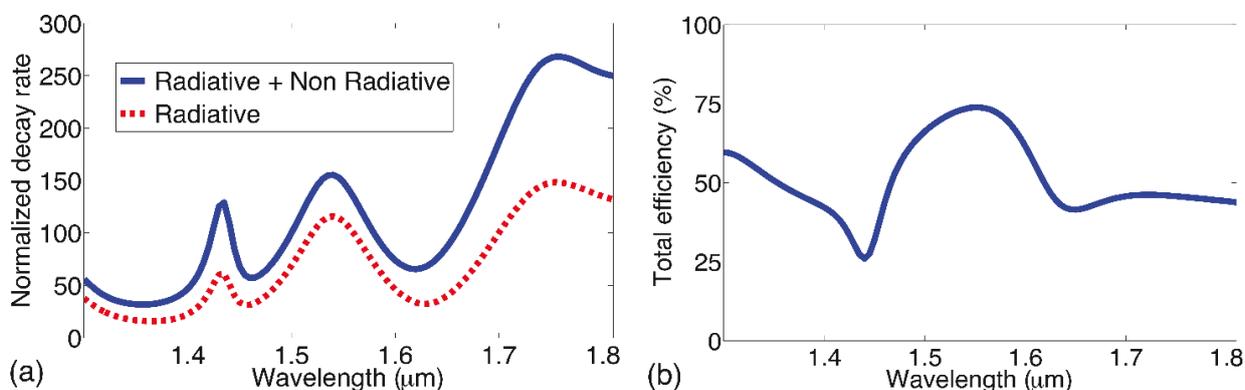


FIGURE 3.17 – Résultats numériques pour l'antenne patch hybride optimisée, en fonction de la longueur d'onde d'émission. (a) taux de désexcitation d'un dipôle couplé à l'antenne, normalisé par le taux de désexcitation dans de la silice massive. (b) Efficacité totale d'un dipôle couplé à l'antenne pour une collection dans une ouverture numérique $O.N. = 0.85$.

3.5 Conclusion

En résumé de ce chapitre, on a vu que pour améliorer les performances de l'antenne patch, il faut d'abord minimiser les pertes par propagation du mode plasmonique. Pour conserver un grand facteur de Purcell, on a conservé une épaisseur de 30nm de silice, garantissant un grand confinement tout en minimisant la contribution du quenching. Ensuite, on a vu qu'il fallait doubler l'épaisseur du disque d'or et travailler avec des sources émettant dans l'infrarouge, qui sont déjà disponibles (Borgström *et al.* 2005; Högele *et al.* 2008). Ensuite, il faut augmenter les pertes radiatives. On a vu que cela mène à choisir un petit patch dipolaire permettant d'atteindre un rendement radiatif de l'ordre de $\eta_{rad} \sim 30\%$. À $\lambda = 1550\text{nm}$, il paraît raisonnable de penser qu'une telle structure soit fabricable un jour, notamment en utilisant la technique de lithographie optique. On a vu également qu'une antenne filaire demi-onde possède un meilleur rendement ($\eta_{rad} \sim 40\%$ à $\lambda = 630\text{nm}$, sous immersion d'huile). Toutefois, en réduisant le diamètre de l'antenne, on réduit considérablement sa directivité. On a alors proposé deux stratégies pour contourner cette difficulté. D'abord

l'antenne patch-bull's eye, inspirée de l'antenne Yagi-Uda. Cette antenne permet d'atteindre une très grande directivité avec une efficacité de collection $\eta_{coll} \sim 96\%$ et des travaux précédents ont démontré leur fabricabilité. Toutefois, ces antennes ne permettent pas une augmentation significative du rendement radiatif $\eta_{rad} \sim 40\%$. Pour améliorer davantage ces performances, on a introduit une antenne patch métallo-diélectrique. Ce concept combine le grand facteur de Purcell dû au confinement du champ dans la structure patch métallique, avec une efficacité de collection de $\eta_{coll} \sim 99\%$ et un rendement radiatif de $\eta_{rad} \sim 75\%$, grâce au résonateur diélectrique. Une caractéristique importante de cette architecture est qu'elle se base sur des étapes technologique relativement simples pour la fabrication. Elle est notamment compatible avec la technique de lithographie optique in-situ qui a déjà été utilisée pour la fabrication des antennes patch. On anticipe des facteurs de Purcell de l'ordre de 100 et une efficacité totale excédant les 70%. Cette valeur de l'efficacité totale est comparable à l'état de l'art des solutions qui ont été testé expérimentalement, notamment les nano-fils diélectriques (Claudon *et al.* 2010), à la différence que l'antenne patch hybride possède un grand facteur de Purcell. Ce type d'antenne hybride peut être utile pour de nombreuses applications, et semble être une solution prometteuse pour satisfaire le cahier des charges des sources de photons-uniques.

Chapitre 4

Une antenne plasmonique pour une source électrique efficace de rayonnement

Table des matières

3.1	Expression générale du rendement radiatif d'une antenne . . .	88
3.2	L'antenne patch: du visible vers le proche IR	91
3.2.1	Augmenter la longueur de propagation du mode plasmonique . .	92
3.2.2	Augmenter les pertes radiatives	98
3.2.3	Changer de matériaux?	101
3.3	L'antenne patch-bull's eye	102
3.4	L'antenne patch métallo-diélectrique	105
3.4.1	La stratégie diélectrique pour un patch infini	105
3.4.2	L'antenne patch hybride: le meilleur des deux mondes	108
3.5	Conclusion	111

4.1 Introduction

On sait depuis plusieurs décennies qu'il est possible d'émettre de la lumière visible par effet tunnel inélastique d'un électron (Lambe et McCarthy 1976; Laks et Mills 1979; Kirtley *et al.* 1983). Dans ce processus, on impose une tension continue à une jonction composée de deux matériaux conducteurs séparés par une fine couche d'isolant électrique. Cette différence de potentiel ΔV accélère les électrons d'un conducteur vers la jonction, et pour une couche d'isolant d'une dizaine d'angstroms, un courant électrique continu s'établit par effet tunnel. Cet effet tunnel est inélastique parce que l'énergie d'un électron n'est pas conservée lors du transport d'une électrode vers l'autre. En effet, les fluctuations à hautes fréquences du courant tunnel peuvent rayonner sous forme de photons. Le transfert d'énergie d'un électron vers un photon implique par conservation :

$$\hbar\omega < U_{t_0} = e|\Delta V| \tag{4.1}$$

où e est la charge élémentaire et ω est la pulsation du photon émis. A noter toutefois qu'à température ambiante, les fluctuations de courant dues à l'agitation thermique autorisent des transitions donnant lieu à l'émission de photons d'énergie

$$\hbar\omega \lesssim U_t(T) = e|\Delta V| + k_B T \quad (4.2)$$

où k_B est la constante de Boltzmann et T est la température absolue. Un traitement complet des phénomènes de fluctuations dans une jonction tunnel peut être trouvé dans les références (Rogovin et Scalapino 1974; Blanter et Büttiker 2000). Les études théoriques ont montré que ce processus d'émission attrayant souffre néanmoins d'une efficacité très faible. L'intérêt pour ce domaine a été relancé lorsque l'émission de lumière à la jonction d'une électrode métallique avec la pointe d'un microscope à effet tunnel (STM, pour l'anglais *Scanning Tunneling Microscope*) a été observée avec une efficacité nettement améliorée (Gimzewski *et al.* 1989; Berndt *et al.* 1991; Walmsley *et al.* 2004; Perronet *et al.* 2004). De nombreuses études théoriques ont été consacrées à ce sujet. (Hone *et al.* 1978; Rendell *et al.* 1978; Johansson *et al.* 1990) ont montré que cette amélioration de l'efficacité est due à l'exaltation du champ électrique sous la pointe par l'excitation de modes plasmoniques hautement confinés, et ils ont estimé qu'un photon est émis pour 10^4 à 10^5 électrons tunnel. L'étude de (Persson et Baratoff 1992) montre que lorsqu'une nanostructure métallique est impliquée (i.e. la pointe STM ou l'échantillon étudié), le processus d'émission par effet tunnel inélastique est prépondérant devant le processus d'émission par effet tunnel élastique (dénommé également processus d'émission par "électrons chauds"). La dépendance des propriétés d'émission de lumière en fonction de la taille et de la forme de la pointe ou du substrat ont été étudiées théoriquement (Rendell et Scalapino 1981; Aizpurua *et al.* 2000) et expérimentalement (Berndt et Gimzewski 1993; Uehara *et al.* 1999; Walmsley *et al.* 2004; Perronet *et al.* 2004; Divitt *et al.* 2013). En régime tunnel, on peut montrer en faisant l'approximation BKW que la conductance est exponentiellement décroissante avec l'épaisseur de la jonction. Ainsi, en diminuant cette épaisseur, on favorise le passage du courant continu. On s'attend à ce que la puissance rayonnée augmente en conséquence. Des expériences récentes (Schull *et al.* 2009; Schneider *et al.* 2010; Schneider *et al.* 2012) ont étudié le passage d'une jonction en régime tunnel à un régime de contact (i.e. pour des jonctions inférieures à $\sim 0.1\text{nm}$ d'épaisseur). Notamment, ces travaux ont montré que, même pour un contact monoatomique, l'efficacité de l'émission chute significativement. Une étude théorique (Lü *et al.* 2013) en accord avec ces résultats expérimentaux, montre que le courant moyen évolue linéairement avec la différence de potentiel, et que la conductance G de la jonction est donnée par la formule de Landauer :

$$G = G_0 \sum_i T_i, \quad (4.3)$$

où $G_0 = 2e^2/h$ est le quantum de conductance et où les T_i sont les probabilités de transmission des canaux de transport quantique i . Cette formule permet de déduire une expression de la densité spectrale de puissance (DSP) des fluctuations de courant dans la jonction. A fréquence nulle $\omega = 0$, la DSP de ces fluctuations est maximale et vaut :

$$\overline{\delta I^2} = \frac{4e^3 \Delta V}{h} \sum_i T_i (1 - T_i) = 2e\bar{I} \frac{\sum_i T_i (1 - T_i)}{\sum_i T_i}. \quad (4.4)$$

où \bar{I} est la valeur moyenne du courant. Dans l'équation (4.4), on a négligé la contribution du bruit thermique. Lors d'un contact, les canaux de transport quantique sont totalement

ouverts. La jonction est court-circuitée et les fluctuations deviennent négligeables. Dans le régime tunnel, on a $\sum_i T_i^2 \ll 1$, et on retrouve l'expression de Schottky (Schottky 1918)

$$\overline{\delta I_{Schottky}^2} = 2e\bar{I}. \quad (4.5)$$

Toutefois cela implique que le courant moyen \bar{I} est très faible. L'équation (4.4) donne un maximum de la DSP lorsque les canaux de transport sont ouverts à $T_i = 50\%$, ce qui a été observé expérimentalement (Schneider *et al.* 2010).

De l'ensemble de ces travaux, le processus d'émission de lumière se comprend bien par deux étapes : (i) l'effet tunnel inélastique génère des fluctuations de courant électronique dans la jonction (ii) ces fluctuations sources excitent des modes plasmoniques du gap, qui peuvent ensuite rayonner des photons. L'épaisseur de la jonction doit être suffisamment faible pour qu'un courant tunnel s'établisse, mais elle doit également être suffisamment grande pour rester en régime tunnel.

Récemment, des travaux ont utilisé l'effet tunnel inélastique par STM (Wang *et al.* 2011; Bharadwaj *et al.* 2011), une LED composée d'un nanofil de GaAs (Fan *et al.* 2012), ou encore un transistor à effet de champ composé d'un nanotube de carbone (Rai *et al.* 2013) comme sources électriques novatrices de plasmons de surface. L'excitation électrique des plasmons de surface est un problème important dans le domaine de la plasmonique. En effet, la possibilité de confiner ces champs dans des volumes hautement sub-longueur d'onde est une caractéristique clé pour des puces hybrides optique/électronique (Ozbyay 2006; Wei et Xu 2012). En l'absence de source électrique, ce confinement implique toutefois de les exciter en champ lointain via un faisceau limité par la diffraction. La méthode classique d'excitation de plasmon n'est donc pas adaptée à une intégration sur puce. Dès lors, le développement de plateformes plasmoniques pour manipuler la lumière à des échelles sub-longueur d'onde a été contrarié par cette impossibilité de générer les plasmons de surface sur de petits volumes. Des travaux récents (Babuty *et al.* 2010; Tétienne *et al.* 2010; Costantini *et al.* 2012) ont proposé une source à plasmon basée sur l'intégration d'un laser à cascade quantique associé à de fines bandes métalliques. Toutefois, le laser à cascade quantique émettant dans l'infrarouge moyen, la taille de la source et la longueur d'onde du plasmon émis font plusieurs microns. Une telle source présente un intérêt certain pour nombre d'applications (Law *et al.* 2013) mais limite les capacités de confinement de la plasmonique. La démonstration de l'excitation de plasmons de surface par la pointe d'un STM offre une solution élégante combinant une excitation électrique et un confinement à l'échelle nanométrique.

Cependant, comme dans le cas de l'émission de lumière, l'efficacité de la source est typiquement de l'ordre de un plasmon pour 10^4 électrons. Cela apparaît inévitable dans la mesure où la lumière est émise dans une jonction d'épaisseur typique de l'ordre du nanomètre pour que le régime tunnel s'établisse. Le faible volume de la jonction et les résultats des parties (2.3.2) et (3.1) permettent de conclure que le processus de quenching est très efficace à proximité des métaux, tandis que la puissance rayonnée reste négligeable. Le second inconvénient de l'émission par une pointe STM est son large spectre. C'est une conséquence directe du large spectre des fluctuations de courant en régime tunnel. Ainsi, pour tirer parti de l'effet tunnel inélastique afin de concevoir une source efficace de plasmons de surface, il faut relever deux défis : (i) accroître significativement le processus d'émission de lumière (ii) contrôler le spectre d'émission. Pour résoudre ces problèmes, nous introduisons une nano-antenne. Le premier rôle de l'antenne est d'apporter une contribution significative à la densité d'états

locale à l'emplacement du courant-source afin que l'excitation du mode d'antenne prenne le pas sur les processus non radiatifs. Le second rôle est d'avoir une résistance de rayonnement la plus importante possible.

Notre approche consiste à analyser théoriquement, à l'aide de simulations numériques, le processus d'émission de lumière et de plasmons de surface. Plus spécifiquement, nous étudions d'une part la modification de l'EM-LDOS dans la jonction, et d'autre part le rendement radiatif (en plasmon ou en photon). On utilise une nano-antenne cylindrique schématisée en figure (4.1)(b).

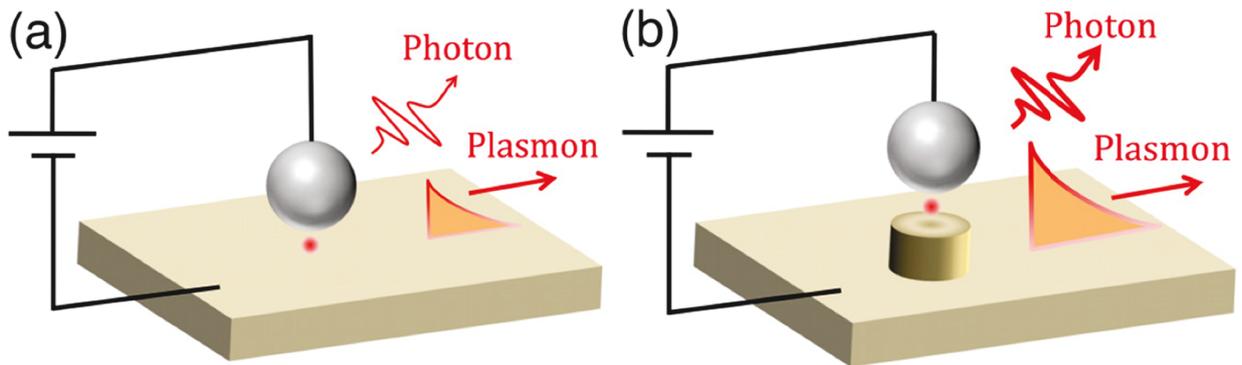


FIGURE 4.1 – *Emission de plasmons de surface et de lumière par un microscope à effet tunnel. a) La pointe est modélisée par une sphère de tungstène de 10nm de rayon, avec un gap de 2nm d'épaisseur au dessus d'un miroir d'or. b) La pointe est positionnée au-dessus d'un nano-cylindre d'or.*

La pointe STM est modélisée par une sphère de tungstène de 10nm de rayon. Le tungstène est souvent employé pour les pointes STM, notamment parce qu'il est possible de fabriquer de façon reproductible des pointes de quelques dizaines de nanomètres de rayon de courbure, par exemple via une gravure électrochimique (Nakamura *et al.* 1999; Wang *et al.* 2011). D'autre part, le tungstène n'est pas un métal plasmonique sur le spectre optique ($\epsilon_W = 5.22 + 19.4i$ à $\lambda = 0.8\mu\text{m}$, (Palik 1985)), la sphère n'est donc pas résonante. Celle-ci contribue alors essentiellement à apporter le confinement du gap ainsi qu'une grande proportion du quenching. Comme énoncé précédemment, il est bien connu que les caractéristiques de la lumière émise dépendent de la structure détaillée du gap (Walmsley *et al.* 2004; Perronet *et al.* 2004; Divitt *et al.* 2013). Dans le but de rendre notre analyse indépendante du type de gap, on compare la lumière émise, sous forme de photons et de plasmons, dans les cas avec et sans antenne en utilisant la même épaisseur de gap. Ces deux situations sont schématisées sur la figure (4.1). Pour l'ensemble des simulations numériques, on fixe le gap tungstène/air/or à une épaisseur de 2nm.

La partie 4.2 explicite le modèle du processus d'émission. Elle introduit également la méthode permettant de calculer la puissance émise dans le mode plasmonique se propageant à l'interface du miroir d'or. La partie 4.3 présente les résultats numériques et la partie 4.4 apporte une analyse détaillée de ces résultats.

4.2 Modélisation

Afin de modéliser le processus d'émission, on suit l'approche introduite par Scalapino (Hone *et al.* 1978). Une description quantique du transport électronique dans la jonction fournit la densité spectrale de puissance des fluctuations de courant dans le gap. Ce résultat est ensuite utilisé comme source d'un problème de rayonnement qui nécessite de prendre en compte l'environnement plasmonique local.

En régime tunnel, de nombreuses expériences (Schull *et al.* 2009; Schneider *et al.* 2010; Schneider *et al.* 2012) ont montré une relation linéaire entre la différence de potentiel et l'intensité du courant tunnel. Le résultat majeur de cette analyse est que la densité spectrale de puissance du courant est proportionnelle à $\overline{\delta I^2} \propto 2e\bar{I} \left(1 - \frac{\hbar\omega}{e\Delta V}\right)$. Pour prendre en compte les fluctuations thermiques dans notre modélisation, on suit l'approche donnée dans la référence (Lambe et Jaklevic 1968) :

$$\overline{\delta I^2} = 2e\bar{I} \frac{\left(1 - \frac{\hbar\omega}{e\Delta V}\right)}{1 - \exp\left\{-\frac{e\Delta V}{k_B T} \left(1 - \frac{\hbar\omega}{e\Delta V}\right)\right\}} \quad (4.6)$$

Cette équation suppose un régime tunnel, de telle sorte que les canaux de transport quantique possèdent une faible transmission $\sum_i T_i^2 \ll 1$. On fixe la différence de potentiel et la température aux valeurs typiques $\Delta V = 2V$ et $T = 300K$, de sorte que $\frac{e\Delta V}{k_B T} \sim 80$. On voit que l'énergie des fluctuations thermiques est relativement faible par rapport à l'énergie des électrons tunnel. On s'attend donc à une légère contribution des fluctuations thermiques.

La seconde étape repose sur le calcul de la lumière émise par ces fluctuations de courant. L'approche standard consiste à remplacer les électrons par un dipôle placé au milieu du gap et orienté perpendiculairement à ce gap. En d'autres termes, cela revient à calculer le tenseur de Green du système émetteur. Cette approche permet de calculer le champ électromagnétique en prenant en compte les modes plasmoniques du gap bien que leur rôle ne soit pas montré explicitement. Des calculs précédents ont traité l'émission de photons en champ lointain. Ici, nous mettons l'accent sur le calcul de la puissance émise par la nanostructure dans le mode plasmonique de l'interface air/or. Il est donc nécessaire de pouvoir séparer la contribution du plasmon du champ total rayonné. Pour cela, on suit une approche similaire à celle développée dans la référence (Lecamp *et al.* 2007).

La calcul de la puissance émise dans le plasmon de surface se résume en deux étapes essentielles. A une fréquence réelle fixée, l'expression analytique du champ du mode plasmonique de surface $\vec{\Phi}_{SPP} = (\vec{E}_{k_{SPP}}, \vec{H}_{k_{SPP}})$ est connue à une constante de normalisation près. Le champ total émis par le dipôle source dans la structure peut se décomposer sur une base de modes cylindriques quasi-normaux, parmi lesquels figure le plasmon de surface. En considérant les résultats du théorème de Lorentz, on définit une application bilinéaire $\langle \vec{\Phi}_1 \otimes \vec{\Phi}_2 \rangle$ entre deux champs $\vec{\Phi}_1$ et $\vec{\Phi}_2$ (voir partie 4.6) à partir d'une intégrale sur une surface fermée S entourant la nanostructure. Un exemple de surface S est donné sur la figure (4.2).

La propriété majeure de cette application bilinéaire est l'orthogonalité entre deux modes cylindriques quasi-normaux différents.

La première étape consiste à calculer, à une fréquence ω fixée, l'amplitude $A_{SPP}(\omega)$ du plasmon de surface excité par le dipôle source dans son environnement, connaissant le

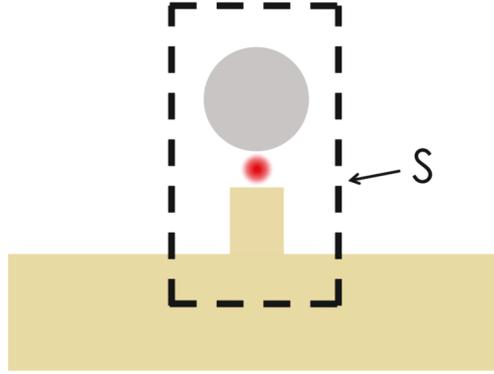


FIGURE 4.2 – Exemple de surface sur laquelle on peut évaluer le produit scalaire.

champ électromagnétique total $\vec{\Phi}_{TOT}$ sur la surface d'intégration S :

$$A_{SPP} = \frac{\langle \vec{\Phi}_{TOT} \otimes \vec{\Phi}_{SPP} \rangle}{\langle \vec{\Phi}_{SPP} \otimes \vec{\Phi}_{SPP} \rangle} \quad (4.7)$$

La valeur de l'amplitude trouvée par l'équation (4.7) est indépendante de la surface d'intégration et de la constante de normalisation du mode. L'étape suivante consiste à estimer la puissance émise dans le plasmon de surface à partir du flux du vecteur de Poynting du mode. Pour un mode possédant des pertes par propagation, i.e. $Im(k_{SPP}) \neq 0$, le flux du vecteur de Poynting du mode dépend de la surface d'intégration S . En prenant en compte les pertes par propagation du mode, on trouve que la densité spectrale de puissance émise par le dipôle source dans le plasmon de surface est donnée par $DSP_{Plasmon} = |A_{SPP}(\omega)|^2$.

La même procédure peut être appliquée pour calculer l'amplitude $A_{Photon}(\theta)$ sur un mode photonique cylindrique dont la composante radiale du vecteur d'onde vaut $k(\theta) = k_0 \sin(\theta)$ où θ est l'angle d'émission par rapport à la verticale. La symétrie cylindrique du problème impose que seule la composante de nombre azimutal $L = 0$ participe au rayonnement. Le diagramme de rayonnement est alors donnée par la courbe $|A_{Photon}(\theta)|^2$ et la puissance

totale rayonnée est donnée par l'intégrale $DSP_{Photon} = \int_0^{\pi/2} |A_{Photon}(\theta)|^2 2\pi \sin(\theta) d\theta$.

Avec cette procédure, on est capable de comparer la puissance émise, dans le plasmon de surface ou dans les photons, en présence et en l'absence d'antenne. Dans la partie suivante, nous présentons des résultats numériques déduits de notre modélisation.

4.3 Résultats numériques

La figure (4.3) montre l'évolution spectrale de la DSP du plasmon de surface émis avec et sans antenne.

Clairement, le spectre de la puissance émise est fortement modifiée par l'antenne, dont la résonance est plus fine que le spectre d'émission. L'autre caractéristique notable est l'exaltation d'un facteur 275 de la puissance émise dans le plasmon de surface en présence de l'antenne. J'ai vérifié que ce facteur exaltation était indépendant de l'épaisseur du gap,

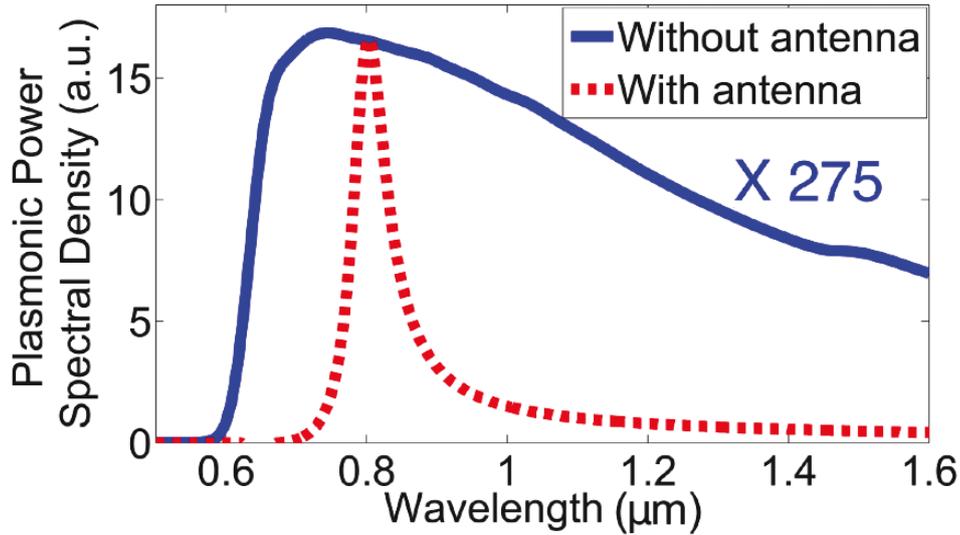


FIGURE 4.3 – Comparaison des densités spectrales de puissance du plasmon de surface à l’interface air/miroir d’or, en présence et en l’absence d’antenne. L’antenne est un cylindre d’or de hauteur $H=51\text{nm}$ de hauteur et de diamètre $D=25\text{nm}$ de diamètre. Les valeurs des constantes diélectriques de l’or et du tungstène sont prises dans la référence (Palik 1985) avec $\epsilon_{\text{Au}} = -26.3 + 1.85i$ et $\epsilon_{\text{W}} = 5.22 + 19.4i$ à $\lambda = 0.8\mu\text{m}$.

en faisant varier l’épaisseur de 1nm à 4nm. Ce résultat est important car il montre que le fait de ne pas avoir pris en compte les effets non-locaux ne remet pas en cause le résultat obtenu. En effet, la prise en compte des effets non-locaux à proximité d’une nanoparticule peut être modélisée par une modification de la distance du gap comme discuté dans les articles (Feibelman 1982; Teperik *et al.* 2013).

Ce premier résultat suggère qu’en accordant la fréquence de résonance de l’antenne, on peut accorder le spectre d’émission. On présente en figure (4.4) l’évolution spectrale de l’exaltation de puissance émise dans le plasmon de surface pour trois valeurs différentes du diamètre de l’antenne. Pour un diamètre croissant, on remarque que le spectre d’émission est décalé vers le bleu. Cette propriété ouvre la voie à la conception de sources électriques à plasmon de surface sélectives en fréquence.

Enfin, la figure (4.5) montre la contribution de l’émission sous forme de photon pour le gap considéré. Sur la bande spectrale $\lambda \in [0.7, 1]\mu\text{m}$, la puissance rayonnée sous forme de photon représente 40% à 100% de la puissance émise dans le plasmon de surface. D’autre part, la figure (4.5)(b) montre que l’exaltation de puissance émise sous forme de photon est égale à l’exaltation de puissance émise sous forme de plasmon de surface, en présence de l’antenne.

Ainsi, on montre qu’en ajoutant une antenne aussi simple qu’un nano-cylindre métallique, on est capable d’exalter de deux ordres de grandeur la puissance rayonnée, sous forme de lumière et sous forme de plasmon de surface, tout en contrôlant le spectre d’émission. Nous allons maintenant étudier en détail l’origine de ces propriétés attrayantes.

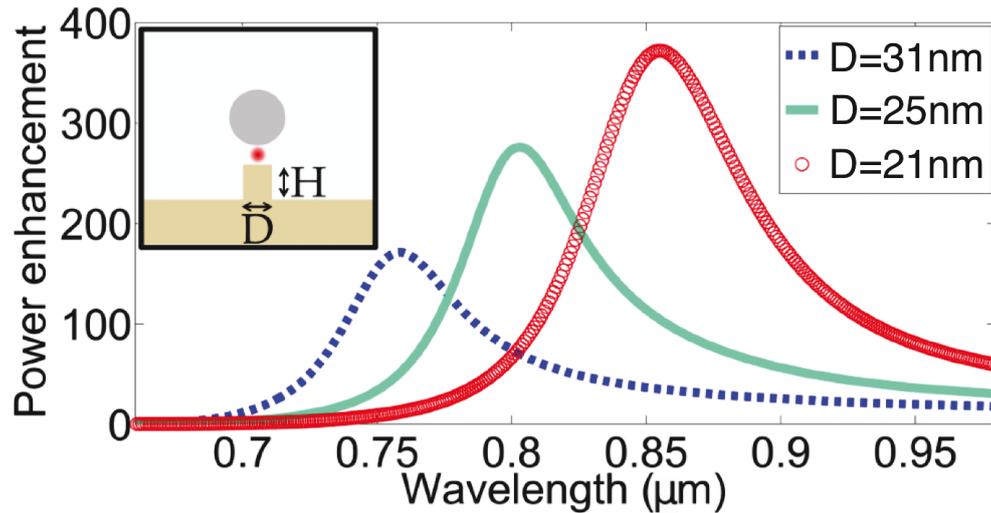


FIGURE 4.4 – Exaltation de puissance émise dans le plasmon de surface à l’interface air/miroir d’or en présence de l’antenne. L’antenne est un cylindre d’or de hauteur $H=51\text{nm}$ de hauteur et de diamètre variable. En variant le diamètre du cylindre, il est possible de contrôler la fréquence d’émission.

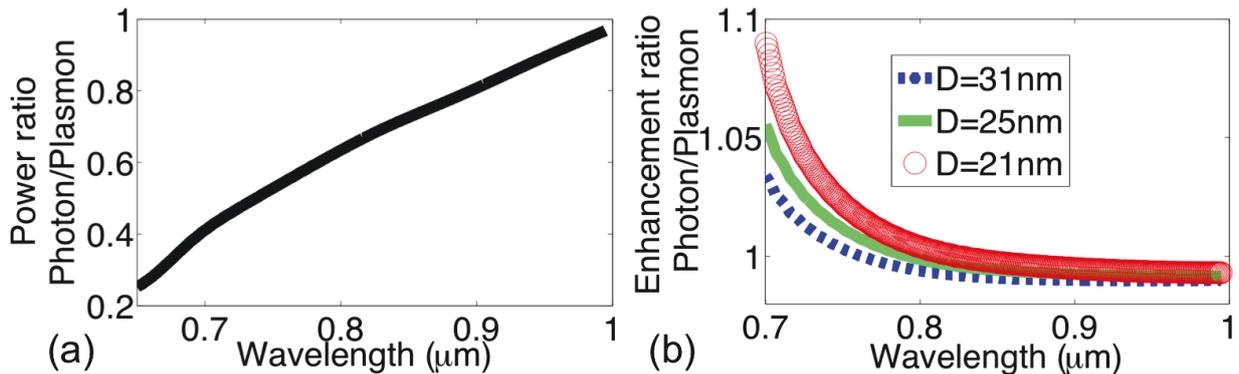


FIGURE 4.5 – Contribution du rayonnement sous forme de photon par rapport à l’émission de plasmon de surface. (a) Rapport des densités spectrales de puissance en l’absence d’antenne. (b) Rapport des exaltations de puissance en présence d’antenne, pour trois diamètres d’antenne différents. Ce rapport est quasiment constant, égale à l’unité sur la bande spectrale considérée.

4.4 Analyse des mécanismes physiques

Étudions en détail les mécanismes physiques de l’antenne. Le mécanisme largement accepté est qu’un "plasmon de gap" est excité par les électrons, et ce mode plasmonique rayonne à son tour (Johansson *et al.* 1990; Divitt *et al.* 2013). Notre but est de clarifier ce qu’est le mode plasmonique de gap et comment le cylindre résonant augmente le rayonnement. Examinons dans un premier temps sur la figure (4.6) la distribution d’intensité électromagnétique de la structure résonnante.

En figure (4.6)(a), on observe l’intensité en présence de l’antenne. Le maximum de l’intensité est localisé au niveau de la source, dans le gap entre la nanosphère et le cylindre. On observe également un point chaud très localisé et très intense, à la fois dans la sphère

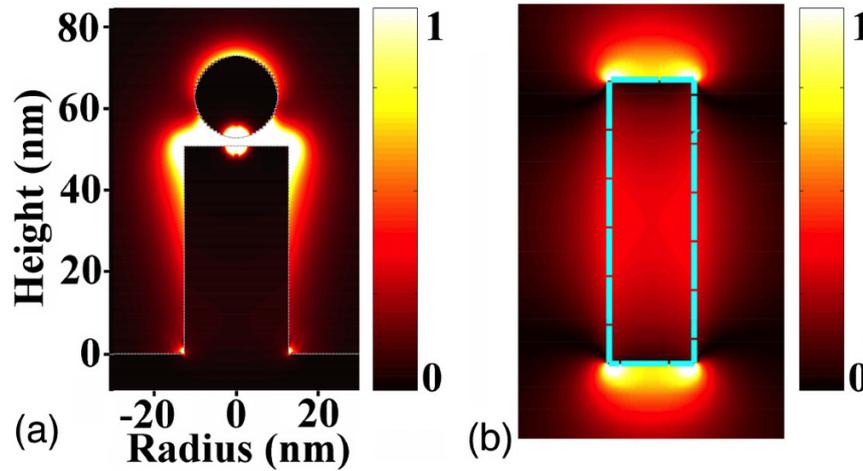


FIGURE 4.6 – *Distribution spatiale de l'intensité électrique. a) Pour la structure comprenant un nano-cylindre de $H = 51\text{nm}$ de hauteur et $D = 25\text{nm}$ de diamètre, placé entre la sphère de tungstène et le miroir d'or. L'intensité a été saturée pour contourner la divergence du champ du dipôle. b) Distribution de $|E_z|^2$ du mode d'un nano-cylindre d'or de même diamètre et de hauteur double de l'antenne.*

de tungstène et dans le nanocylindre, au voisinage immédiat de la source. Ce point chaud est dû au champ proche électrostatique produit par le dipôle. En d'autres mots, les termes du champ divergeant en r^{-3} produisent un point chaud menant à des pertes. D'un point de vue macroscopique, ce sont des pertes par effet Joule, associées au champ très intense dans le voisinage immédiat de la source. D'un point de vue microscopique, ces pertes sont associées à la génération de paires électron-trou dans le métal. Si la condition de conservation de la quantité de mouvement empêche ce processus pour une onde plane incidente, il peut toutefois prendre place lorsque les champs sont localisés sur une échelle de quelques nanomètres. C'est le processus de quenching discuté au chapitre 2. On remarque sur la figure (4.6)(a) que le champ est également très intense autour des bords du cylindre. Cette caractéristique semble être la signature de la résonance plasmonique du nano-cylindre. Pour clarifier l'origine de cette résonance, on montre sur la figure (4.6)(b) l'intensité du mode associé à la fréquence complexe de résonance d'un cylindre placé dans le vide, possédant un diamètre égal à celui de l'antenne et une hauteur double. On reconnaît clairement le mode dipolaire. Evidemment, l'antenne étudiée étant déposée sur un miroir, seule la moitié du mode est observée en figure (4.6)(a). En résumé, la figure (4.6) met en évidence deux canaux de désexcitation. L'un est lié à des champs hautement confinés autour de l'émetteur responsables de grandes pertes ohmiques. L'autre conduit à l'excitation d'un mode dipolaire plasmonique introduit par le nano-cylindre.

Essayons maintenant de deviner à partir de la distribution du champ quel rôle peut avoir le mode dipolaire dans le processus d'émission. D'une part, on s'attend à ce que l'antenne modifie la densité locale d'états électromagnétique (EM-LDOS) à la position de l'émetteur et par conséquent, elle peut apporter un nouveau canal de désexcitation en compétition avec le quenching. D'autre part, il est clair que la distribution de densité de courant associée au mode plasmonique du cylindre est beaucoup plus étendue spatialement que le mode du gap en l'absence d'antenne. On a montré au chapitre 3 que l'antenne filaire demi-onde possède un bon rendement radiatif. Ainsi, on s'attend à ce que la structure complète en présence de l'antenne possède une bien plus grande capacité à rayonner.

Analysons plus en détails le processus d'exaltation de rayonnement. La puissance rayonnée sous forme de plasmon P_{SPP} peut être déterminée à partir du produit de deux quantités : (i) la puissance totale délivrée par la source P_{TOT} (ii) le rendement radiatif plasmonique η_{SPP} , défini comme la fraction de puissance qui va être effectivement rayonnée dans le plasmon. En outre, on a montré au chapitre 2 que la puissance totale délivrée par la source est proportionnelle à l'EM-LDOS ρ . Il en découle que l'exaltation de puissance rayonnée sous forme de plasmon peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{P_{SPP,Ant}}{P_{SPP,0}} = \frac{P_{TOT,Ant} \cdot \eta_{SPP,Ant}}{P_{TOT,0} \cdot \eta_{SPP,0}} = \frac{\rho_{Ant}}{\rho_0} \cdot \frac{\eta_{SPP,Ant}}{\eta_{SPP,0}} \quad (4.8)$$

où les quantités indexées respectivement par Ant et 0 correspondent respectivement à la présence et à l'absence d'antenne dans la structure émettrice. Ainsi l'exaltation de puissance rayonnée est due au produit de l'exaltation d'EM-LDOS et de l'exaltation de rendement radiatif plasmonique. A partir de l'analyse qualitative précédente, on s'attend à ce que l'antenne augmente à la fois l'EM-LDOS et le rendement radiatif de la structure.

Sur la figure (4.7)(a), on trace l'exaltation d'EM-LDOS à la position de la source, due à la présence de l'antenne.

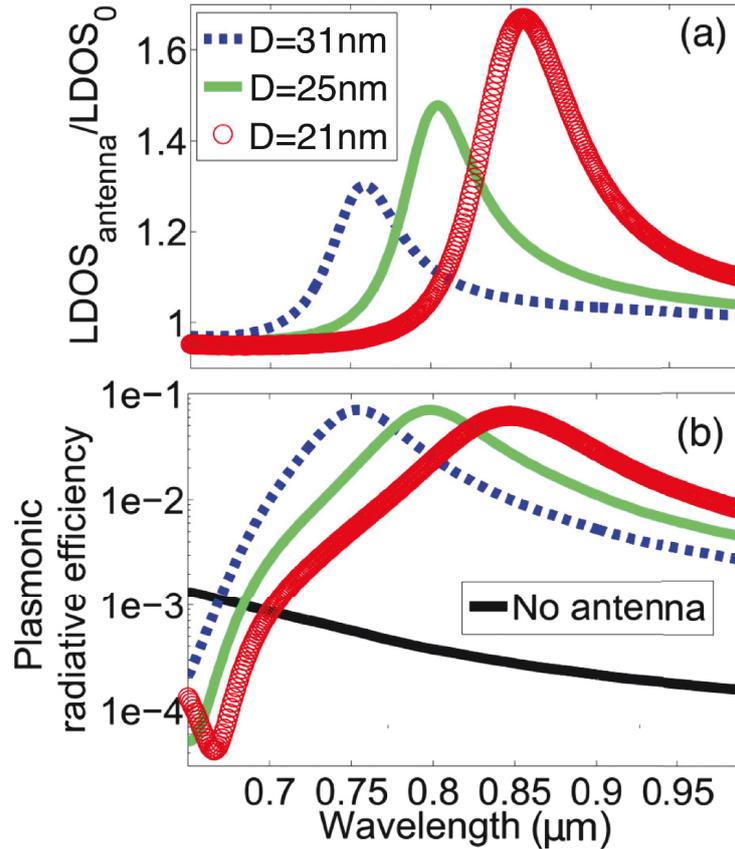


FIGURE 4.7 – a) Modification de l'EM-LDOS au milieu du gap due à la présence de l'antenne plasmonique pour trois antennes de hauteur $H = 51 \text{ nm}$ et de diamètres différents. On note une augmentation significative d'EM-LDOS accompagnée de la signature spectrale du mode d'antenne. b) Evolution spectrale du rendement radiatif plasmonique en présence des mêmes antennes, comparés à celui d'une structure émettrice en l'absence d'antenne.

On remarque que l'EM-LDOS peut être exaltée d'un facteur allant jusqu'à 60%. Pourtant, on souligne que l'EM-LDOS est 5 ordres de grandeur supérieur à celle du vide à cause d'un quenching très important au voisinage de la surface des métaux. Ainsi, cette déviation de 60% de l'EM-LDOS signifie que l'antenne apporte une contribution du même ordre de grandeur que le processus de quenching.

Quantifions maintenant l'exaltation de rendement radiatif plasmonique. La figure (4.7)(b) montre que pour une antenne résonante à $0.8\mu\text{m}$, le rendement radiatif en l'absence d'antenne vaut $4 \cdot 10^{-4}$. En présence de l'antenne ce rendement atteint les 7%. Ainsi, le rendement radiatif est exalté de plus de deux ordres de grandeurs.

La signature spectrale de la résonance de l'antenne dans l'exaltation de l'EM-LDOS et du rendement radiatif semble indiquer un contrôle des propriétés d'émission par le mode dipolaire de l'antenne. Pour confirmer cette intuition, j'ai calculé la contribution de ce mode à l'EM-LDOS. Pour effectuer ce calcul, j'ai utilisé le formalisme développé dans les références (Sauvan *et al.* 2013; Bai *et al.* 2013). La figure (4.8)(b) montre que la contribution du mode dipolaire décrit exactement l'exaltation de l'EM-LDOS.

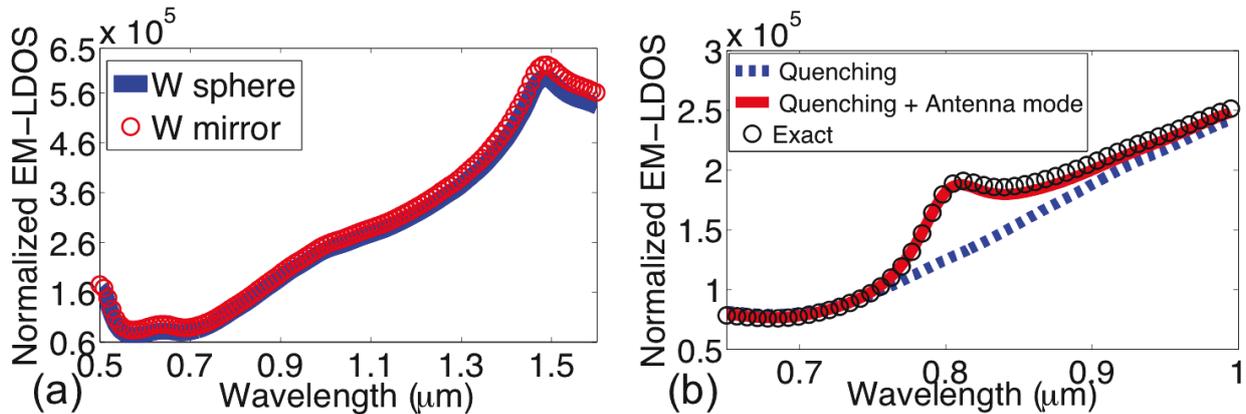


FIGURE 4.8 – Densité locale d'états dans le gap normalisée par celle d'un dipôle dans le vide. a) Pour la structure sans antenne : Sphère de tungstène/gap d'air/ miroir d'or, et pour le MIM de gap équivalent tungstène/air/or. b) Pour la structure avec antenne (calcul exact, en cercles noirs) de diamètre $D=25\text{nm}$ et de hauteur $H=51\text{nm}$, pour la structure sans antenne (quenching, en tirets bleus) et la contribution du mode d'antenne associée au quenching (en trait rouge).

D'autre part, la figure (4.8)(a) compare l'EM-LDOS dans le gap de la structure émettrice en l'absence d'antenne, avec celle du MIM équivalent. Autrement dit, on remplace la sphère de tungstène par un miroir d'or. On note que l'EM-LDOS est équivalente, ce qui confirme qu'elle n'est pas due à une résonance de la sphère mais provient essentiellement du processus de quenching dans le gap. Cela explique le très faible rendement radiatif en l'absence d'antenne. Le processus de quenching intervenant sur des volumes métalliques de l'ordre du nanomètre, la structuration du gap en présence du nano-cylindre ne modifie pas la puissance dissipée par le dipôle dans ce processus. Ainsi, l'exaltation drastique de la puissance rayonnée tire son unique origine de l'excitation du mode dipolaire de l'antenne. Jusqu'à 60% de la puissance dissipée par les fluctuations de courant vont servir à exciter ce mode. Ce mode peut ensuite se désexciter soit par rayonnement, soit par effet Joule dans l'antenne. La grande étendue spatiale de ce mode indique un moment dipolaire bien plus

grand que le plasmon du gap habituel. Finalement, le mode possède son propre rendement radiatif η_{mode} . Etant donnée que le mode contribue à $\sim 1/3$ de l'EM-LDOS, on estime un rendement radiatif plasmonique du mode $\eta_{SPP,mode} \sim 21\%$. A cela, on peut ajouter la contribution rayonnée sous forme de photon. D'après la figure (4.5), le rayonnement du mode sous forme de plasmon et de photon peut atteindre $\eta_{mode} \sim 40\%$ de la puissance dissipée par le mode.

4.5 Conclusion

L'excitation électrique de lumière par effet tunnel inélastique présente des caractéristiques attrayantes. En particulier, l'émission de plasmon de surface par une pointe STM offre une solution à une excitation confinée sur des petits volumes. Cette propriété clé permet d'envisager des sources électriques intégrées à des circuits nanophotoniques. En pratique, il faut résoudre deux problèmes : (i) le spectre d'émission s'étend sur une grande bande passante $\Delta\lambda \sim 1\mu\text{m}$, intrinsèquement liée à la largeur du spectre des fluctuations de courant sources (ii) le rayonnement représente une fraction infime de la puissance dissipée dans la jonction, de l'ordre de un photon/plasmon pour 10^4 électrons. La puissance est essentiellement dissipée par le processus de quenching. En introduisant une antenne plasmonique, on montre la possibilité d'améliorer les performances de la source vis-à-vis de ces deux problèmes. Ce tour de force est attribué à deux mécanismes physiques : d'abord à une exaltation de la densité locale d'états électromagnétiques dans la jonction, possible notamment grâce aux propriétés de confinement des résonateurs plasmoniques. Le mode de l'antenne entre alors en compétition avec le processus de quenching. Ensuite parce que le très grand moment dipolaire du mode lui permet de dissiper une grande fraction de la puissance par rayonnement. La combinaison de ces deux mécanismes conduit à une exaltation de puissance rayonnée sous forme de plasmon qui peut dépasser deux ordres de grandeur. Enfin, la structure de l'antenne impose la fréquence de résonance qui peut être accordée en changeant l'une des tailles caractéristiques de l'antenne. Cette propriété est très intéressante d'un point de vue pratique. En effet, la grande bande passante des fluctuations de courant sources facilite l'observation de l'effet d'antenne même si la nanostructure fabriquée présente une déviation de la géométrie théorique. En outre, le facteur de qualité $Q \sim 10$ des nano-résonateurs plasmoniques permet de réduire d'un facteur ~ 10 la largeur spectrale d'émission. Ainsi, les propriétés de rayonnement peuvent être entièrement contrôlées et grandement améliorées en présence d'une nano-antenne plasmonique. La structure peut ensuite être intégrée dans un guide diélectrique pour manipuler la propagation du mode plasmonique (?; Apuzzo *et al.* 2013)

4.6 Annexe

4.6.1 Décomposition sur une base modale cylindrique

On a montré dans la dernière partie du chapitre 1 que le champ $\vec{\Phi} = (E_r, E_\theta, E_z, H_r, H_\theta, H_z)$ produit par un dipôle source dans un système stratifié peut être décomposé sur une base d'onde de Bessel cylindrique. En remarquant que l'équation TE (1.29) donnée au chapitre 1 et son symétrique "E-H" TM sont indépendantes du nombre azimutal L , de simples manipulations des équations permettent de réécrire l'expression de ce champ sous la forme de deux champs se propageant radialement en sens opposé :

$$\vec{\Phi} = \vec{\Phi}^+ + \vec{\Phi}^- \quad (4.9)$$

avec

$$\vec{\Phi}^\pm = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \vec{\phi}_n^\pm = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} A_{TM,n}(z) \vec{P}_{TM,n}^\pm(r, \theta) + A_{TE,n}(z) \vec{P}_{TE,n}^\pm(r, \theta), \quad (4.10)$$

$$A_{\alpha,n}(z) = \begin{pmatrix} e_{r,n}^\alpha(z) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e_{\theta,\alpha,n}^\alpha(z) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e_{z,n}^\alpha(z) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & h_{r,n}^\alpha(z) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & h_{\theta,n}^\alpha(z) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & h_{z,n}^\alpha(z) \end{pmatrix}, \alpha \in \{TE, TM\} \quad (4.11)$$

$$\vec{P}_{\alpha,n}^\pm(r, \theta) = \sum_{L=-\infty}^{+\infty} \chi_{\alpha,n,L}^\pm T_{\alpha,n,L}^\pm(r) e^{iL\theta}, \alpha \in \{TE, TM\} \quad (4.12)$$

$$T_{TM,n,L}^\pm(r) = \begin{pmatrix} B_{L+1}^\pm(k_n^{TM}r) + B_{L-1}^\pm(k_n^{TM}r) \\ B_{L+1}^\pm(k_n^{TM}r) - B_{L-1}^\pm(k_n^{TM}r) \\ 0 \\ B_{L+1}^\pm(k_n^{TM}r) - B_{L-1}^\pm(k_n^{TM}r) \\ B_{L+1}^\pm(k_n^{TM}r) + B_{L-1}^\pm(k_n^{TM}r) \\ B_L^\pm(k_n^{TM}r) \end{pmatrix}, T_{TE,n,L}^\pm(r) = \begin{pmatrix} B_{L+1}^\pm(k_n^{TE}r) - B_{L-1}^\pm(k_n^{TE}r) \\ B_{L+1}^\pm(k_n^{TE}r) + B_{L-1}^\pm(k_n^{TE}r) \\ B_L^\pm(k_n^{TE}r) \\ B_{L+1}^\pm(k_n^{TE}r) + B_{L-1}^\pm(k_n^{TE}r) \\ B_{L+1}^\pm(k_n^{TE}r) - B_{L-1}^\pm(k_n^{TE}r) \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (4.13)$$

où les k_n sont des nombres complexes données par la racine carré des valeurs propres de l'équation (1.29) du chapitre 1, indépendamment du nombre azimutal L . k_n représente la composante radiale du vecteur d'onde d'un mode quasi-normal défini à fréquence réelle fixée. Les matrices diagonales $A(z)$ ne dépendent que de la structure stratifiée et du mode quasi-normal considéré, indexé ici par n . Les χ définissent les amplitudes émises dans chaque mode cylindrique de nombre azimutal L fixé et on choisit dans cette annexe la définition de $B_L^\pm(x) = J_L(x) \pm Y_L(x)$, J_L et Y_L étant les fonctions de Bessel cylindrique de première et de seconde espèce, d'ordre L .

Dans le cas d'une source dipolaire centrée et polarisée verticalement, la symétrie cylindrique du problème impose que le champ soit donné par la composante azimutale de nombre $L = 0$.

Les résultats qui suivent peuvent être généralisés pour tout nombre azimutal L , mais nous ne considérerons dans la suite que le cas particulier $L = 0$.

L'équation (4.10) montre alors que le champ peut être décomposé sur une base de modes cylindriques quasi-normaux, de nombre azimutal $L=0$. L'équation (4.9) montre que pour chaque mode quasi-normal, deux solutions contra-propagatives existent, une solution ϕ_n^+ se propageant vers les r croissants, et son réciproque ϕ_n^- se propageant vers l'origine.

Les solutions TM et TE sont indépendantes. Dans le cas d'une interface diélectrique/miroir, le plasmon de surface n'est solution que de l'équation TM, et la composante radiale du vecteur d'onde est connue analytiquement par :

$$k_{spp} = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_m \epsilon_d}{\epsilon_m + \epsilon_d}}, \quad (4.14)$$

où ϵ_d et ϵ_m sont les permittivités diélectriques respectivement du milieu diélectrique et du milieu métallique. Dans ce cas précis, on trouve que la matrice $A_{TM,spp}(z) = D_1 \exp(i\gamma_d z)$ pour $z > 0$ et $A_{TM,spp}(z) = D_2 \exp(-i\gamma_m z)$ pour $z < 0$, où D_1 et D_2 sont des matrices diagonales constantes et $\gamma_a = \sqrt{\epsilon_a k_0^2 - k_{spp}^2}$, $a \in \{m, d\}$. Les γ sont toujours complexes à partie imaginaire positive, de sorte que les composantes de la matrice $A_{TM,spp}(z)$ décroît exponentiellement à partir de l'interface $z = 0$.

4.6.2 L'intégrale de Lorentz pour le calcul de l'amplitude d'un mode.

Dans cette partie, on souhaite utiliser le théorème de Lorentz pour pouvoir définir une application bilinéaire sur la base des modes cylindriques quasi-normaux définie précédemment. Rappelons d'abord le principal résultat du théorème de Lorentz dont une démonstration peut être trouvée dans la référence (Lecamp *et al.* 2007).

On considère deux champs $\vec{\Phi}_1$ et $\vec{\Phi}_2$ produits par deux densités de courant \vec{J}_1 et \vec{J}_2 dans un même environnement $(\epsilon(\vec{r}), \mu(\vec{r}))$:

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \times \vec{E}_1 = i\omega_1 \mu \vec{H}_1 \\ \vec{\nabla} \times \vec{H}_1 = -i\omega_1 \epsilon \vec{E}_1 + \vec{J}_1(\vec{r}), \end{cases} \quad (4.15)$$

et

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \times \vec{E}_2 = i\omega_2 \mu \vec{H}_2 \\ \vec{\nabla} \times \vec{H}_2 = -i\omega_2 \epsilon \vec{E}_2 + \vec{J}_2(\vec{r}), \end{cases} \quad (4.16)$$

En supposant que ces champs soient produits dans des milieux réciproques, i.e. les matrices $\epsilon^T = \epsilon$ et $\mu^T = \mu$ où T désigne la transposée, alors pour toute surface fermée S entourant les densités de courant sources et de volume connexe V , on peut trouver le résultat général suivant :

$$\Lambda_S(\vec{\Phi}_1, \vec{\Phi}_2) = \int_V i(\omega_2 - \omega_1) \left(\vec{E}_2^T \epsilon \vec{E}_1 - \vec{H}_2^T \mu \vec{H}_1 \right) + \left(\vec{J}_2 \cdot \vec{E}_1 - \vec{J}_1 \cdot \vec{E}_2 \right) d^3 \vec{r} \quad (4.17)$$

où on définit l'intégrale de Lorentz Λ_S par :

$$\Lambda_S(\vec{\Phi}_1, \vec{\Phi}_2) = \oint_S (\vec{E}_1 \times \vec{H}_2 - \vec{E}_2 \times \vec{H}_1) \cdot d\vec{S} \quad (4.18)$$

Considérons une telle surface fermée S_{INT} entourée par une seconde surface fermée S_{EXT} , telles que schématisées en figure (4.9).

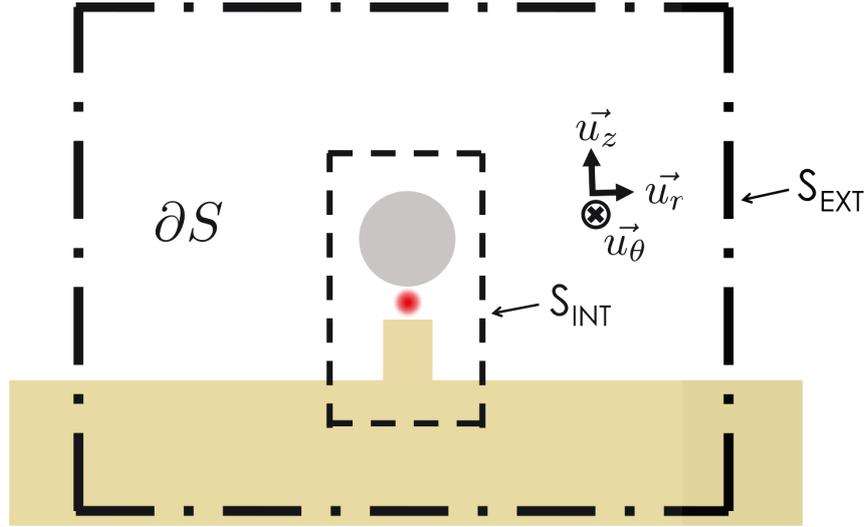


FIGURE 4.9 – Exemples de surface sur laquelle on peut évaluer l'intégrale de Lorentz.

D'après l'équation (4.17), on obtient :

$$\Lambda_{S_{EXT}}(\vec{\Phi}_1, \vec{\Phi}_2) - \Lambda_{S_{INT}}(\vec{\Phi}_1, \vec{\Phi}_2) = \int_{\partial S} i(\omega_2 - \omega_1) \left(\vec{E}_2^T \epsilon \vec{E}_1 - \vec{H}_2^T \mu \vec{H}_1 \right) + \left(\vec{J}_2 \cdot \vec{E}_1 - \vec{J}_1 \cdot \vec{E}_2 \right) d^3\vec{r} \quad (4.19)$$

où ∂S est le volume de la couronne intermédiaire. Lorsque le volume ∂S est vide de source, et en considérant des champs émis à fréquence constante $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, alors on trouve

$$\Lambda_{S_{EXT}}(\vec{\Phi}_1, \vec{\Phi}_2) = \Lambda_{S_{INT}}(\vec{\Phi}_1, \vec{\Phi}_2) \quad (4.20)$$

Autrement dit, l'intégrale de Lorentz entre deux champs émis à fréquence constante est indépendante de la surface fermée entourant les sources de ces champs.

Considérons maintenant deux modes cylindriques quasi-normaux contra-propageant $\vec{\phi}_{k_1}^+$ et $\vec{\phi}_{k_2}^-$ solutions d'un système stratifié, de vecteur d'onde complexe k_1 et k_2 et d'amplitude $\chi_1^+ = \chi_2^- = 1$. On s'intéresse à l'intégrale de Lorentz de ces deux champs sur un cylindre de rayon R et de hauteur infinie. Alors, le champ sur les faces haute et basse du cylindre est négligeable, de sorte que seule la composante radiale de l'intégrale intervient. D'autre part, en choisissant un rayon $R \rightarrow +\infty$, on peut utiliser les développements asymptotiques des

modes quasi-normaux :

$$\vec{\phi}_{k_1}^+ \xrightarrow{R \rightarrow +\infty} \sqrt{\frac{2}{\pi k_1 R}} \exp i(k_1 R - \pi/4) \begin{pmatrix} -2ie_{r,1}^{TE} \\ -2ie_{\theta,1}^{TM} \\ e_{z,1}^{TE} \\ -2ih_{r,1}^{TM} \\ -2ih_{\theta,1}^{TE} \\ h_{z,1}^{TM} \end{pmatrix} \quad (4.21)$$

$$\vec{\phi}_{k_2}^- \xrightarrow{R \rightarrow +\infty} \sqrt{\frac{2}{\pi k_2 R}} \exp -i(k_2 R - \pi/4) \begin{pmatrix} 2ie_{r,2}^{TE} \\ 2ie_{\theta,2}^{TM} \\ e_{z,2}^{TE} \\ 2ih_{r,2}^{TM} \\ 2ih_{\theta,2}^{TE} \\ h_{z,2}^{TM} \end{pmatrix} \quad (4.22)$$

$$\Lambda(\vec{\phi}_{k_1}^+, \vec{\phi}_{k_2}^-) \xrightarrow{R \rightarrow +\infty} \frac{-8i}{\sqrt{k_2 k_1}} e^{i(k_1 - k_2)R} C_{k_1, k_2} \quad (4.23)$$

où la constante

$$C_{k_1, k_2} = \int_{-\infty}^{+\infty} \left(e_{\theta,1}^{TM} h_{z,2}^{TM} - e_{\theta,2}^{TM} h_{z,1}^{TM} + e_{z,1}^{TE} h_{\theta,2}^{TE} - e_{z,1}^{TE} h_{\theta,2}^{TE} \right) dz. \quad (4.24)$$

Ainsi, lorsque $k_1 \neq k_2$, $\Lambda(\vec{\phi}_{k_1}^+, \vec{\phi}_{k_2}^-)$ s'écrit comme le produit d'une constante avec une fonction qui varie en fonction du rayon R de la surface d'intégration. Or, on a montré par l'équation (4.20) que l'intégrale de Lorentz est indépendante de la surface d'intégration. On en déduit que la constante $C_{k_1, k_2} = 0$ quand $k_1 \neq k_2$. Finalement, pour tout couple de modes cylindriques quasi-normaux de vecteur d'onde k_1 et k_2 , on a :

$$\Lambda(\vec{\phi}_{k_1}^+, \vec{\phi}_{k_2}^-) = \Lambda(\vec{\phi}_{k_1}^+, \vec{\phi}_{k_1}^-) \delta_{k_1, k_2} \quad (4.25)$$

où on a introduit le symbole de Kronecker $\delta_{k_1, k_2} = 1$ si $k_1 = k_2$, $\delta_{k_1, k_2} = 0$ sinon.

Plus généralement, si on note l'application réciproque $\vec{\phi} : \vec{\phi}^\pm \rightarrow \vec{\phi}^\mp$, alors on peut définir l'application bilinéaire :

$$\langle \vec{\Phi}_1 \otimes \vec{\Phi}_2 \rangle = \Lambda(\vec{\Phi}_1, \vec{\Phi}_2) \quad (4.26)$$

puisque les champs peuvent se décomposer sur une base de modes cylindriques quasi-normaux. La propriété d'orthogonalité entre deux modes différents par cette application bilinéaire est intéressante dans notre approche. En effet, supposons qu'une source rayonne uniquement dans deux modes quasi-normaux ϕ_1 et ϕ_2 . Le champ total s'écrit alors $\phi_{TOT} = A_1 \phi_1 + A_2 \phi_2$. Pour connaître l'amplitude du mode ϕ_1 , il suffit de remarquer que :

$$\langle \vec{\Phi}_{TOT} \otimes \vec{\Phi}_1 \rangle = \langle A_1 \vec{\Phi}_1 \otimes \vec{\Phi}_1 \rangle = A_1 \langle \vec{\Phi}_1 \otimes \vec{\Phi}_1 \rangle, \quad (4.27)$$

par orthogonalité des modes ϕ_1 et ϕ_2 . On en déduit :

$$A_1 = \frac{\langle \vec{\Phi}_{TOT} \otimes \vec{\Phi}_1 \rangle}{\langle \vec{\Phi}_1 \otimes \vec{\Phi}_1 \rangle}. \quad (4.28)$$

4.6.3 Estimation de la puissance rayonnée dans le plasmon de surface

On a vu comment calculer l'amplitude émise dans un mode quasi-normal. Cherchons maintenant à calculer la puissance rayonnée dans ce mode. En particulier, on s'intéresse à la puissance rayonnée dans le plasmon de surface ϕ_{SPP} à l'interface d'un miroir métallique. L'approche la plus physique consiste à calculer le flux du vecteur de Poynting du mode pondéré par cette amplitude :

$$P_{SPP}(S) = \oint_S \frac{1}{2} \text{Re}(A_{SPP} \vec{E}_{k_{SPP}} \times A_{SPP}^* \vec{H}_{k_{SPP}}^*) \cdot d\vec{S} = |A_{SPP}|^2 \oint_S \frac{1}{2} \text{Re}(\vec{E}_{k_{SPP}} \times \vec{H}_{k_{SPP}}^*) \cdot d\vec{S} \quad (4.29)$$

où A_{SPP} est l'amplitude émise dans le mode plasmonique et où l'intégration est opérée sur la surface fermée S . Pour un mode possédant des pertes par propagation, i.e. $\text{Im}(k_{SPP}) \neq 0$, le flux du vecteur de Poynting du mode $\oint_S \frac{1}{2} \text{Re}(\vec{E}_{k_{SPP}} \times \vec{H}_{k_{SPP}}^*) \cdot d\vec{S}$ dépend de la surface d'intégration S puisque le mode s'atténue au fur et à mesure de sa propagation. La puissance dissipée par le dipôle-source dans le plasmon de surface est indépendante de la surface d'intégration, et peut être retrouvée en prenant en compte les pertes par propagation. Pour une intégration sur un cylindre de hauteur infinie et de rayon $R \gtrsim 10/\text{Im}(k_{spp})$, le facteur de pertes par propagation est connu et vaut $\exp[-2\text{Im}(k_{spp})R]$. Il suffit alors de diviser $P_{SPP}(S)$ par ce facteur de pertes, ou encore de choisir la constante de normalisation du mode telle que $\oint_S \frac{1}{2} \text{Re}(\vec{E}_{k_{SPP}} \times \vec{H}_{k_{SPP}}^*) \cdot d\vec{S} = 1$ pour la surface d'intégration considérée.

Pour faire simple, il suffit de calculer le flux sur un cylindre de hauteur infinie et de rayon R , puis de le multiplier par $\exp[+2\text{Im}(k_{spp})R]$ ce qui le rend constant. Se faisant, on déduit la puissance émise par le dipôle-source dans le plasmon de surface rapportée à la position de la source :

$$P_{SPP}^0 = |A_{SPP}|^2. \quad (4.30)$$

Chapitre 5

Nanoantennes pour la détection de molécules

Table des matières

4.1	Introduction	113
4.2	Modélisation	117
4.3	Résultats numériques	118
4.4	Analyse des mécanismes physiques	120
4.5	Conclusion	124
4.6	Annexe	125
4.6.1	Décomposition sur une base modale cylindrique	125
4.6.2	L'intégrale de Lorentz pour le calcul de l'amplitude d'un mode.	126
4.6.3	Estimation de la puissance rayonnée dans le plasmon de surface	129

5.1 Introduction

Par sa capacité à confiner des champs électriques sur des volumes très petits devant la longueur d'onde, la plasmonique présente un intérêt certain pour la détection de molécules en faible concentration. Depuis une vingtaine d'années, un grand nombre d'applications biomédicales et chimiques se sont développées autour de la résonance à plasmon de surface d'objets métalliques (SPR, pour l'anglais *Surface Plasmon Resonance*) (Roy et Fendler 2004; Tittl *et al.* 2014). Une modification de la résonance plasmonique en présence de molécules permet de détecter de faibles concentrations. Ces détecteurs utilisent la résonance plasmonique aux fréquences optiques de nanoparticules métalliques, de systèmes stratifiés et de systèmes hybrides, dont on trouvera une revue dans (Stewart *et al.* 2008). Dans la gamme de fréquences optiques, les molécules d'intérêt ne sont généralement pas résonnantes. Les détecteurs SPR observent alors un décalage de la résonance induit par une variation de l'indice de réfraction local. Pour rendre la détection spécifique, des ligands spécifiques à la molécule d'intérêt sont généralement utilisés.

Plus récemment, deux autres domaines ont émergé pour la détection de molécules en faible concentration, utilisant également les propriétés des modes plasmoniques.

D'une part, le confinement du champ des plasmons permet d'exalter les effets non-linéaires dans les matériaux situés à l'interface des métaux. Le SERS (pour l'anglais *Surface-Enhanced Raman Scattering*) et le TERS (pour l'anglais *Tip-Enhanced Raman Scattering*) sont des techniques de spectroscopie Raman de molécules déposées sur une surface métallique ou au voisinage d'une pointe ou d'une nanostructure métallique. Des travaux ont notamment montré la possibilité de détecter des nanotubes de carbone uniques (Hartschuh *et al.* 2003; Anderson *et al.* 2006) et des molécules uniques (Lee *et al.* 2013). On trouvera des revues de ces techniques de spectroscopie dans (Bailo et Deckert 2008; Cialla *et al.* 2012; Schlücker 2014). L'un des intérêts majeurs de ces techniques est la signature Raman de la molécule que l'on souhaite détecter, ce qui rend la détection spécifique sans la nécessité d'utiliser des ligands.

D'autre part, le confinement du champ des plasmons peut permettre d'exalter l'absorption de molécules résonantes. Le SEIRA (pour l'anglais *Surface Enhanced InfraRed Absorption*), étudie l'exaltation de signal spectroscopique infrarouge à la surface d'une structure métallique. Les molécules d'intérêt étant résonnantes dans l'infrarouge, cette résonance constitue une signature spectrale qui rend la détection spécifique. On trouvera une revue sur le SEIRA dans (Wang et Jiang 2012). L'étude présentée dans ce chapitre s'inscrit dans le cadre de la spectroscopie SEIRA.

Plus précisément, dans ce chapitre on étudie le potentiel d'une structure hybride à détecter des molécules résonnantes dans l'infrarouge. Le système est constitué d'un réseau de nanostructures inscrit dans un miroir métallique. En partie (5.2), nous étudierons quelques propriétés de ce réseau. En partie (5.3), nous investiguerons les effets d'un dépôt de CO solide sur les propriétés optiques du réseau. Le CO est un système modèle très connu en physique moléculaire. C'est donc le bon candidat pour une démonstration de principe. En partie (5.4) on évaluera le potentiel du système de détection, en comparant notamment ces performances à un système de détection similaire. Enfin en partie (5.5), nous discuterons des limitations posées par la modélisation sur les différents résultats théoriques obtenus.

5.2 Le résonateur de Helmholtz optique

En 1885, Hermann von Helmholtz a décrit dans (Helmholtz 1885) un type de résonateurs pour son étude des ondes acoustiques. Ces résonateurs acoustiques sont généralement formés d'une cavité fermée et adiabatique accolée à une cavité ouverte plus petite. Une bouteille ouverte constitue un bon exemple de résonateurs de Helmholtz : le culot de la bouteille représente la cavité fermée et son goulot représente la petite cavité ouverte. Parce que la petite cavité est ouverte, la pression de l'air qu'elle contient reste constante, égale à la pression extérieure. Parce que la grande cavité est fermée, le volume de l'air qu'elle contient reste constant. D'une variation de volume d'air induite dans la petite cavité résulte une variation de pression dans la grande cavité, et inversement. Une oscillation acoustique peut alors s'établir dans ce résonateur. En soufflant sur le goulot d'une bouteille, on excite la résonance de Helmholtz. La longueur d'onde émise est généralement beaucoup plus grande que les dimensions du résonateur : c'est donc une résonance quasi-statique, à l'instar de la résonance plasmonique d'une nano-particule métallique. Dans les cas pratiques, on cherche soit à atténuer cette résonance (par exemple pour limiter le bruit d'un conduit de cheminée au passage du vent), soit à interroger cette résonance (par exemple pour optimiser l'injection

d'air dans les cylindres d'un moteur).

Une étude théorique récente (Chevalier *et al.* 2014) présente un dispositif infrarouge analogue au résonateur de Helmholtz acoustique. Il permet de concentrer le champ électrique dans une fente de dimensions hautement sub-longueur d'onde, permettant ainsi d'atteindre une exaltation du champ de deux à trois ordres de grandeur dans tout le volume de la fente. Cette forte exaltation du champ peut présenter un intérêt dans le cadre du SEIRA, afin d'interroger une ou plusieurs molécules localisées dans la fente. La structure qu'ils proposent est composée d'un réseau (fini ou infini) de nanostructures 2D inscrit dans un miroir métallique. Ils nomment ces nanostructures des résonateurs de Helmholtz optiques, par analogie aux résonateurs acoustiques (voir la figure (5.1) qui définit également les paramètres géométriques du réseau).

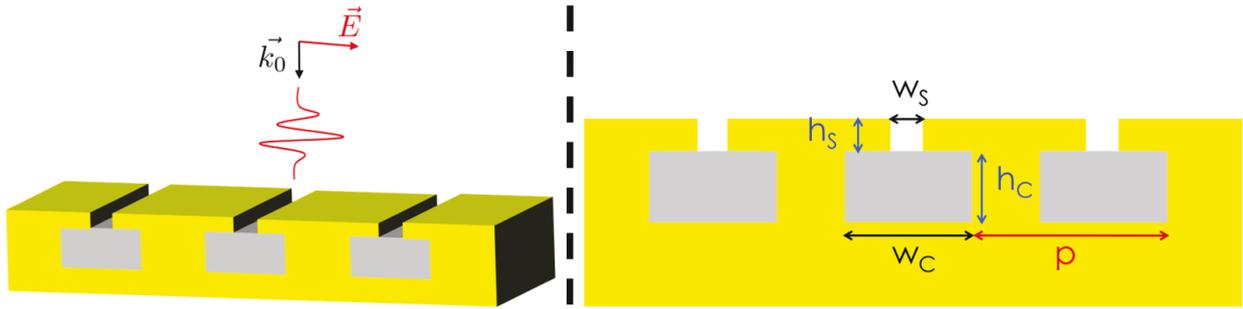


FIGURE 5.1 – Schémas du réseau de résonateurs de Helmholtz étudié.

Nous allons dans un premier temps décrire quelques propriétés de ce réseau à partir d'un exemple. Dans ce chapitre, chaque résonateur est composé d'une "grande" fente de dimensions transverses (h_c, w_c) de l'ordre de $\simeq 100\text{nm}$, remplie d'un diélectrique supportant une fente plus petite de dimensions transverses (h_s, w_s) de l'ordre de $\simeq 10\text{nm}$. Pour notre étude, on choisit de remplir la grande fente par du SiC qui n'absorbe pas dans l'infrarouge ($n_{SiC} = 2.49 + 3.10^{-3}i$ à $\lambda = 4.6\mu\text{m}$ (Palik 1985)).

A l'aide d'un algorithme d'optimisation globale, j'ai cherché les dimensions d'un résonateur de Helmholtz permettant de maximiser l'exaltation de champ dans la fine fente pour une onde plane en incidence normale, à une longueur d'onde autour de $\lambda \simeq 4.6\mu\text{m}$. J'ai choisi une période de nanostructuration inférieure à la longueur d'onde. Ainsi, seul l'ordre 0 de diffraction intervient dans l'expression de la réflectivité. Pour la modélisation du SiC, j'ai utilisé le modèle de Drude-Lorentz de la permittivité donnée dans la référence (Spitzer *et al.* 1959) qui ajuste des données expérimentales :

$$\epsilon_{SiC}(\lambda) = \epsilon_{\infty, SiC} \left(\frac{\omega_{L, SiC}^2 - \omega^2 - i\gamma_{SiC}\omega}{\omega_{T, SiC}^2 - \omega^2 - i\gamma_{SiC}\omega} \right) \quad (5.1)$$

où $\epsilon_{\infty, SiC} = 6.7$, $\frac{2\pi c}{\omega_{L, SiC}} = 10.32\mu\text{m}$, $\frac{2\pi c}{\omega_{T, SiC}} = 12.61\mu\text{m}$, $\frac{\gamma_{SiC}}{\omega_{T, SiC}} = 6 \times 10^{-3}$. Pour la modélisation de l'or, j'ai ajusté un modèle de Drude aux données de (Palik 1985) :

$$\epsilon_{Au} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma_{Au}\omega} \quad (5.2)$$

où $\frac{2\pi c}{\omega_p} = 0.159\mu\text{m}$ et $\frac{\gamma_{Au}}{\omega_p} = 0.0077$. La structure optimisée possède les caractéristiques géométriques suivantes : $h_C = 187.4\text{nm}$, $w_C = 140\text{nm}$, $h_S = 35.5\text{nm}$ et $w_S = 10.9\text{nm}$, pour une période de nanostructuration $p = 3273\text{nm} \simeq 0.7\lambda$. En polarisation TE, la réponse du réseau équivaut à celle du miroir associé. La figure (5.2) cartographie les champs au niveau de la nanostructure en polarisation TM.

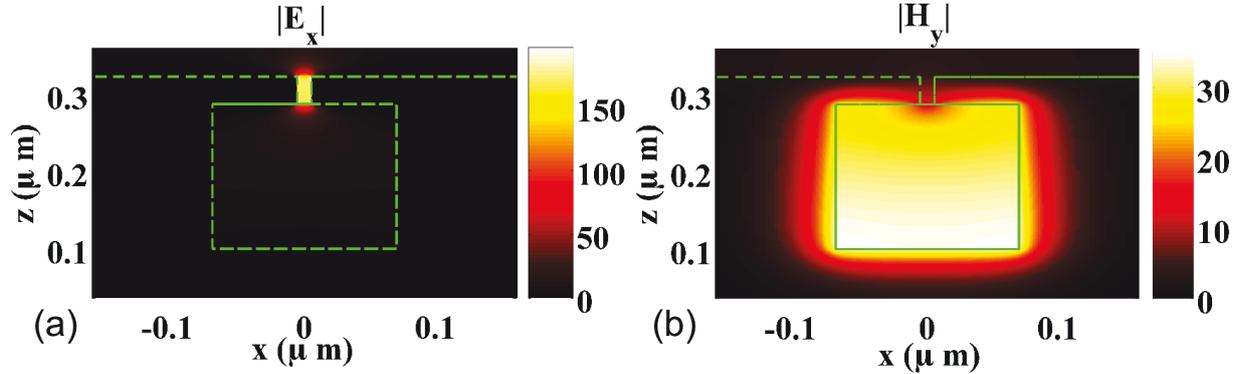


FIGURE 5.2 – Cartographie du module des champs dans une nanostructure du réseau optimisée, calculée à $\lambda = 4.62\mu\text{m}$. L'unité des champs est arbitraire. La structure est excitée par une onde plane en incidence normale, polarisée TM. Elle est représentée en pointillés vert. (a) Composante électrique suivant (Ox). (b) Composante magnétique suivant (Oy).

On observe un champ électrique essentiellement polarisé suivant l'axe (Ox), confiné et uniformément réparti dans la petite fente, correspondant à une exaltation d'un facteur $\simeq 2.10^3$ par rapport à l'amplitude du champ électrique obtenu au dessus du miroir d'or associé. L'excitation étant polarisée TM, seule la composante du champ magnétique polarisée suivant l'axe (Oy) est à valeur non-nulle. On observe un champ magnétique essentiellement confiné dans la grande fente, correspondant à une exaltation d'un facteur $\simeq 15$ par rapport à l'amplitude du champ magnétique obtenu au dessus du miroir d'or associé. On comprend ainsi que la petite fente stocke l'énergie électrique tandis que la grande fente stocke l'énergie magnétique. La première agit ainsi telle un condensateur, tandis que la seconde agit telle une bobine magnétique. On peut donc leur associer respectivement une capacité C et une inductance L. Une onde incidente va alors exciter un circuit quasi-statique LC, dont la longueur d'onde de résonance est déterminée par $\lambda_{res} = 2\pi c\sqrt{LC} \simeq 4.62\mu\text{m}$. C'est cette interprétation que Chevalier *et al.* ont utilisé pour expliquer la résonance du champ électrique.

A présent, on s'intéresse à la réflectivité de cette structure. La figure (5.3) trace la réponse spectrale à une onde plane en incidence normale. On observe un creux de réflectivité autour de la longueur d'onde de résonance $\lambda_{res} = 4.62\mu\text{m}$, sur une largeur spectrale $\Delta\lambda = 0.4\mu\text{m}$. Il est intéressant de noter que la réflectivité minimale de ce creux atteint $R_{min} = 6.10^{-3}$. Ce phénomène curieux est directement lié à la résonance de Helmholtz. Pour mettre en exergue ce lien, effectuons une modélisation simple des processus physiques en jeu.

La figure (5.4) présente les deux étapes de notre modélisation. On compare dans un premier temps la réponse d'un miroir plan à la réponse du réseau nanostructuré. Dans le cas du miroir plan, la réponse à une onde plane incidente E_{inc} d'incidence θ est une onde plane réfléchie E_{r_0} suivant les lois de Snell-Descartes. Le facteur de réflexion en amplitude à

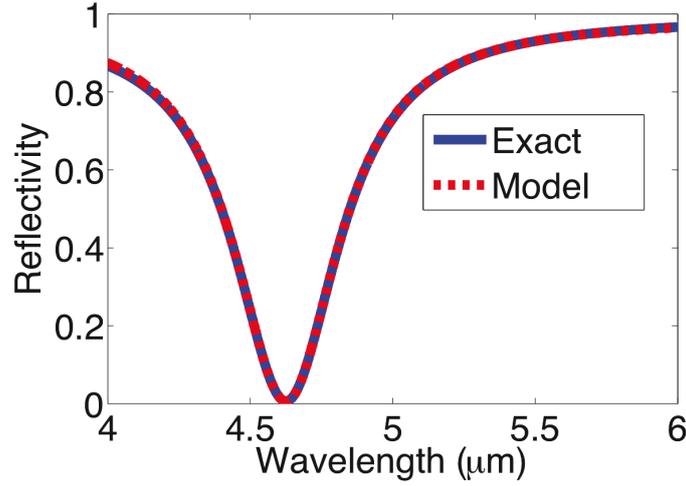


FIGURE 5.3 – Spectre en réflectivité d’une onde plane en incidence normale sur la structure étudiée. L’onde incidente est polarisée TM. Le modèle (pointillé rouge) ajuste bien le calcul exacte (trait plein bleu) sur une grande bande spectrale.

l’interface air/or est donnée en polarisation TM par l’expression $r_0 = \frac{\epsilon_{Au}\gamma_{air} - \epsilon_{air}\gamma_{Au}}{\epsilon_{Au}\gamma_{air} + \epsilon_{air}\gamma_{Au}}$ où $\gamma_j = k_0\sqrt{\epsilon_j - \sin^2(\theta)}$. Dans le cas du réseau, la réflexion du miroir plan équivalent est perturbée par la présence de nanostructures. Ces nanostructures ajoutent un terme de diffusion E_{diff} au champ réfléchi E_{r_0} . Ce champ diffusé provient de l’exaltation du champ électrique dans la petite fente. En effet, en comparant les deux situations, on peut déterminer la densité de courant induite dans la petite fente, par une approche similaire à celle présentée en partie (3.1).

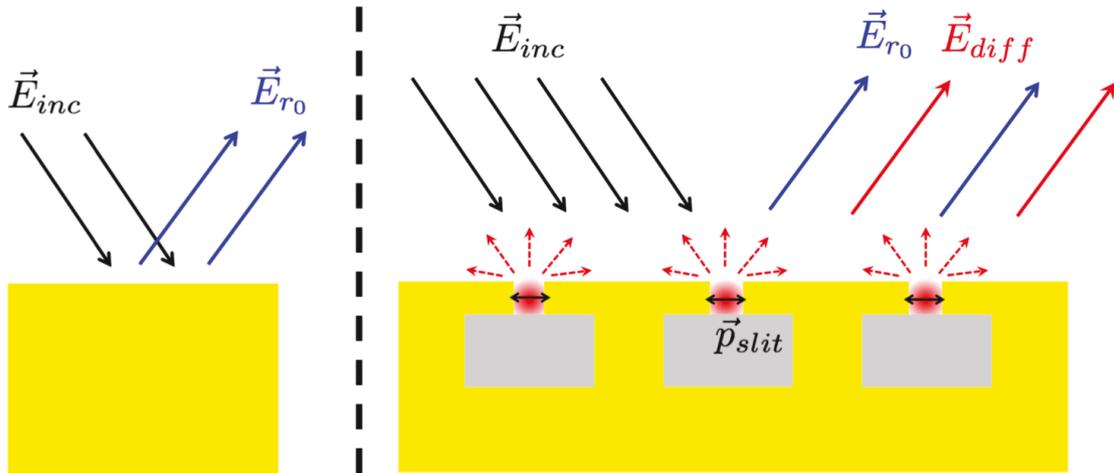


FIGURE 5.4 – Schéma de la modélisation. A gauche : La réponse d’un miroir plan à une onde plane incidente E_{inc} est une onde plane réfléchie E_{r_0} suivant les lois de Snell-Descartes. A droite : A chaque résonateur de Helmholtz peut être associé un dipôle effectif p_{slit} . Chacun rayonne telle une source secondaire cohérente. L’interférence de l’ensemble de ces sources secondaires génère un champ diffracté E_{diff} qui peut être en opposition de phase avec le champ E_{r_0} réfléchi par le miroir massif.

Les matériaux n’étant pas magnétiques, seule la densité de courant électrique $\vec{J}_{ant} = -i\omega\epsilon_0[\epsilon(\vec{r}) - \epsilon_{ref}(\vec{r})]\vec{E}(\vec{r})$ joue le rôle de diffuseur, où ϵ et ϵ_{ref} représentent respective-

ment les distributions spatiales de permittivité diélectrique de la structure complète et du miroir plan de référence, avec $\epsilon_{ref} = 1$ si $z > 0$ et $\epsilon_{ref} = \epsilon_m$ si $z < 0$, ϵ_m étant la constante diélectrique du métal utilisé, et E est la distribution du champ électrique dans le réseau. Puisque le champ électrique est essentiellement confiné dans la petite fente, chacune d'entre-elle constitue un diffuseur. Les dimensions de la fente étant deux ordres de grandeur plus petites que la longueur d'onde, on peut modéliser chacun de ces diffuseurs par un dipôle électrique de moment :

$$\vec{p}_{slit} = \int \epsilon_0 [\epsilon(\vec{r}) - \epsilon_{ref}(\vec{r})] \vec{E}(\vec{r}) d^3\vec{r}. \quad (5.3)$$

où l'intégration est effectuée sur le volume d'une période du réseau. Puisque le champ électrique \vec{E} est résonnant dans la petite fente, le moment dipolaire électrique de ces diffuseurs est également résonnant. L'ensemble de ces diffuseurs constitue un réseau de sources secondaires cohérentes dont l'interférence génère le champ électrique diffusé \vec{E}_{diff} . Ce champ diffusé est ainsi résonnant, et pour une longueur d'onde suffisamment proche de la résonance $\lambda \simeq Re(\lambda_{res})$, l'amplitude de ce champ peut s'écrire :

$$E_{diff} = \frac{A}{\lambda - \lambda_{res}} E_{inc} \quad (5.4)$$

où $A, \lambda_p \in \mathbb{C}$ et λ_{res} représente le pôle en longueur d'onde de cette résonance. La période du réseau étant choisie inférieure à la longueur d'onde de résonance, l'interférence n'est constructive que dans la direction de réflexion de Snell-Descartes. Finalement, le facteur de réflexion R peut s'écrire à partir de l'interférence du champ réfléchi E_{r0} par le miroir et du champ diffusé E_{diff} par les fentes, et proche de la résonance, on a :

$$R(\lambda) = \frac{|E_{r0} + E_{diff}|^2}{|E_{inc}|^2} = \left| r_0 + \frac{A}{\lambda - \lambda_{res}} \right|^2 = R_0 \left| \frac{\lambda - \lambda_z}{\lambda - \lambda_{res}} \right|^2 \quad (5.5)$$

où $R_0 = |r_0|^2$ et $\lambda_z = \lambda_{res} - A/r_0 \in \mathbb{C}$. Cette interférence entre une résonance étroite et un fond non-résonant est connue dans la littérature sous le nom de résonance Fano (Fano 1961; Luk'yanchuk *et al.* 2010). Cette modélisation simple montre que l'amplitude du champ électrique réfléchi par le réseau équivaut à celle du miroir associé, pondérée par un facteur comprenant un zéro λ_z et un pôle λ_{res} complexes. Le creux de réflectivité des réseaux métalliques est connu depuis une centaine d'année, à la suite des observations par Wood (Wood 1902). L'anomalie de Wood a été retrouvée numériquement au début des années 70 (Maystre 1972) et une formulation de la réflectivité pour des réseaux métalliques a abouti à la partie droite de l'équation (5.5) en partant de considérations plus générales de symétrie et de réciprocité (?; Maystre 1982). Des études récentes, se basant sur le théorème de factorisation de Weierstrass pour les fonctions entières, ont montré que de manière générale, les propriétés de diffusion de la lumière par des nanostructures peuvent être totalement décrites en connaissant tous les zéros et les pôles complexes des matrices de diffusion ((a) Grigoriev *et al.* 2013; (b) Grigoriev *et al.* 2013). L'originalité de notre approche réside dans le fait qu'on exhibe le mode résonnant. La relation linéaire entre λ_z , λ_{res} et A montre que le minimum de réflectivité est la signature de la résonance électromagnétique dans le réseau de nanostructures. Si l'amplitude du champ produit dans la petite fente est suffisamment grande à résonance, la partie imaginaire du zéro complexe $Im(\lambda_z)$ peut être compensée, et la réflectivité peut alors atteindre une valeur proche de 0 lorsque $\lambda = Re(\lambda_z)$. Pour vérifier la justesse de notre modélisation, j'ai cherché un pôle et un zéro complexe de l'amplitude du champ réfléchi, en utilisant la méthode itérative décrite dans l'article (Bai *et al.* 2013).

J'ai trouvé $\lambda_{res} = 4.626 + 0.2238i$ et $\lambda_z = 4.625 + 0.0179i$. La réflectivité donnée par le modèle est comparée au calcul exacte sur la figure (5.3). On observe un très bon accord sur une bande spectrale $\Delta\lambda > 2\mu\text{m}$.

La forte exaltation de champ dans la nanostructure est une caractéristique intéressante dans le cadre du SEIRA. En introduisant dans la petite fente des molécules résonnantes à une fréquence proche de celle de la nanostructure, on augmente fortement l'interaction de ces molécules avec l'onde incidente. On peut donc espérer voir la signature spectrale de ces molécules, même si ces dernières possèdent un faible facteur de qualité. Dans la partie suivante, on étudie l'interaction d'une couche de molécules avec la nanostructure.

5.3 Effet d'un dépôt d'une couche de CO solide

Dans cette partie, on s'intéresse à l'effet de l'ajout d'une couche de molécules résonnantes sur le réseau (voir figure 5.5).

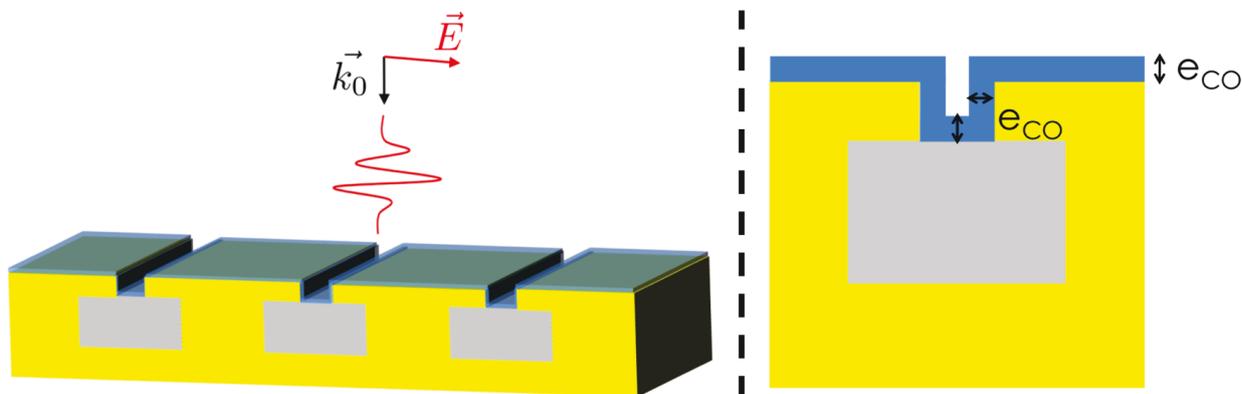


FIGURE 5.5 – Schéma de la structure modélisée. Une couche de CO solide est déposée uniformément sur le réseau.

A l'instar de certains groupes de recherche (Ando *et al.* 2003; Sirinakis *et al.* 2006; Bochterle *et al.* 2012), on a choisi d'étudier théoriquement l'interaction de la structure avec des molécules de monoxyde de carbone, car le CO est une molécule modèle en physique moléculaire. On étudie l'effet d'un dépôt d'une couche de CO solide à 15K, parce qu'il est possible de contrôler expérimentalement l'épaisseur déposée à l'échelle monoatomique (Bochterle *et al.* 2012). Cela permet alors de connaître la précision du système de détection à une monocouche près. Pour la modélisation du CO solide, on ajuste un modèle de Drude-Lorentz aux valeurs de la permittivité diélectrique mesurée dans la référence (Palumbo *et al.* 2006). On obtient l'expression suivante :

$$\epsilon_{CO}(\lambda) = \epsilon_{\infty,CO} \left(\frac{\omega_{L,CO}^2 - \omega^2 - i\gamma_{CO}\omega}{\omega_{T,CO}^2 - \omega^2 - i\gamma_{CO}\omega} \right) \quad (5.6)$$

où $\frac{2\pi c}{\omega_{L,CO}} = 4.6674\mu\text{m}$, $\frac{2\pi c}{\omega_{T,CO}} = 4.6762\mu\text{m}$, $\frac{\gamma_{CO}}{\omega_{T,CO}} = 3.774 \times 10^{-4}$. La figure (5.6) trace la permittivité en fonction de la longueur d'onde.

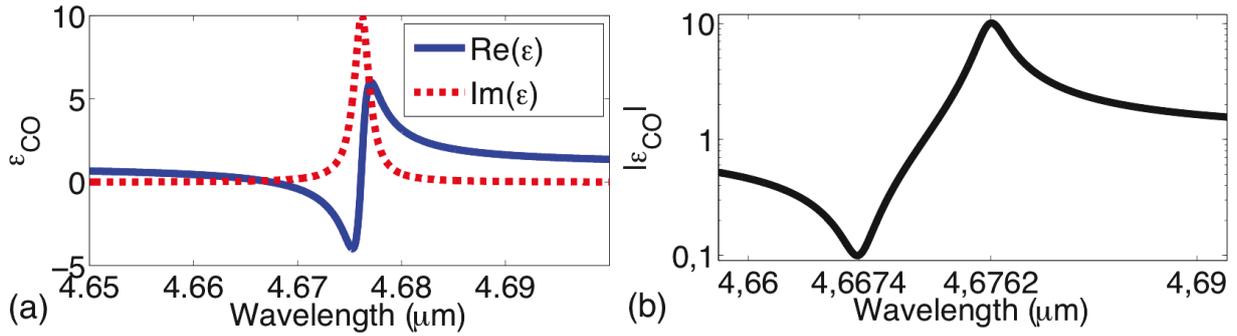


FIGURE 5.6 – Evolution spectrale de la permittivité diélectrique utilisée pour la modélisation de la couche de CO solide. (a) En partie réelle et en partie imaginaire. (b) En module. Notez l'échelle logarithmique.

On observe sur la figure (5.6)(a) une amplitude de la partie réelle et de la partie imaginaire pouvant atteindre plusieurs unités. Ces grandes valeurs de la permittivité sont une conséquence de la forte densité et de l'interaction cohérente entre les molécules de CO. On note sur la figure (5.6)(b) qu'à $\lambda_{L,CO} = 4.6674\mu\text{m}$, $|\epsilon|$ prend une valeur minimale $|\epsilon| \simeq 0.1 \ll 1$ sur une largeur spectrale $\delta\lambda = 3\text{nm}$. Lorsque, pour un matériau donné, cette gamme de longueur d'onde existe, la littérature y fait référence par la dénomination de régime ENZ pour l'anglais *Epsilon Near Zero*. Ce régime peut induire plusieurs effets tels que l'absorption exaltée dans une fine couche (c'est l'effet Berreman, (Berreman 1963)) ou encore le super-couplage et la transmission d'énergie électromagnétique à travers des guides d'ondes de formes arbitraires et de section transverse hautement sub-longueur d'onde (Silveirinha et Engheta 2006; Silveirinha et Engheta 2007; Edwards *et al.* 2008). On note également un maximum $|\epsilon| \simeq 10 \gg 1$ à $\lambda_{T,CO} = 4.6762\mu\text{m}$, sur une largeur spectrale de $\delta\lambda = 3\text{nm}$. Cette longueur d'onde correspond à un pic d'absorption pour une onde plane en incidence normale sur une simple couche de molécules. Les minimum et maximum de $|\epsilon|$ sont intrinsèquement liés dans le cas d'un modèle de Drude-Lorentz. En effet, on peut montrer que dans ce cas, $|\epsilon(\lambda_{L,CO})| \simeq 1/|\epsilon(\lambda_{T,CO})|$. Ainsi dans le cadre de ce modèle, lorsqu'il existe un maximum $|\epsilon| \gg 1$, il existe également un régime ENZ.

La figure (5.7) trace le spectre en réflectivité du réseau sur lequel on a déposé une couche de CO solide de différentes épaisseurs.

On y distingue deux régimes : d'une part, un régime de faible épaisseur, pour lequel la petite fente n'est que partiellement remplie. D'autre part, un régime de grande épaisseur, pour lequel la petite fente est totalement remplie. Pour le premier régime, on observe deux pics fins de réflectivité dans le creux de réflectivité observé pour un réseau seul. Le premier pic apparaît autour de $\lambda_{L,CO}$, tandis que le second, d'amplitude plus faible, apparaît autour de $\lambda_{T,CO}$. L'amplitude de ces pics augmente à mesure que l'épaisseur de CO augmente. Notons d'emblée que pour une épaisseur de 0.2nm correspondant à environ une monocouche moléculaire, la réflectivité passe de moins de 1% sans molécules à environ 30%. Il y a donc ici un système très prometteur pour la détection ultrasensible. Pour le second régime, on observe d'abord un large pic de largeur $\Delta\lambda \simeq 0.2\mu\text{m}$ au milieu du creux de réflectivité observé pour un réseau seul. Ensuite, on observe un creux fin de réflectivité autour de $\lambda_{L,CO}$. A mesure que l'épaisseur de CO augmente, la profondeur du creux augmente, tandis que l'amplitude du large pic reste inchangée.

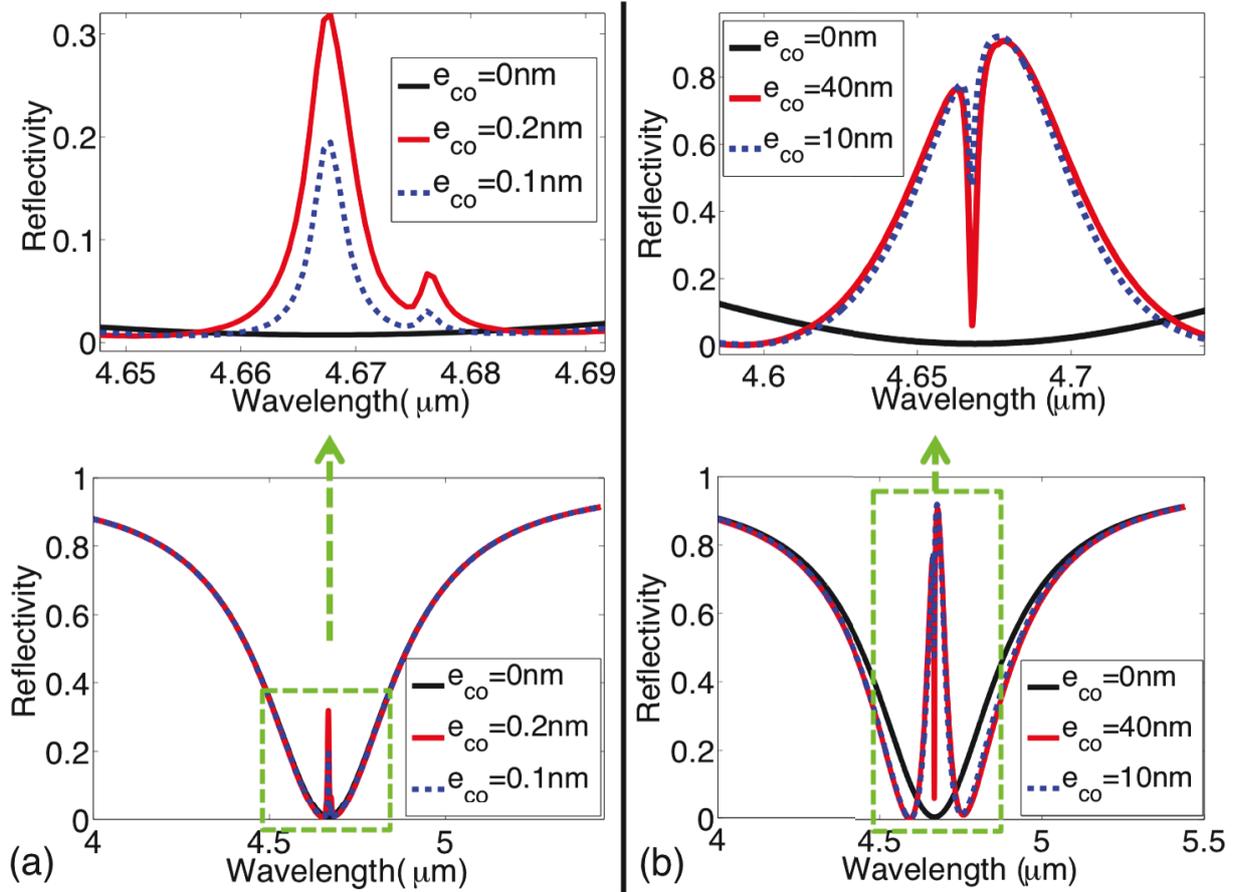


FIGURE 5.7 – Evolution du spectre en réflectivité d'une onde plane en incidence normale en fonction de l'épaisseur de CO solide déposée. L'onde incidente est polarisée TM. En haut : zoom de l'encadré vert. (a) L'épaisseur de CO solide est très inférieure à la demi-largeur de la fente $e_{CO} \ll w_s/2$. On note deux pics fins de réflectivité autour de $\lambda_{L,CO} = 4.6674\mu\text{m}$ et de $\lambda_{T,CO} = 4.6762\mu\text{m}$. (b) L'épaisseur de CO solide est $e_{CO} \gg w_s/2$. On note un large pic de réflectivité ainsi qu'un creux fin de réflectivité autour de $\lambda_{L,CO}$.

La figure (5.8) présente l'évolution de la réflectivité en fonction de l'épaisseur de CO solide ajoutée, calculée aux longueurs d'ondes qui correspondent aux deux pics en régime de faible épaisseur. Autour de $\lambda_{L,CO}$ on observe une forte augmentation non-linéaire de la réflectivité pour une épaisseur $e_{CO} \lesssim 2\text{nm}$ puis une diminution moins abrupte, quasi-linéaire pour des épaisseurs supérieures. Autour de $\lambda_{T,CO}$, on observe une augmentation quasi-linéaire de la réflectivité jusqu'à une épaisseur $e_{CO} \simeq w_s/2 = 5.4\text{nm}$. Pour une épaisseur supérieure, la réflectivité n'évolue pas. On retrouve ainsi les caractéristiques des régimes de faible et de grande épaisseurs.

Une interprétation du régime de grande épaisseur peut être trouvée en annexe (5.7.2). Etudions en détail le régime de faible épaisseur. Pour comprendre l'origine des pics de réflectivité, on trace sur la figure (5.9) une carte des densités de courant $\vec{J}_{ant} = -i\omega\epsilon_0[\epsilon(\vec{r}) - \epsilon_{ref}(\vec{r})]\vec{E}(\vec{r})$ dans un résonateur de Helmholtz, en l'absence ou en présence de 2nm de CO solide. Le calcul est effectué à $\lambda \simeq \lambda_{L,CO}$.

En l'absence de molécules, on observe une densité de courant uniformément répartie dans le volume d'air de la petite fente. En présence des molécules, l'amplitude de la densité de

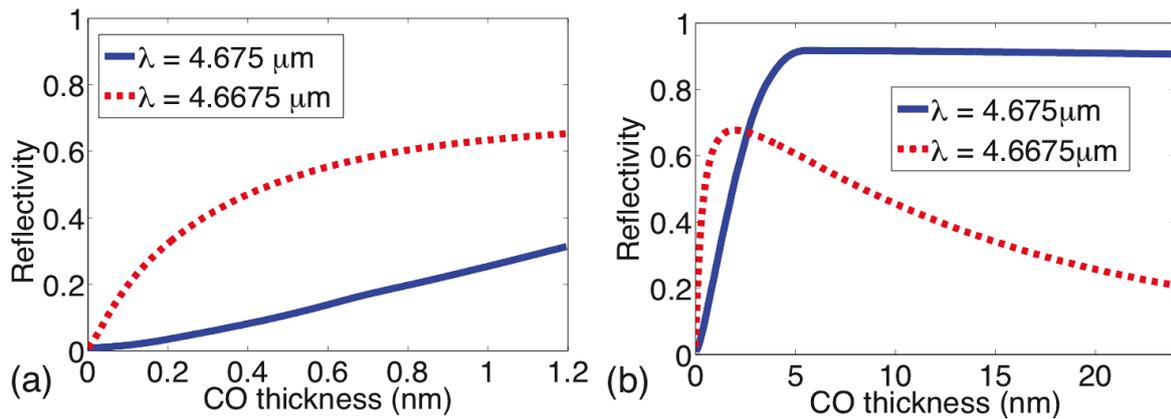


FIGURE 5.8 – Evolution de la réflectivité d’une onde plane en incidence normale sur la structure optimisée en fonction de l’épaisseur de CO solide déposée, calculée aux deux longueurs d’onde $\lambda_{L,CO} \simeq 4.6675 \mu\text{m}$ et $\lambda_{T,CO} \simeq 4.675 \mu\text{m}$. L’onde incidente est polarisée TM. (a) Dans le régime de faible épaisseur $e_{CO} \ll w_S/2$. (b) Dans les deux régimes $e_{CO} \ll w_S/2$ et $e_{CO} \gg w_S/2$.

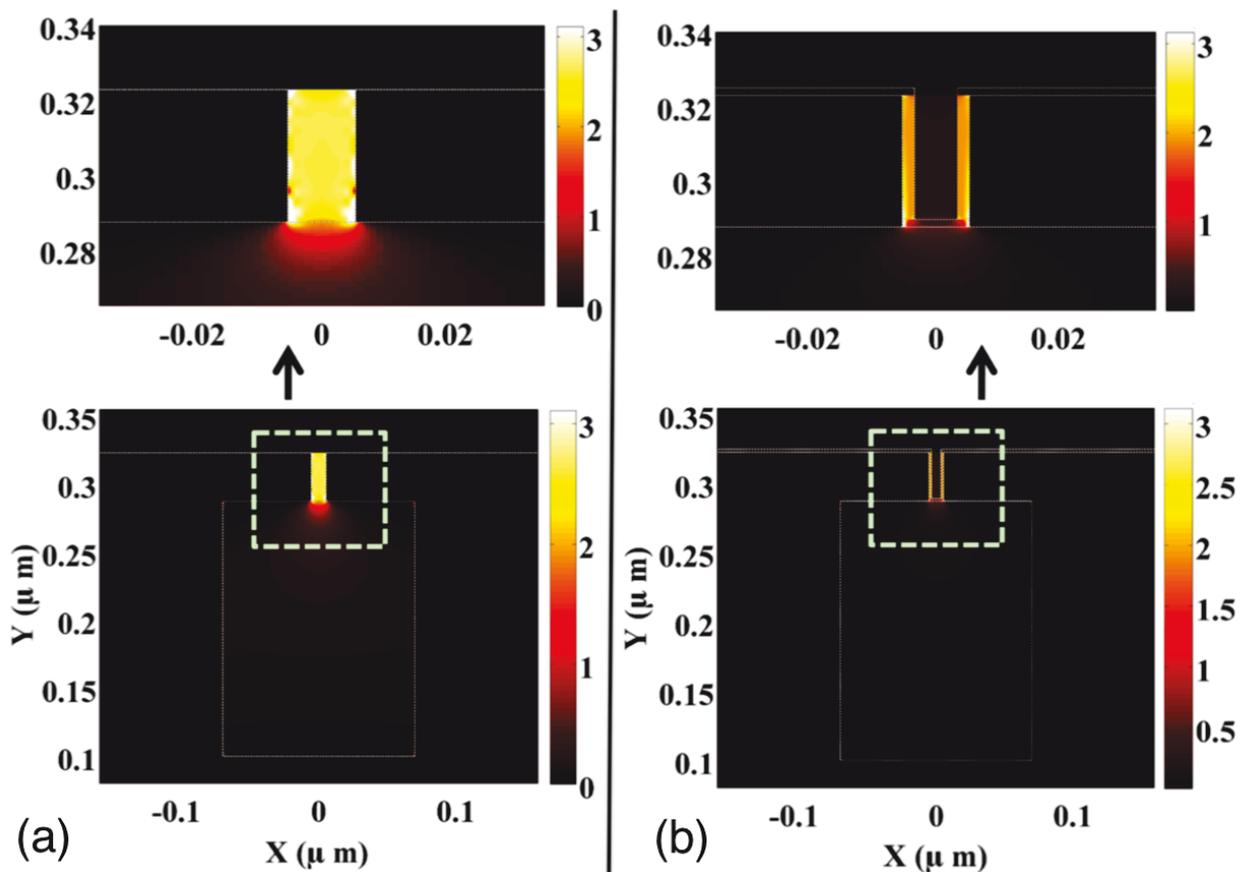


FIGURE 5.9 – Cartographie des densités de courant par rapport à un miroir plan d’or à $\lambda = 4.6675 \mu\text{m}$. En haut : zoom de l’encadré vert. (a) La structure optimisée seule. (b) La structure optimisée sur laquelle une couche de 2nm de CO solide est déposée.

courant est plus faible et répartie uniquement dans le volume de la couche de molécules située dans la fente. La même cartographie à $\lambda \simeq \lambda_{T,CO}$ aurait montré une densité de

courant uniformément répartie dans le volume d'air situé dans la fente, avec également une amplitude plus faible que celle de la densité de courant observée en l'absence de molécules. On retiendra qu'en présence de molécules, la densité de courant est plus faible et occupe un volume plus petit qu'en l'absence de molécules. On s'attend donc à l'observation d'une diminution du moment dipolaire de la nano-structure en présence de molécules.

La figure (5.10) compare le moment dipolaire $\vec{p}_{slit} = \int \epsilon_0[\epsilon(\vec{r}) - \epsilon_{ref}(\vec{r})]\vec{E}(\vec{r})d^3\vec{r}$ calculé en l'absence et en présence de molécules.

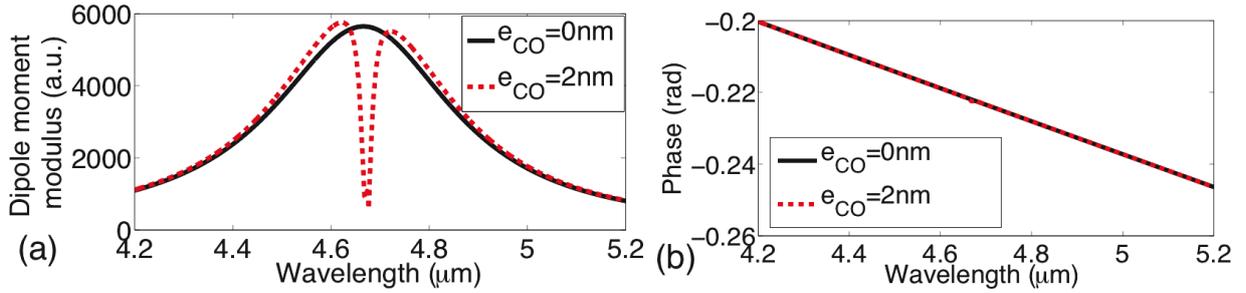


FIGURE 5.10 – Comparaison des spectres du moment dipolaire p_{slit} intégré sur une période du réseau, en l'absence et en présence d'une couche de CO solide. Le réseau est excité par une onde plane polarisée TM en incidence normale. (a) En module. (b) En phase.

L'intégration est effectuée ici sur le volume d'un unique résonateur du réseau. En l'absence de molécules, on observe une résonance du moment dipolaire, en accord avec la théorie exposée en partie (5.2). Un maximum est observé à $\lambda \simeq \lambda'_{res} = Re(\lambda_{res})$. En présence de molécules, le module du moment dipolaire s'effondre dans la gamme spectrale où $\epsilon_{CO} \neq 1$. En revanche, la phase du moment dipolaire ne varie pas en présence de molécules. Ainsi, lorsque le moment dipolaire de la nano-structure est fortement amoindri, le champ diffracté \vec{E}_{diff} est également diminué et interfère moins avec le champ réfléchi \vec{E}_{r0} . En conséquence, le facteur de réflexion devient $R(\lambda) \simeq R_0$ sur cette gamme spectrale, ce qui explique la présence de pics de réflectivité dans le régime de faible épaisseur.

La figure (5.11) trace le spectre des différentes contributions au moment dipolaire \vec{p}_{slit} en présence de CO solide, intégrées sur le volume de la couche de molécules \vec{p}_{mol} , sur le volume d'air \vec{p}_{air} ou sur le volume de la grande fente de SiC \vec{p}_{SiC} , ces contributions étant telles que $\vec{p}_{slit} = \vec{p}_{mol} + \vec{p}_{air} + \vec{p}_{SiC}$.

La figure (5.11)(a) montre que chaque contribution possède un moment dipolaire d'amplitude comparable, avec un minimum global autour de $\lambda = 4.67\mu\text{m}$. Toutefois, la figure (5.11)(b) montre que la phase de chaque contribution varie peu. Ainsi, le minimum observé pour $|p_{slit}|$ ne provient pas d'une interférence destructive entre chaque contribution, mais simplement de l'absence de résonance de la nanostructure autour de $\lambda = 4.67\mu\text{m}$. En d'autres termes, la présence d'une très faible quantité de matière absorbante dans la zone de très grand champ conduit à des pertes suffisantes pour annihiler la résonance. Dès lors, l'interférence Fano entre la cavité et le miroir est fortement réduite. En annexe (5.7.1), on montre qu'on peut interpréter ce phénomène par un décalage de la longueur d'onde de résonance complexe. Cela se comprend à partir d'une modélisation du système sous forme de circuit électrique : l'introduction de molécules résonnantes dans la petite fente modifie son impédance équivalente, qui dépend désormais de la fréquence. Aux fréquences où l'impédance électrique de la fente est fortement modifiée par la couche de molécules, la longueur

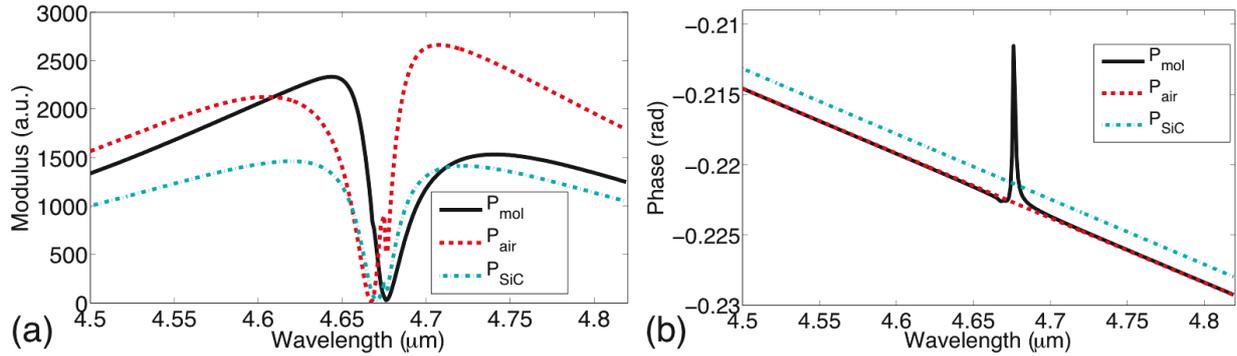


FIGURE 5.11 – Spectre des différentes contributions au moment dipolaire $\vec{p}_{slit} = \vec{p}_{mol} + \vec{p}_{air} + \vec{p}_{SiC}$ en présence d'une couche de $e_{CO} = 2nm$ de CO solide. Le réseau est excité par une onde plane polarisée TM en incidence normale. (a) En module. (b) En phase.

d'onde de résonance complexe est fortement décalé, ce qui se traduit par un pic dans le spectre de réflectivité de la structure, ou encore par un moment dipolaire de la fente proche de 0. Puisque ces pics de réflectivités n'ont lieu que sur la zone spectrale d'absorption de la molécule, ils représentent une signature spectrale moléculaire pour la détection.

L'étude des variations de la réflectivité du réseau en fonction d'un dépôt théorique de CO solide a permis de comprendre les mécanismes physiques à l'origine de ces variations. Dans la partie suivante, on utilise ces différents résultats pour évaluer de potentiel du système à détecter des molécules.

5.4 Application à la détection de molécules

On a vu dans la partie précédente que le spectre en réflectivité de la structure peut être fortement modifié en présence de molécules résonnantes, et que cette modification du spectre représente une signature moléculaire pour la détection. La sensibilité du système de détection dépend de la sensibilité de la réflectivité à une variation infinitésimale de la longueur d'onde de résonance $\frac{\delta R}{\delta \lambda_{res}}$. La figure (5.12)(a) trace cette sensibilité à partir de l'équation (5.5). Au maximum, la sensibilité du système ne dépasse pas $\frac{\delta R}{\delta \lambda_{res}} \simeq 3\mu m^{-1}$, que la variation soit réelle ou imaginaire pure. Trois gammes spectrales sont intéressantes : (i) deux gammes pour lesquelles la réflectivité évolue quasi-linéairement avec la longueur d'onde, autour de $\lambda \simeq 4.45\mu m$ et $\lambda \simeq 4.75\mu m$ (ii) la gamme pour laquelle la réflectivité est minimale, autour de $4.6\mu m$. Pour ces trois gammes, la sensibilité à une variation réelle et imaginaire pure est la même, de l'ordre de $1\mu m^{-1}$.

On utilise le modèle LC de la longueur d'onde de résonance développé en annexe pour déterminer sa sensibilité à une variation infinitésimale d'épaisseur, en régime de faible épaisseur. On considère trois cas pour lesquels la couche de molécules est caractérisée par : (i) une permittivité diélectrique complexe $\epsilon_{mol} = |\epsilon_{mol}| \frac{1+i}{\sqrt{2}}$ (voir figure (5.12)(b)), (ii) une permittivité diélectrique réelle pure, (iii) une permittivité diélectrique $\epsilon_{mol} = 1 + iIm(\epsilon_{mol})$ (voir figure (5.12)(c)). Les figures (5.12)(b-c) mettent bien en évidence l'intérêt d'un régime ENZ : la sensibilité peut être trois fois plus grande pour $|\epsilon_{mol}| \simeq 0.1$ que pour $|\epsilon_{mol}| \simeq 10$. D'autre part, les figures (5.12)(c-d) montrent une sensibilité équivalente, que le contraste de per-

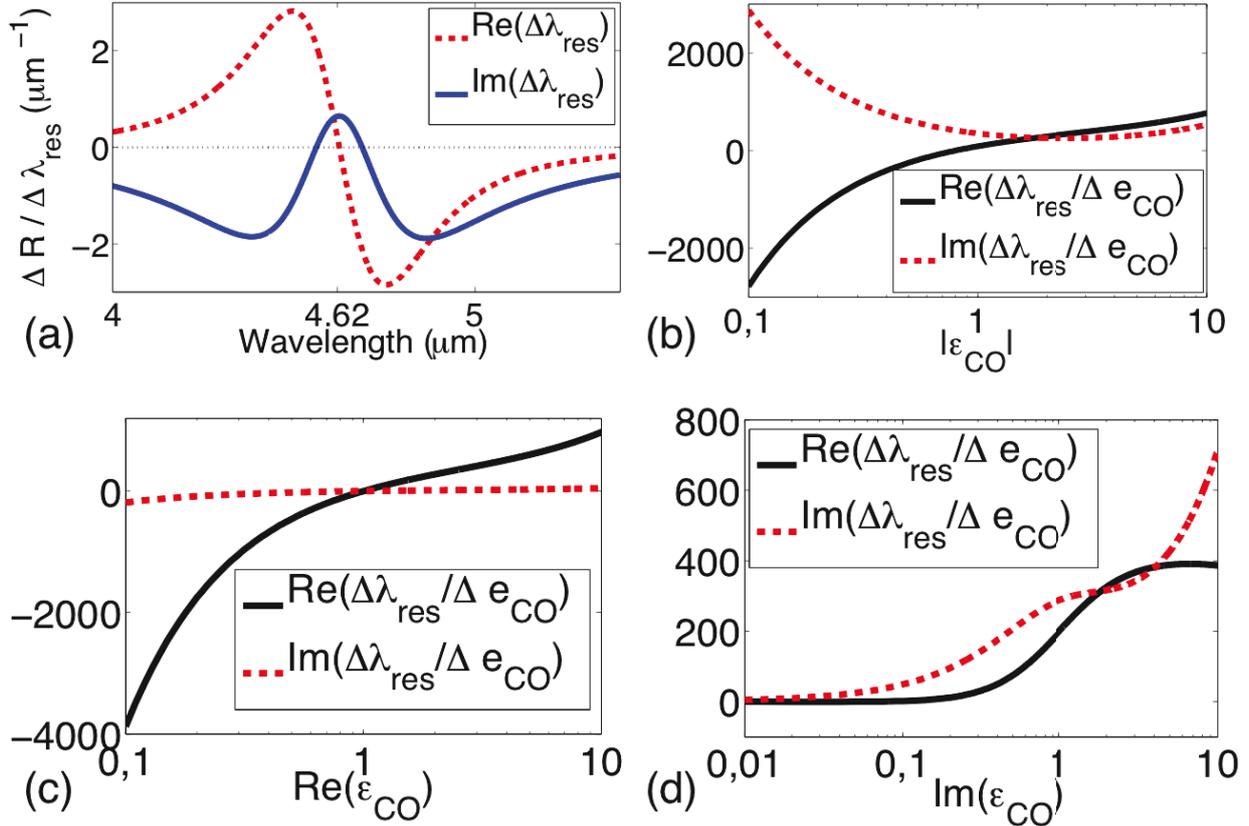


FIGURE 5.12 – Sensibilité du système de détection de molécules en régime de faible épaisseur. Le réseau est éclairé par une onde plane polarisée *TM* en incidence normale. (a) Variation de réflectivité à une variation infinitésimale de la longueur d'onde de résonance réelle ou imaginaire pure. (b) Variation de la longueur d'onde de résonance à un ajout d'une couche infinitésimale de molécules, de permittivité $\epsilon_{mol} = |\epsilon_{mol}|^{\frac{1+i}{\sqrt{2}}}$. (c) Variation de la longueur d'onde de résonance à un ajout d'une couche infinitésimale de molécules, de permittivité réelle pure. (d) Variation de la longueur d'onde de résonance à un ajout d'une couche infinitésimale de molécules, de permittivité $\epsilon_{mol} = 1 + iIm(\epsilon_{mol})$.

mittivité $\epsilon_{mol} - \epsilon_{air}$ soit réel ou imaginaire pur. On retiendra que :

- plus le contraste de permittivité $\epsilon_{mol} - \epsilon_{air}$ est grand, plus la sensibilité de détection est grande,
- un gain en sensibilité peut être obtenu si la couche de molécules possède un régime ENZ,
- pour $|\epsilon_{mol}| \simeq 0.1$, la sensibilité maximale du système à une variation d'épaisseur est de l'ordre de $\left| \frac{\delta R}{\delta e_{mol}} \right| = \left| \frac{\delta R}{\delta \lambda_{res}} \frac{\delta \lambda_{res}}{\delta e_{mol}} \right| \simeq 10^4 \mu m^{-1}$.

Pour connaître le potentiel de ce système de détection, il faut pouvoir comparer ses performances à celles d'un autre système de détection. L'un des intérêts de ce système est la possibilité de détecter des molécules sur fond sombre. En effet, lorsqu'on éclaire la structure à une longueur d'onde correspondant au minimum de réflectivité du réseau, l'intensité réfléchiée est très faible comparativement à l'intensité incidente. Lorsqu'une fine couche de molécules résonnantes est déposée, celle-ci induit une augmentation de la réflectivité : le fond sombre apparaît alors lumineux. En supposant que le détecteur ne soit pas li-

mité aux bruits intrinsèques (bruit de Johnson-Nyquist, bruit de rayonnement thermique de fond, bruit d'obscurité...), le signal mesuré i_S doit être comparé au bruit de Schottky $i_B \propto \sqrt{R(e_{mol} = 0)}$. Dans ces conditions, on voit qu'en travaillant à une longueur d'onde où $R(e_{mol} = 0) \simeq 10^{-2}$, on peut gagner un facteur 10 sur le rapport signal à bruit, plutôt qu'en travaillant à une longueur d'onde où $R(e_{mol} = 0) \simeq 1$. D'autres systèmes de détection se basent sur un minimum de réflectivité. C'est le cas d'un coupleur à prisme Kretschmann. On va donc comparer les performances du réseau de résonateurs de Helmholtz avec un coupleur à prisme. J'ai choisi un prisme d'indice de réfraction $n_{prisme} = 1.5$ sur lequel est déposé une fine couche d'or de 30nm. L'épaisseur d'or a été optimisée pour maximiser la sensibilité en réflectivité en présence d'une couche infinitésimale de CO solide. En figure (5.13) et (5.14), on trace la sensibilité $\frac{\delta R}{\delta e_{CO}}$ au dépôt d'une couche de CO d'épaisseur infinitésimale, respectivement sur le réseau et sur le coupleur Kretschmann, en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence.

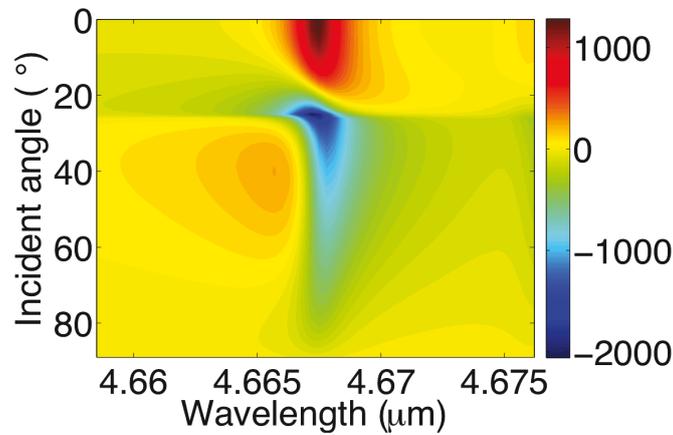


FIGURE 5.13 – Sensibilité de la réflectivité du réseau de Helmholtz au dépôt d'une couche infinitésimale de CO solide, calculée en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence de l'onde plane excitatrice. L'onde incidente est polarisée TM. La sensibilité est exprimée en μm^{-1} .

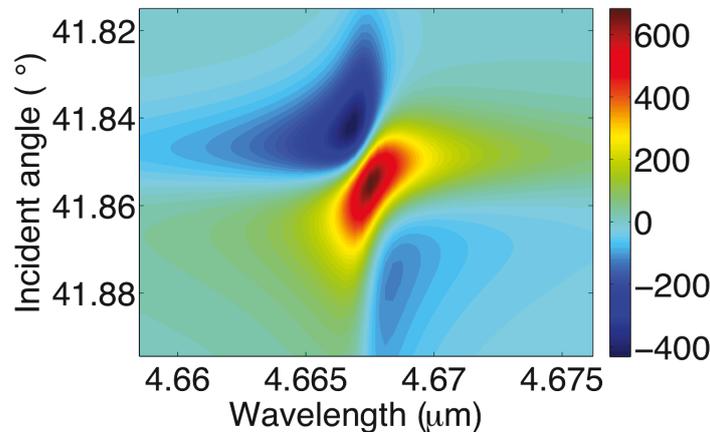


FIGURE 5.14 – Sensibilité de la réflectivité du coupleur de Kretschmann au dépôt d'une couche infinitésimale de CO solide, calculée en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence de l'onde plane excitatrice. L'onde incidente est polarisée TM. La sensibilité est exprimée en μm^{-1} .

On remarque que le maximum de sensibilité apparaît dans les deux cas dans le régime ENZ du CO solide. En outre, les maxima de sensibilité sont du même ordre de grandeur : avec un réseau de Helmholtz, la sensibilité est seulement trois fois plus grande. On pourrait s'attendre à ce que la sensibilité soit bien meilleure dans le cas du réseau de Helmholtz, étant donnée la forte exaltation du champ. En réalité, le réseau permet de réduire le volume de molécules interrogées au volume des fentes, mais ces fentes produisent autant de signal que les molécules déposées sur toute la surface du coupleur de Kretschmann.

On note toutefois une grande différence d'acceptance angulaire. Dans le cas du réseau, la sensibilité est supérieure à $1000\mu\text{m}^{-1}$ sur une plage angulaire de plusieurs dizaines de degré, tandis que le coupleur de Kretschmann possède une acceptance angulaire de l'ordre de $\delta\theta \simeq 0.1^\circ$. Cette différence peut être un avantage majeur. Si on éclaire le prisme avec un faisceau convergeant limité par la diffraction, la très faible acceptance angulaire du coupleur de Kretschmann assure que le signal soit négligeable par rapport à l'intensité incidente. Au contraire, la grande acceptance angulaire du réseau peut permettre d'obtenir un bon signal. Nous allons vérifier cette hypothèse en éclairant un unique résonateur de Helmholtz par un faisceau gaussien convergeant limité par la diffraction (voir figure (5.15)).

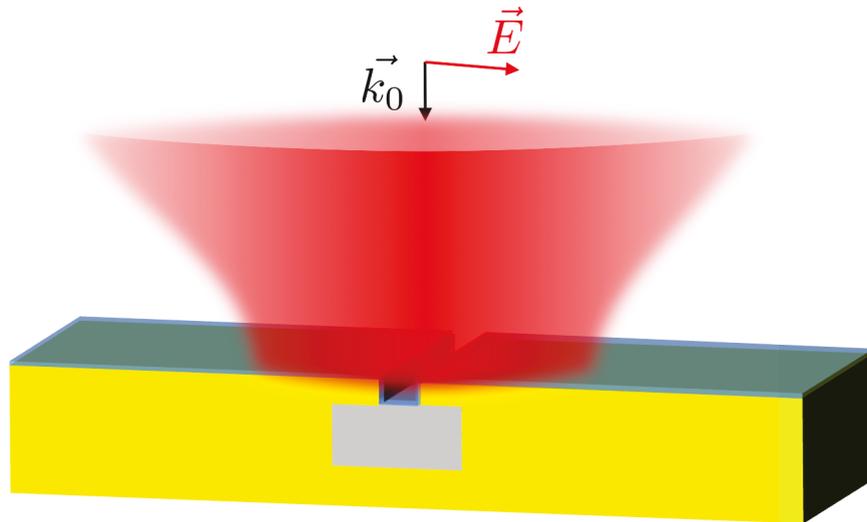


FIGURE 5.15 – Schéma du système de détection à résonateur de Helmholtz unique. Un faisceau gaussien limité par la diffraction et polarisé TM éclaire en incidence normale un unique résonateur de Helmholtz sur lequel est déposée une couche de molécules résonnantes.

La propagation du faisceau gaussien est calculée afin que son waist se situe dans le plan du résonateur. Le faisceau correspond à la focalisation par un objectif d'ouverture numérique $O.N. = 0.85$ limité par la diffraction.

Sur la figure (5.16)(a) on observe un creux de réflectivité autour de $\lambda \simeq Re(\lambda_{res})$ en l'absence de molécules, avec un minimum de $R(e_{CO} = 0) \simeq 40\%$. Lorsqu'on ajoute une couche mono-moléculaire de CO solide ($e_{CO} = 0.16\text{nm}$, voir (Bochterle *et al.* 2012)), on aperçoit clairement une augmentation de la réflectivité de $\Delta R = 15\%$ en valeur absolue. La figure (5.16)(b) montre la présence de régimes de faible et de grande épaisseurs. Elle montre également que le signal détecté n'est pas un effet du régime ENZ mais provient bien du contraste de permittivité $\epsilon_{mol} - \epsilon_{air}$.

Ces résultats démontrent le potentiel des résonateurs de Helmholtz pour la détection de

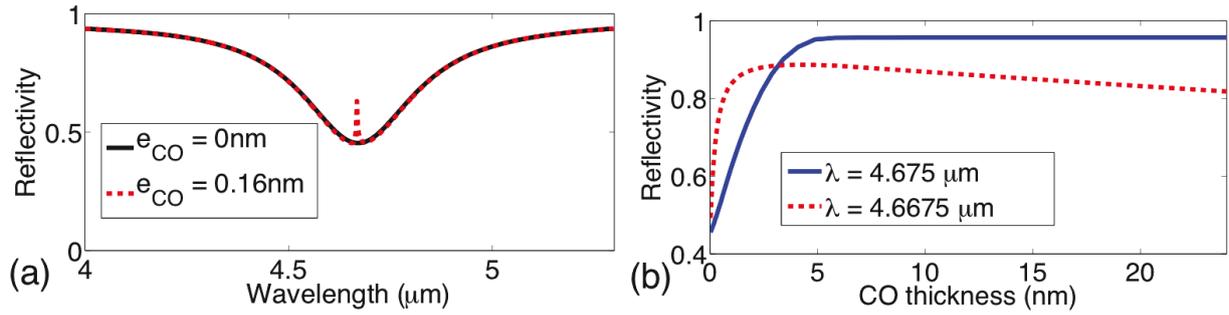


FIGURE 5.16 – (a) Spectre en réflectivité du résonateur de Helmholtz éclairé par un faisceau gaussien polarisé TM , en l’absence et en présence d’une couche mono-moléculaire de CO solide. (b) Evolution de la réflectivité en fonction de l’épaisseur de CO solide déposée, pour $\lambda \simeq \lambda_{L,CO}$ et pour $\lambda \simeq \lambda_{T,CO}$.

molécules sur une très faible surface d’interrogation. En combinant un faisceau convergent limité par la diffraction et un résonateur de Helmholtz réparti sur un carré de surface $S_{det} \simeq 9\mu m^2$, on est capable de détecter de faibles quantités de CO solide déposées, inférieur à une couche mono-moléculaire. En supposant que la distance intermoléculaire est égale à l’épaisseur d’une monocouche $e_{CO} = 0.16nm$, le signal de réflectivité provenant essentiellement des molécules situées dans la fente, on estime qu’à une variation absolue de réflectivité $\Delta R = 10\%$ correspondent environ 10 attomoles détectées (i.e. 10^7 molécules)! Toutefois, un certain nombre de limites de la modélisation effectuée peuvent nuancer ces résultats. Nous allons lister quelques unes de ces limites dans la dernière partie.

5.5 Limites de la modélisation

Dans cette partie, je rassemble quelques limitations sous-jacentes à la modélisation du système de détection. Tout d’abord, les mesures de permittivité du CO solide dans la référence (Palumbo *et al.* 2006) ont été effectuées sur une couche $e_{CO} = 25nm$. Une telle épaisseur fait intervenir un grand nombre de molécules et il est probable que les valeurs extrêmes de la permittivité proviennent d’un effet collectif qui n’a pas lieu d’être pour une couche mono-moléculaire. La permittivité est donc probablement surestimée. Pour la même raison, l’effet du régime ENZ est certainement amoindri. Deux autres causes peuvent modifier fortement la permittivité.

Pour les molécules les plus proches de l’interface métallique, le processus de quenching peut devenir très important. Le taux de déclin de chaque molécule est fortement exalté, ce qui va se traduire par un élargissement spectral de $\Delta\lambda_{CO}$ qui peut atteindre plusieurs ordres de grandeur en fonction de la distance de la molécule à une interface métallique. Un gradient de permittivité diélectrique du CO solide peut s’établir tel que $|\epsilon_{CO}|$ se rapproche de la permittivité de l’air au voisinage d’une interface métallique. Si c’est le cas, seules les molécules les plus éloignées d’une interface métallique contribuent au signal observé. Toutefois, la largeur spectrale γ_{CO} donnée par la mesure (Palumbo *et al.* 2006) est déjà plus grande de plusieurs ordres de grandeur par rapport à la largeur spectrale moléculaire. En effet, lors de la mesure, le CO solide était déposé sur du diazote N_2 solide. Il est possible que le couplage de la vibration de la molécule de CO aux phonons du substrat soit

considérable. Ce couplage introduit une phase aléatoire dans la vibration du CO, ce qui induit un élargissement spectral. En conséquence, on ne peut dire si l'élargissement spectral induit par le métal du nanorésonateur est plus grand que l'élargissement spectral induit par le N_2 lors de la mesure.

Enfin, lorsque la couche de molécules est suffisamment faible, il faut prendre en compte des effets non-locaux. Dans le cadre du SEIRA, un effet a notamment été observé expérimentalement dans le cas de monocouches de CO solide déposées sur des nanoantennes métalliques (Bochterle *et al.* 2012). Une étude récente a également mis en évidence expérimentalement une exaltation amoindrie du signal spectroscopique pour de faibles épaisseurs de molécules déposées sur un réseau de nanoantennes (Neubrech *et al.* 2014). Pour une épaisseur sub-nanométrique, il est probable que l'amortissement de Landau soit prépondérant. Cet effet intervient lorsqu'une molécule est suffisamment proche d'un métal pour que la molécule transfère efficacement son énergie au gaz d'électron libre du métal. Pour cela, il faut que la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement soit satisfaite. La grande quantité de mouvement de l'électron impose un transfert dans le champ proche de la molécule, à une distance de l'ordre de $d_{Landau} \sim \frac{v_F}{\omega} = \lambda \frac{v_F}{2\pi c}$, où v_F est la vitesse de Fermi des électrons dans le métal. Pour l'or à $\lambda = 4.6\mu\text{m}$, $d_{Landau} \sim 3\text{nm}$. Cet effet augmente davantage les pertes ohmiques dans le métal, l'effet du quenching discuté ci-dessus est alors exalté. Outre l'amortissement de Landau, d'autres effets non-locaux peuvent intervenir si le régime ENZ subsiste, même à une distance de plusieurs dizaines de nanomètres. En effet, puisque la permittivité locale est proche de zéro, des effets non-locaux qui apparaissent comme une perturbation d'ordre supérieure à grande distance d'une interface métallique peuvent devenir prépondérant en régime ENZ (David *et al.* 2013).

Pour limiter ces effets, on peut par exemple augmenter la largeur de la petite fente w_s . Pour conserver la longueur d'onde de résonance, on peut également augmenter d'un même facteur la hauteur de la petite fente h_s . Toutefois, une telle modification implique une augmentation de la surface transverse de la petite fente. Le champ électrique y sera donc moins confiné, et l'exaltation en résultera amoindrie, ce qui risque de diminuer la sensibilité du système de détection. Cette sensibilité du système de détection à la largeur de la petite fente peut d'ailleurs provoquer de grandes dispersions de performances à la fabrication.

5.6 Conclusion

Dans ce dernier chapitre, l'application potentielle d'un miroir nanostructuré pour la détection d'une fine couche de molécules résonnantes a été étudiée et discutée. La nanostructure, un résonateur de Hemholtz optique, permet d'exalter de plusieurs ordres de grandeur le champ électrique d'une onde incidente polarisée TM dans une fente nanométrique. Cette exaltation permet de sonder les molécules présentes dans la fine fente. Parce que le système est sensible au spectre d'absorption de la molécule dans l'infrarouge, la détection est spécifique à la molécule. L'autre force de ce système de détection est la très grande acceptation angulaire du résonateur. Comparativement à un système de détection utilisant un coupleur de Kretchmann, le résonateur de Helmholtz optique peut permettre d'obtenir une grande sensibilité de détection à partir d'un faisceau fortement focalisé. Cette propriété permet d'envisager des détecteurs de molécules sur des surfaces d'interrogation micrométriques. Il faut cependant nuancer ces résultats dans les limites de la modélisation. La fabrication de

telles nanostructures et des mesures sensibles de détection de molécules pourront trancher sur les performances et le potentiel de ce système.

5.7 Annexe

5.7.1 Modèle LC du système de détection

Dans cette partie, une modélisation du système de détection est proposée dans le régime de faible épaisseur. La figure (5.17) montre l'effet d'une variation $\Delta\lambda_{res}$ réelle ou imaginaire pure de la longueur d'onde de résonance λ_{res} sur la réflectivité donnée par l'équation (5.5).

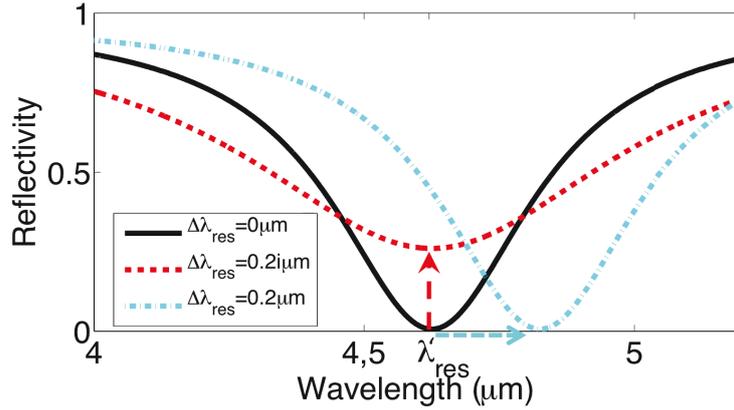


FIGURE 5.17 – Evolution du spectre en réflectivité du réseau donnée par le modèle, en fonction d'une variation de la longueur d'onde de résonance complexe.

On tire deux observations de cette figure. A une variation de la partie réelle de la longueur d'onde de résonance correspond un décalage spectral du minimum de réflectivité. A une variation de la partie imaginaire de la longueur d'onde de résonance correspond une modification de la profondeur du minimum de réflectivité. Ces deux variations peuvent contribuer à une augmentation de la réflectivité à la longueur d'onde correspondant au minimum de réflectivité du réseau seul. Pour comprendre l'origine de cette variation de longueur d'onde par l'ajout d'une couche de molécules, nous allons utiliser un simple modèle de circuit électrique LC pour exprimer la longueur d'onde de résonance. Puisque les matériaux sont non-magnétiques, l'inductance de la grande fente ne dépend pas du dépôt de molécules sur la structure. On cherche à modéliser une variation de la longueur d'onde de résonance, on considèrera donc l'inductance de la grande fente comme une constante L du problème. Il reste à modéliser l'impédance de la petite fente.

Un calcul supplémentaire (non-présenté dans ce manuscrit) montre que la partie supérieure de la couche de CO solide (voir figure (5.18)(a)) ne contribue qu'à $\lesssim 0.1\%$ du moment dipolaire p_{mol} , sur toute la gamme spectrale d'intérêt. En effet, le champ \vec{E} est essentiellement confiné dans la fente. En outre, le contraste de permittivité $[\epsilon(\vec{r}) - \epsilon_{ref}(\vec{r})]$ est un à deux ordres de grandeur supérieur dans la fente par rapport à la partie supérieure. Ce qui explique que seul le volume de molécules compris dans la petite fente contribue à la valeur de p_{mol} . Ainsi, le signal de détection provient essentiellement des molécules situées dans la petite fente.

La figure (5.19) montre que le volume de la petite fente contribue à plus de 2/3 du moment dipolaire total p sur une gamme spectrale où $\epsilon_{CO} \simeq 1$, le tiers restant provenant de la

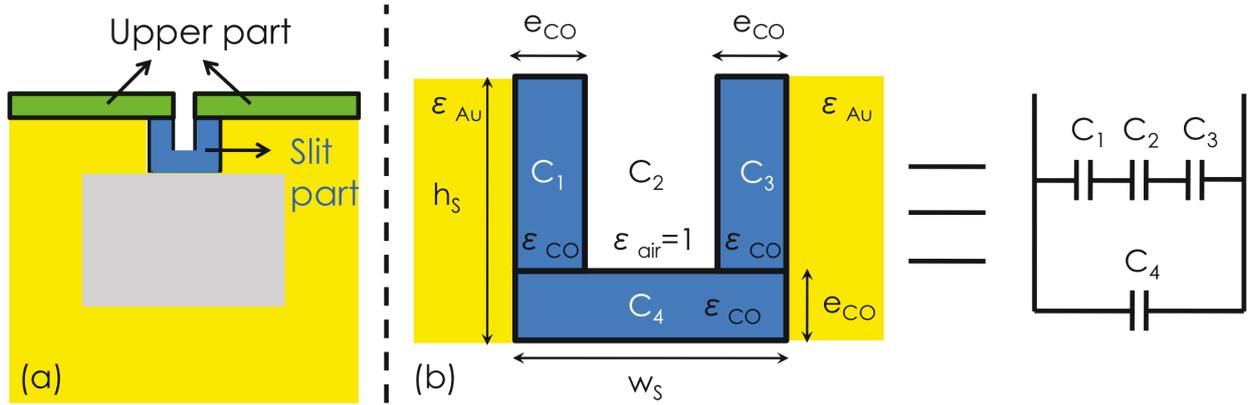


FIGURE 5.18 – (a) Schéma permettant de distinguer la partie supérieure de la couche de CO solide, de la partie comprise dans le volume de la fente. (b) Décomposition de la structure de la petite fente et son schéma électrique équivalent comprenant 4 condensateurs de capacités C_1 , C_2 , C_3 , et C_4 .

grande fente de SiC. D'autre part, cette figure montre également que la contribution de la petite fente suffit à décrire le minimum du moment dipolaire p lorsque $\epsilon_{CO} \neq 1$.

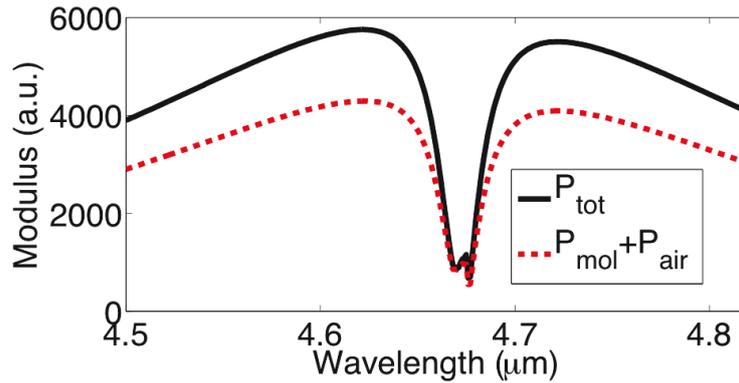


FIGURE 5.19 – Comparaison des spectres du moment dipolaire p intégré sur le volume total d'une période spatiale du réseau avec la contribution du volume de la petite fente.

Par souci de simplicité, nous allons donc modéliser la capacité équivalente de la structure en ne prenant en compte que le volume de la petite fente. On néglige alors la capacité équivalente aux effets de bord dans le SiC. La figure (5.18)(b) présente le schéma électrique équivalent à la petite fente : la partie haute de la petite fente peut être modélisée par trois condensateurs de capacités C_1 , C_2 et C_3 en série, et la partie basse est associée en parallèle, modélisée par un condensateur de capacité C_4 . Un modèle électrostatique de plaques chargées uniformément et séparées d'une distance infinitésimale permet de déduire les expressions suivantes des capacités :

$$C_1 = C_3 = \epsilon_{CO} \frac{(h_s - e_{CO})D}{e_{CO}}, \quad (5.7)$$

$$C_2 = \epsilon_{air} \frac{(h_s - e_{CO})D}{w_s - 2e_{CO}}, \quad (5.8)$$

et

$$C_4 = \epsilon_{CO} \frac{e_{CO} D}{w_s} \quad (5.9)$$

où D est la longueur des fentes du réseau. Notons que puisque ϵ_{CO} est complexe, C_1 , C_3 et C_4 sont en fait des capacités complexes qui incluent donc des résistances bien que cela n'apparaisse pas explicitement. Selon ce modèle, la capacité équivalente du réseau est donnée par l'expression :

$$C_{eq} = \frac{1}{\frac{1}{C_1} + \frac{1}{C_2} + \frac{1}{C_3}} + C_4 = D \left(\frac{h_s - e_{CO}}{\frac{2e_{CO}}{\epsilon_{CO}} + \frac{w_s - 2e_{CO}}{\epsilon_{air}}} + \epsilon_{CO} \frac{e_{CO}}{w_s} \right) = C_0 \frac{1 + \frac{e_{CO}}{h_s} \left(\frac{\epsilon_{CO} - \epsilon_{air}}{\epsilon_{air}} \right) \left(1 - \frac{2e_{CO}}{w_s} \right)}{1 - \frac{2e_{CO}}{w_s} \left(\frac{\epsilon_{CO} - \epsilon_{air}}{\epsilon_{CO}} \right)}, \quad (5.10)$$

où $C_0 = \epsilon_{air} D \frac{h_s}{w_s}$ est la capacité de la petite fente en l'absence de molécules. On en déduit alors la longueur d'onde de résonance complexe de la structure :

$$\lambda_{res}(e_{CO}, \epsilon_{CO}) = 2\pi c \sqrt{LC_{eq}} = \lambda_{res,0} \sqrt{\frac{1 + \frac{e_{CO}}{h_s} \left(\frac{\epsilon_{CO} - \epsilon_{air}}{\epsilon_{air}} \right) \left(1 - \frac{2e_{CO}}{w_s} \right)}{1 - \frac{2e_{CO}}{w_s} \left(\frac{\epsilon_{CO} - \epsilon_{air}}{\epsilon_{CO}} \right)}}, \quad (5.11)$$

où $\lambda_{res,0} = \lambda_{res}(e_{CO} = 0, \epsilon_{CO})$ est la longueur d'onde de résonance du réseau en l'absence de molécules. A partir du calcul numérique exacte de $\lambda_{res,0}$ et de l'équation (5.11), on peut alors déduire l'évolution de la réflectivité donnée par l'équation (5.5) en fonction des caractéristiques de la couche de molécules déposée. Il faut toutefois poser l'hypothèse que le résidu A des équations (5.4) et (5.5) ne dépende pas du dépôt de CO solide. Dans ce cas, le zéro de réflectivité est donné par :

$$\lambda_z(e_{CO}, \epsilon_{CO}) = \lambda_{z,0} + \lambda_{res}(e_{CO}, \epsilon_{CO}) - \lambda_{res,0}, \quad (5.12)$$

où $\lambda_{z,0}$ est le zéro complexe du facteur de réflexion en l'absence de molécules. La figure (5.20) compare ce modèle (dénommé modèle "LC") avec un calcul exact de la réflectivité pour deux épaisseurs de CO solide déposé.

Le modèle LC permet de retrouver qualitativement les caractéristiques des spectres observés. Notamment, pour une épaisseur $e_{CO} = 0.2\text{nm}$, on retrouve des pics de réflectivité à $\lambda_{L,CO}$ et à $\lambda_{T,CO}$ d'amplitude légèrement surestimée. Le modèle "LC" permet donc de comprendre l'origine de ces pics. On a vu que pour $\lambda \simeq \lambda_{L,CO}$, $\epsilon_{CO} \ll 1$. Or, lorsque $\epsilon_{CO} \rightarrow 0$, $\lambda_{res}(e_{CO}, \epsilon_{CO}) \propto \sqrt{\epsilon_{CO}} \rightarrow 0$. On a vu également que pour $\lambda \simeq \lambda_{T,CO}$, $\epsilon_{CO} \gg 1$. Or, lorsque $\epsilon_{CO} \rightarrow \infty$, $\lambda_{res}(e_{CO}, \epsilon_{CO}) \propto \sqrt{\epsilon_{CO}} \rightarrow \infty$. Qualitativement, la réflectivité observée à ces deux longueurs d'onde tend vers $R \rightarrow R_0$. Pour de très faibles épaisseurs de CO, la variation $\Delta\lambda_{res}$ de la longueur d'onde de résonance ne sera notable que pour des valeurs extrêmes de ϵ_{CO} , ce qui explique la présence des deux pics pour $e_{CO} = 0.2\text{nm} \ll w_s/2$. Lorsque $e_{CO} \simeq w_s/2$, l'équation (5.11) montre que $\Delta\lambda_{res}$ devient très sensible à un contraste de permittivité $\epsilon_{CO} - \epsilon_{air}$. En conséquence, on observe un large pic de réflectivité pour la bande spectrale où $\epsilon_{CO} \neq \epsilon_{air}$ pour une épaisseur $e_{CO} = 2\text{nm} \simeq w_s/5$. En présence de ce large pic, un creux fin de réflectivité apparaît pour $e_{CO} \lesssim w_s/2$. Ce creux est à différencier du creux de réflectivité observé en régime de grande épaisseur ($e_{CO} \gg w_s/2$). Il correspond à une valeur de la permittivité du CO telle que la quantité $|\lambda_{res}(e_{CO}, \epsilon_{CO}) - \lambda_{res,0}|$ soit minimale pour une épaisseur donnée. Pour $e_{CO} = 2\text{nm}$, il apparaît à $\lambda \simeq 4.675\mu\text{m}$.

Ainsi, le modèle LC permet d'expliquer qualitativement les caractéristiques du spectre en régime de faible épaisseur. Toutefois, les écarts quantitatifs peuvent permettre de douter

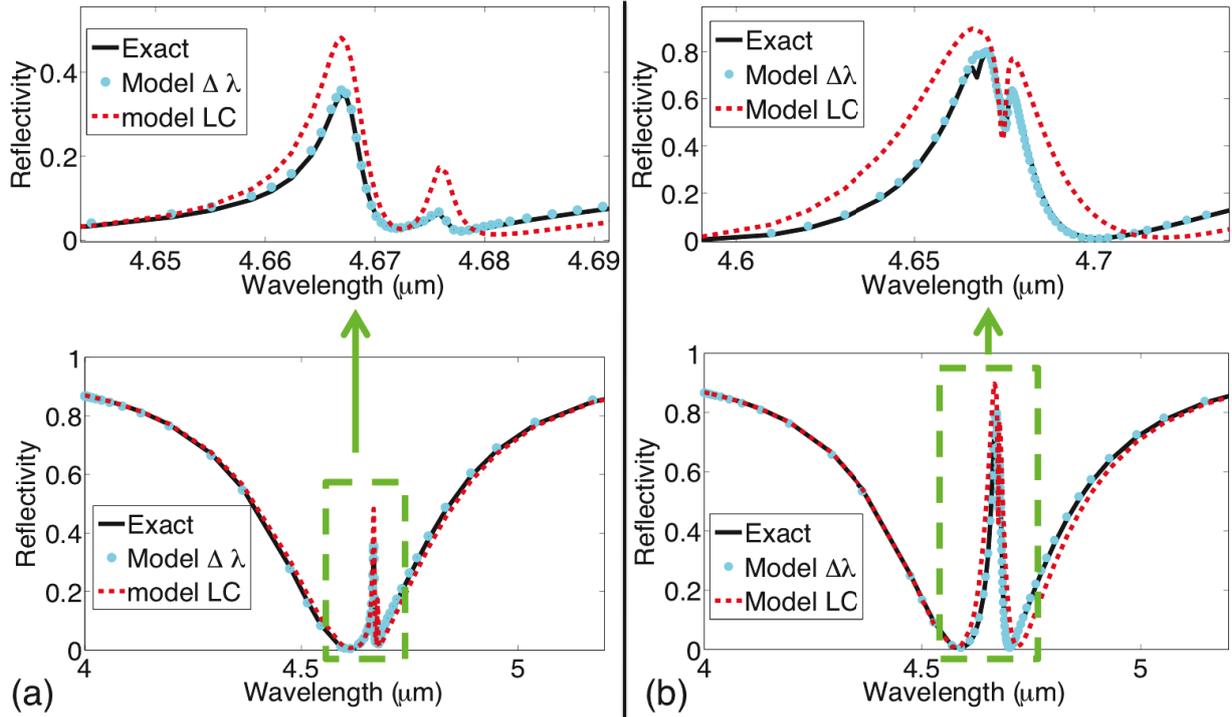


FIGURE 5.20 – Spectres en réflectivité du réseau en présence de CO solide, comparant les deux modèles du manuscrit à un calcul exact. En haut : Zoom de l’encadré vert. (a) Pour une épaisseur de CO $e_{CO} = 0.2\text{nm}$. (b) Pour une épaisseur de CO $e_{CO} = 2\text{nm}$.

d’une interprétation des variations de réflectivité par une modification de la longueur d’onde de résonance. Notamment, la validité de l’hypothèse d’un résidu A constant doit être vérifiée. C’est pourquoi j’ai cherché numériquement les valeurs complexes de $\lambda_{res}(e_{CO}, \epsilon_{CO}(\lambda))$ pour une épaisseur de CO solide donnée. On utilise ensuite ces valeurs et les équations (5.13) et (5.5) pour en déduire le spectre en réflectivité. C’est le modèle semi-analytique dénommé " $\Delta\lambda$ " sur la figure (5.20). On obtient un excellent accord entre ce modèle et le calcul exact, ce qui conforte nos conclusions sur le régime de faible épaisseur.

5.7.2 Le régime de grande épaisseur

Dans le régime de grande épaisseur, le modèle LC ne suffit plus. En effet, lorsque la petite fente est totalement remplie de CO solide, le modèle LC donne $\lambda_{res}(e_{CO}, \epsilon_{CO}) = \lambda_{res,0} \sqrt{\frac{\epsilon_{CO}}{\epsilon_{air}}}$. Un faible écart $\epsilon_{CO} - \epsilon_{air}$ peut provoquer une variation de la longueur d’onde de résonance suffisamment grande pour que la réflectivité $R \rightarrow R_0$ pour la gamme spectrale telle que $\epsilon_{CO} \neq \epsilon_{air}$. Cela explique le large pic de réflectivité observé. Toutefois, ce modèle ne peut expliquer le creux fin de réflectivité à $\lambda \simeq \lambda_{L,CO}$. En effet, le modèle LC donne une variation relative de la longueur d’onde de résonance $|\Delta\lambda_{res}/\lambda_{res}| \simeq 70\%$, ce qui correspondrait à une réflectivité $R \simeq R_0 \simeq 1$. D’après ce modèle, la réflectivité devrait s’apparenter à celle d’un miroir d’or à cette longueur d’onde. En outre, la profondeur du creux fin de réflectivité augmente lorsqu’on augmente sensiblement l’épaisseur de CO solide. Si le modèle LC suffisait, seule la quantité de CO déposée dans la petite fente serait pertinente.

On observe toutefois que ce creux apparaît en régime ENZ. Pour comprendre ce qu’il se

pas, il faut s'intéresser aux propriétés de ce régime. Dans ce régime, un film de CO solide peut supporter un mode de surface dit mode ENZ ((b) Vassant *et al.* 2012). Puisque la constante diélectrique du CO est proche de 0, la composante normale au film du champ électrique E_z peut être fortement exaltée dans le film, par continuité de la composante normale de l'induction électrique $D_z = \epsilon_{air} E_{z,air} = \epsilon_{CO} E_{z,CO}$:

$$|E_{z,CO}|^2 = \left| \frac{\epsilon_{air}}{\epsilon_{CO}} \right|^2 |E_{z,air}|^2 = K_{ENZ} |E_{z,air}|^2, \quad (5.13)$$

où K_{ENZ} dénote le facteur d'exaltation de l'intensité électrique dans la couche de CO. Si le mode de surface ENZ se couple suffisamment bien au champ incident, alors la puissance absorbée dans le film

$$P_{abs,CO} \simeq \int Im(\epsilon_{CO}) K_{ENZ} |E_{z,air}|^2 d^3\vec{r}, \quad (5.14)$$

peut également être exaltée. Il est ainsi possible que la majorité de l'énergie incidente soit absorbée dans la couche de CO, même si l'épaisseur du film ne fait que quelques 10nm : c'est l'effet Berreman. Pour qu'un tel couplage existe, différentes techniques sont possibles. La plus simple consiste à éclairer le film de CO en incidence rasante en polarisation TM. Alors le champ est polarisé essentiellement suivant la normale au film. Une autre possibilité consiste à utiliser un réseau métallique, de la même manière qu'on peut exciter un plasmon de surface ((a) Vassant *et al.* 2012). C'est la configuration qui permet ici d'observer le creux fin de réflectivité : le réseau de nanostructures diffracte l'énergie incidente dans le mode ENZ du film de CO déposé sur le réseau. L'énergie incidente est alors essentiellement absorbée dans le film, ce qui explique l'observation d'un creux de réflectivité sur la gamme spectrale du régime ENZ du CO.

Conclusion générale et perspectives

Dans ce travail de thèse, différentes antennes de formes variées ont été étudiées pour le contrôle du rayonnement de deux types de sources, et pour la détection de molécules en très faible quantité. Dans cette partie, une synthèse des résultats analysés est développée pour chaque chapitre, aboutissant à quelques perspectives.

Le chapitre 1 a permis de décrire les deux méthodes numériques utilisées pour l'ensemble des résultats théoriques de ce manuscrit. Les difficultés rencontrées dans un calcul d'antenne optique résident dans la nécessité de concilier la modélisation sur deux échelles, l'une très petites devant la longueur d'onde pour laquelle les champs sont confinés et présentent de grandes discontinuités, l'autre de l'ordre de la longueur d'onde sur laquelle s'étend la taille de l'antenne. Dans ce chapitre, on a présenté deux méthodes modales qui utilisent une transformée de Fourier pour ramener un problème 2D ou 3D à un problème de propagation 1D. Ces méthodes autorisent le traitement d'objets arbitrairement grands dans la direction de propagation. Cette propagation s'effectue au travers d'un algorithme de matrices S qui relie les composantes de Fourier des champs. Des transformations de coordonnées opérées sur la direction d'intégration de Fourier réconcilient les deux échelles critiques de la modélisation des antennes optiques, et peuvent permettre la modélisation de systèmes aperiodiques. La méthode RCWA 2D en coordonnée cartésienne est bien connue pour ses capacités à traiter efficacement des réseaux lamellaires. Cette méthode a notamment été utilisée pour obtenir les résultats du chapitre 5. L'autre méthode présentée dans ce manuscrit est une extension de RCWA aperiodique à un système de coordonnées cylindriques 3D. Elle a été développée au cours de ma thèse et permet de modéliser l'émission d'un dipôle positionné arbitrairement. La méthode propage des ondes de Bessel cylindriques, ce qui permet de gérer la modélisation d'objet diamétralement large.

Les chapitres 2 et 3 traitent du contrôle de l'émission de photons uniques par une antenne. Cette dernière doit permettre d'augmenter la cadence d'émission, d'augmenter la directivité d'un émetteur ponctuel en vue de collecter la majorité de ces photons uniques, tout en limitant le plus possible l'introduction de pertes par absorption. Le chapitre 2 a montré que pour pouvoir contrôler la cadence d'émission d'une source déterministe à température ambiante, il est nécessaire de confiner les champs des modes de l'antenne. Au regard de ce besoin, les antennes métalliques constituent de bons candidats parce qu'elles possèdent des modes plasmoniques hautement confinés. La directivité de l'émission est pilotée par la taille caractéristique de l'antenne. Au chapitre 2, l'analyse de résultats théoriques et expérimentaux montre que l'antenne patch métallique permettant d'accélérer le taux de désexcitation de deux ordres de grandeur sur un large spectre tout en fournissant une grande directivité. Grâce à des collaborations entre des chercheurs du LPN, de L'INSP et de l'ESPCI, des antennes patch on été réalisées et caractérisées avec succès, en utilisant une méthode de fabrication relativement simple permettant de positionner de façon déterministe des QDs

pour lesquels la fabrication est bien contrôlée. L'accélération du taux de désexcitation résulte du couplage à 95% de l'émetteur avec des modes plasmoniques confinés, qui peuvent être dissipés par rayonnement ou par effet Joule. Ce chapitre souligne qu'aux longueurs d'onde du visible, la dissipation par effet Joule est dominante, avec un rendement radiatif de l'ordre de $\sim 1\%$.

Pour augmenter ce rendement, le chapitre 3 tente d'apporter des solutions en investiguant différentes stratégies. D'abord, les paramètres de l'antenne patch permettant de favoriser son rayonnement ont été étudiés. Pour minimiser les pertes par propagation du mode, il faut d'une part, que l'épaisseur du patch soit de l'ordre de deux à trois fois l'épaisseur de peau du mode dans le métal, et d'autre part, travailler avec des sources émettant dans l'infrarouge. Ensuite, il faut augmenter les pertes radiatives. Cela revient à prendre un volume d'antenne suffisamment grand pour maximiser le volume rayonnant, tout en s'assurant que l'onde de courant plasmonique se propage dans tout le volume. On a vu que cela mène à choisir un petit patch dipolaire permettant d'atteindre un rendement radiatif de l'ordre de $\eta_{rad} \sim 30\%$. A $\lambda = 1550\text{nm}$, il paraît raisonnable de penser qu'une telle structure soit fabricable un jour, notamment en utilisant la technique de lithographie optique. Pour augmenter la directivité du patch dipolaire, deux stratégies ont été proposées. D'abord l'antenne patch-bull's eye, inspirée de l'antenne Yagi-Uda. Cette antenne permet d'atteindre une très grande directivité avec une efficacité de collection $\eta_{coll} \sim 96\%$ et des travaux précédents ont démontré leur faisabilité. Toutefois, ces antennes ne permettent pas une augmentation significative du rendement radiatif $\eta_{rad} \sim 40\%$. Une antenne patch métal-diélectrique a été introduite pour augmenter davantage le rendement radiatif. Ce concept combine le grand facteur de Purcell dû au confinement du champ dans la structure patch métallique, avec une efficacité de collection de $\eta_{coll} \sim 99\%$ et un rendement radiatif de $\eta_{rad} \sim 75\%$, grâce au résonateur diélectrique. Une caractéristique importante de cette architecture est qu'elle se base sur des étapes technologique relativement simples pour la fabrication. Elle est compatible avec la technique de lithographie optique in-situ utilisée pour la fabrication des antennes patch. On anticipe des facteurs de Purcell de l'ordre de 100 et une efficacité totale excédant les 70%. Cette valeur de l'efficacité totale est comparable à l'état de l'art des solutions qui ont été testée expérimentalement, notamment les nano-fils diélectriques (Claudon *et al.* 2010), à la différence que l'antenne patch hybride possède un grand facteur de Purcell. A la fin de ma thèse, des travaux ont montré expérimentalement la possibilité d'obtenir une source de photons uniques indiscernables avec une efficacité totale de l'ordre de $\eta_{TOT} \sim 80\%$ (Gazzano *et al.* 2013) et une source de photons uniques pompée électriquement avec une efficacité de l'ordre de $\eta_{TOT} \sim 50\%$ (Nowak *et al.* 2014) en utilisant un QD dans un micropilier. Toutefois ces travaux ont été réalisés à température cryogénique, et montrent un facteur de Purcell de quelques unités. L'antenne hybride proposée au chapitre 3 peut être utile pour de nombreuses applications, et semble être une solution prometteuse pour satisfaire le cahier des charges des sources de photons-uniques à température ambiante. Des sources infrarouges sont déjà disponibles (Borgström *et al.* 2005; Högele *et al.* 2008), il reste à fabriquer et à caractériser expérimentalement des antennes métal-diélectriques couplées à une source de photons uniques.

Le chapitre 4 introduit une antenne métallique pour contrôler l'émission de photons et de plasmons par effet tunnel inélastique. L'excitation par une pointe STM offre une solution à une excitation électrique confinée sur des petits volumes. Toutefois, le rendement très faible de ces sources et le large spectre d'émission constituent des obstacles pour le développement d'applications telles que des sources électriques intégrées à des circuits nanophotoniques. La

puissance des fluctuations de courant dans la jonction est essentiellement dissipée thermiquement dans le métal. En introduisant une antenne plasmonique, on montre la possibilité d'améliorer les performances de ces sources. D'une part, la propriété de confinement des résonateurs plasmonique permet d'exalter suffisamment la densité locale d'états électromagnétiques dans la jonction pour que le mode d'antenne entre en compétition avec le processus de quenching. D'autre part, le grand moment dipolaire du mode permet d'extraire une grande fraction de la puissance par rayonnement. La combinaison de ces deux mécanismes conduit à une exaltation de puissance rayonnée sous forme de plasmon et de photon qui peut dépasser deux ordres de grandeur. Enfin, la structure de l'antenne impose la fréquence de résonance qui peut être accordée en changeant l'une des tailles caractéristiques de l'antenne. Cette propriété, associée au large spectre des fluctuations de courant sources, facilite l'observation de l'effet d'antenne même si la nanostructure fabriquée présente une déviation de la géométrie théorique. En outre, le facteur de qualité $Q \sim 10$ des nano-résonateurs plasmoniques permet de réduire d'un facteur ~ 10 la largeur spectrale d'émission. Ainsi, les propriétés de rayonnement peuvent être entièrement contrôlées et grandement améliorées en présence d'une nano-antenne plasmonique. La démonstration expérimentale reste à faire. En outre, on peut imaginer des sources totalement intégrée, sans nécessité d'une point STM. Pour améliorer davantage les performances de la source, on pourrait étudier des géométries d'antenne différentes. A l'issue des travaux présentés dans le chapitre 4, Marie-Christine Dheur, doctorante dans mon groupe de recherche, travaille notamment sur une structure comprenant une jonction tunnel entre deux nano-résonateurs plasmoniques, chacun relié à une électrode. On peut également imaginer un réseau de ces sources intégrées tel une antenne Yagi-Uda pour obtenir un lanceur à plasmon directionnel.

Dans le chapitre 5, la détection d'une fine couche de molécules résonantes a été étudiée et discutée. La nanostructure, un résonateur de Hemholtz optique, permet d'exalter de plusieurs ordres de grandeur le champ électrique d'une onde incidente polarisée TM dans une fente nanométrique. Cette exaltation permet de sonder les molécules présentes dans la fine fente. En travaillant dans l'infrarouge, les résonances des molécules apportent une signature spectrale. En analysant cette signature dans la réflectivité du miroir nanostructuré, on obtient une méthode de détection sélective, caractéristique du SEIRA. En outre, la très grande acceptance angulaire du résonateur permet d'obtenir une grande sensibilité de détection à partir d'un faisceau fortement focalisé. La modélisation montre notamment qu'en déposant une couche monoatomique de CO solide, la réflectivité de l'antenne varie de $\Delta R \sim 10\%$ en valeur absolue. Cela correspond à sonder quelques attomoles de CO solide dans la fente du résonateur. Il faut cependant nuancer ces résultats dans les limites de la modélisation. Il reste donc à fabriquer ce type de structure et à mesurer la sensibilité de détection de molécules. On peut également étudier le potentiel de cette structure à détecter des molécules dans le cadre de la spectroscopie SERS.

Références

- (a) Bigourdan, F., J.-P. Hugonin, et P. Lalanne (2014). Aperiodic-Fourier modal method for analysis of body-of-revolution photonic structures. *JOSA A* 31(6), 1303–1311.
 - (a) Grigoriev, V., A. Tahri, S. Varault, B. Rolly, B. Stout, J. Wenger, et N. Bonod (2013). Optimization of resonant effects in nanostructures via Weierstrass factorization. *Physical Review A* 88(1), 011803.
 - (a) Jun, Y. C., R. M. Briggs, H. A. Atwater, et M. L. Brongersma (2009). Broadband enhancement of light emission in silicon slot waveguides. *Optics Express* 17(9), 7479–7490.
 - (a) Vassant, S., A. Archambault, F. Marquier, F. Pardo, U. Gennser, A. Cavanna, J.-L. Pelouard, et J.-J. Greffet (2012). Epsilon-near-zero mode for active optoelectronic devices. *Physical Review Letters* 109(23), 237401.
- Abramowitz, M. et I. A. Stegun (1964). *Handbook of mathematical functions : with formulas, graphs, and mathematical tables*. Courier Dover Publications.
- Agio, M. (2012). Optical antennas as nanoscale resonators. *Nanoscale* 4(3), 692–706.
- Aizpurua, J., S. P. Apell, et R. Berndt (2000). Role of tip shape in light emission from the scanning tunneling microscope. *Physical Review B* 62(3), 2065.
- Anderson, N., A. Bouhelier, et L. Novotny (2006). Near-field photonics : tip-enhanced microscopy and spectroscopy on the nanoscale. *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* 8(4), S227.
- Ando, M., T. Kobayashi, S. Iijima, et M. Haruta (2003). Optical CO sensitivity of Au-CuO composite film by use of the plasmon absorption change. *Sensors and Actuators B : Chemical* 96(3), 589–595.
- Anger, P., P. Bharadwaj, et L. Novotny (2006). Enhancement and quenching of single-molecule fluorescence. *Physical Review Letters* 96(11), 113002.
- Aouani, H., O. Mahboub, E. Devaux, H. Rigneault, T. W. Ebbesen, et J. Wenger (2011). Plasmonic antennas for directional sorting of fluorescence emission. *Nano Letters* 11(6), 2400–2406.
- Apuzzo, A., M. Février, R. Salas-Montiel, A. Bruyant, A. Chelnokov, G. Léronnel, B. Dagens, et S. Blaize (2013). Observation of near-field dipolar interactions involved in a metal nanoparticle chain waveguide. *Nano letters* 13(3), 1000–1006.
- Arabi, H. E., H.-E. Joe, T. Nazari, B.-K. Min, et K. Oh (2013). A high throughput supra-wavelength plasmonic bull’s eye photon sorter spatially and spectrally multiplexed on silica optical fiber facet. *Optics Express* 21(23), 28083–28094.
- Archambault, A., T. V. Teperik, F. Marquier, et J.-J. Greffet (2009). Surface plasmon Fourier optics. *Physical Review B* 79(19), 195414.
- Armaroli, A., A. Morand, P. Benech, G. Bellanca, et S. Trillo (2008). Three-dimensional analysis of cylindrical microresonators based on the aperiodic Fourier modal method.

- JOSA A* 25(3), 667–675.
- Armaroli, A., A. Morand, P. Benech, G. Bellanca, et S. Trillo (2009). Comparative analysis of a planar slotted microdisk resonator. *Lightwave Technology, Journal of* 27(18), 4009–4016.
- (b) Bigourdan, F., F. Marquier, J.-P. Hugonin, et J.-J. Greffet (2014). Design of highly efficient metallo-dielectric patch antennas for single-photon emission. *Optics Express* 22(3), 2337–2347.
- (b) Grigoriev, V., S. Varault, G. Boudarham, B. Stout, J. Wenger, et N. Bonod (2013). Singular analysis of Fano resonances in plasmonic nanostructures. *Physical Review A* 88(6), 063805.
- (b) Jun, Y. C., R. Pala, et M. L. Brongersma (2009). Strong Modification of Quantum Dot Spontaneous Emission via Gap Plasmon Coupling in Metal Nanoslits. *The Journal of Physical Chemistry C* 114(16), 7269–7273.
- (b) Vassant, S., J.-P. Hugonin, F. Marquier, et J.-J. Greffet (2012). Berreman mode and epsilon near zero mode. *Optics Express* 20(21), 23971–23977.
- Babuty, A., A. Bousseksou, J.-P. Tetienne, I. M. Doyen, C. Sirtori, G. Beaudoin, I. Sagnes, Y. De Wilde, et R. Colombelli (2010). Semiconductor surface plasmon sources. *Physical Review Letters* 104(22), 226806.
- Bai, Q., M. Perrin, C. Sauvan, J.-P. Hugonin, et P. Lalanne (2013). Efficient and intuitive method for the analysis of light scattering by a resonant nanostructure. *Optics Express* 21(22), 27371–27382.
- Bailo, E. et V. Deckert (2008). Tip-enhanced Raman scattering. *Chemical Society Reviews* 37(5), 921–930.
- Belacel, C., B. Habert, F. Bigourdan, F. Marquier, J.-P. Hugonin, S. Michaelis de Vasconcellos, X. Lafosse, L. Coolen, C. Schwob, C. Javaux, et al. (2013). Controlling spontaneous emission with plasmonic optical patch antennas. *Nano Letters* 13(4), 1516–1521.
- Bennett, C. H., G. Brassard, et al. (1984). Quantum cryptography : Public key distribution and coin tossing. In *Proceedings of IEEE International Conference on Computers, Systems and Signal Processing*, Volume 175. New York.
- Bennett, C. H., G. Brassard, et N. D. Mermin (1992). Quantum cryptography without Bell’s theorem. *Physical Review Letters* 68(5), 557.
- Berenger, J.-P. (1994). A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves. *Journal of computational physics* 114(2), 185–200.
- Berndt, R. et J. K. Gimzewski (1993). Photon emission in scanning tunneling microscopy : Interpretation of photon maps of metallic systems. *Physical Review B* 48(7), 4746.
- Berndt, R., J. K. Gimzewski, et P. Johansson (1991). Inelastic tunneling excitation of tip-induced plasmon modes on noble-metal surfaces. *Physical Review Letters* 67(27), 3796.
- Berreman, D. (1963). Infrared absorption at longitudinal optic frequency in cubic crystal films. *Physical Review* 130(6), 2193.
- Bharadwaj, P., A. Bouhelier, et L. Novotny (2011). Electrical excitation of surface plasmons. *Physical Review Letters* 106(22), 226802.
- Bhardwaj, A. et V. D. Kumar (2012). Optical dot antenna and nanohole transmission. *Micro & Nano Letters* 7(11), 1151–1156.

- Biagioni, P., J.-S. Huang, et B. Hecht (2012). Nanoantennas for visible and infrared radiation. *Reports on Progress in Physics* 75(2), 024402.
- Blanter, Y. M. et M. Büttiker (2000). Shot noise in mesoscopic conductors. *Physics reports* 336(1), 1–166.
- Bochterle, J., F. Neubrech, T. Nagao, et A. Pucci (2012). Angstrom-scale distance dependence of antenna-enhanced vibrational signals. *ACS nano* 6(12), 10917–10923.
- Bonod, N., E. Popov, et M. Nevière (2005). Differential theory of diffraction by finite cylindrical objects. *JOSA A* 22(3), 481–490.
- Borgström, M. T., V. Zwiller, E. Müller, et A. Imamoglu (2005). Optically bright quantum dots in single nanowires. *Nano Letters* 5(7), 1439–1443.
- Brown, R. H. et R. Twiss (1956). A test of a new type of stellar interferometer on Sirius. *Nature* 178(4541), 1046–1048.
- Brus, L. (1986). Electronic wave functions in semiconductor clusters : experiment and theory. *The Journal of Physical Chemistry* 90(12), 2555–2560.
- Buckley, S., K. Rivoire, et J. Vučković (2012). Engineered quantum dot single-photon sources. *Reports on Progress in Physics* 75(12), 126503.
- Chance, R., A. Miller, A. Prock, et R. Silbey (1975). Fluorescence and energy transfer near interfaces : The complete and quantitative description of the Eu³⁺/mirror systems. *The Journal of Chemical Physics* 63(4), 1589–1595.
- Chance, R., A. Prock, et R. Silbey (1978). Molecular fluorescence and energy transfer near interfaces. *Adv. Chem. Phys* 37(1), 65.
- Chen, X.-W., M. Agio, et V. Sandoghdar (2012). Metallodielectric hybrid antennas for ultrastrong enhancement of spontaneous emission. *Physical Review Letters* 108(23), 233001.
- Chen, X.-W., S. Götzinger, et V. Sandoghdar (2011). 99% efficiency in collecting photons from a single emitter. *Optics letters* 36(18), 3545–3547.
- Chevalier, P., P. Bouchon, R. Haïdar, et F. Pardo (2014). Optical Helmholtz resonators. *Applied Physics Letters* 105(7), 071110.
- Ching, E., P. Leung, A. M. van den Brink, W. Suen, S. Tong, et K. Young (1998). Quasinormal-mode expansion for waves in open systems. *Reviews of Modern Physics* 70(4), 1545.
- Choumane, H., N. Ha, C. Nelep, A. Chardon, G.-O. Reymond, C. Goutel, G. Cerovic, F. Vallet, C. Weisbuch, et H. Benisty (2005). Double interference fluorescence enhancement from reflective slides : Application to bicolor microarrays. *Applied Physics Letters* 87(3), 031102.
- Cialla, D., A. März, R. Böhme, F. Theil, K. Weber, M. Schmitt, et J. Popp (2012). Surface-enhanced Raman spectroscopy (SERS) : progress and trends. *Analytical and bioanalytical chemistry* 403(1), 27–54.
- Ciraci, C., J. B. Lassiter, A. Moreau, et D. R. Smith (2013). Quasi-analytic study of scattering from optical plasmonic patch antennas. *Journal of Applied Physics* 114(16), 163108.
- Claudon, J., J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne, et J.-M. Gérard (2010). A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire. *Nature Photonics* 4(3), 174–177.
- Costantini, D., L. Greusard, A. Bousseksou, R. Rungsawang, T. Zhang, S. Callard, J. Decobert, F. Lelarge, G.-H. Duan, Y. De Wilde, et al. (2012). In situ generation of surface

- plasmon polaritons using a near-infrared laser diode. *Nano Letters* 12(9), 4693–4697.
- Ctyroky, J., P. Kwicien, et I. Richter (2010). Fourier series-based bidirectional propagation algorithm with adaptive spatial resolution. *Lightwave Technology, Journal of* 28(20), 2969–2976.
- Curto, A. G., G. Volpe, T. H. Taminiau, M. P. Kreuzer, R. Quidant, et N. F. van Hulst (2010). Unidirectional emission of a quantum dot coupled to a nanoantenna. *Science* 329(5994), 930–933.
- Dagens, B., D. Make, F. Lelarge, B. Rousseau, M. Calligaro, M. Carbonnelle, F. Pomme-reau, A. Accard, F. Poingt, L. Le Gouezigou, *et al.* (2008). High Bandwidth Operation of Directly Modulated Laser Based on Quantum-Dash InAs–InP Material at 1.55 μm . *Photonics Technology Letters, IEEE* 20(11), 903–905.
- David, C., N. A. Mortensen, et J. Christensen (2013). Perfect imaging, epsilon-near zero phenomena and waveguiding in the scope of nonlocal effects. *Scientific reports* 3.
- de Leon, N. P., B. J. Shields, L. Y. Chun, D. E. Englund, A. V. Akimov, M. D. Lukin, et H. Park (2012). Tailoring light-matter interaction with a nanoscale plasmon resonator. *Physical Review Letters* 108(22), 226803.
- Devilez, A., B. Stout, et N. Bonod (2010). Compact metallo-dielectric optical antenna for ultra directional and enhanced radiative emission. *ACS nano* 4(6), 3390–3396.
- Dirac, P. A. (1927). The quantum theory of the emission and absorption of radiation. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 243–265.
- Divitt, S., P. Bharadwaj, et L. Novotny (2013). The role of gap plasmons in light emission from tunnel junctions. *Optics Express* 21(22), 27452–27459.
- Dousse, A., L. Lanco, J. Suffczyński, E. Semenova, A. Miard, A. Lemaître, I. Sagnes, C. Roblin, J. Bloch, et P. Senellart (2008). Controlled light-matter coupling for a single quantum dot embedded in a pillar microcavity using far-field optical lithography. *Physical Review Letters* 101(26), 267404.
- Edwards, B., A. Alù, M. E. Young, M. Silveirinha, et N. Engheta (2008). Experimental verification of epsilon-near-zero metamaterial coupling and energy squeezing using a microwave waveguide. *Physical Review Letters* 100(3), 033903.
- Eisaman, M., J. Fan, A. Migdall, et S. Polyakov (2011). Invited review article : Single-photon sources and detectors. *Review of Scientific Instruments* 82(7), 071101.
- Ekert, A. K. (1991). Quantum cryptography based on Bell’s theorem. *Physical Review Letters* 67(6), 661.
- Ekimov, A., F. Hache, M. Schanne-Klein, D. Ricard, C. Flytzanis, I. Kudryavtsev, T. Yazeva, A. Rodina, et A. L. Efros (1993). Absorption and intensity-dependent photoluminescence measurements on CdSe quantum dots : assignment of the first electronic transitions. *JOSA B* 10(1), 100–107.
- Elvira, D., R. Braive, G. Beaudoin, I. Sagnes, J.-P. Hugonin, I. Abram, I. Robert-Philip, P. Lalanne, et A. Beveratos (2013). Broadband enhancement and inhibition of single quantum dot emission in plasmonic nano-cavities operating at telecommunications wavelengths. *Applied Physics Letters* 103(6), 061113.
- Empedocles, S., R. Neuhauser, et M. Bawendi (1999). Three-dimensional orientation measurements of symmetric single chromophores using polarization microscopy. *Nature* 399(6732), 126–130.

- Englund, D., D. Fattal, E. Waks, G. Solomon, B. Zhang, T. Nakaoka, Y. Arakawa, Y. Yamamoto, et J. Vučković (2005). Controlling the spontaneous emission rate of single quantum dots in a two-dimensional photonic crystal. *Physical Review Letters* 95(1), 013904.
- Esteban, R., T. V. Teperik, et J.-J. Greffet (2010). Optical patch antennas for single photon emission using surface plasmon resonances. *Physical Review Letters* 104(2), 026802.
- Fan, P., C. Colombo, K. C. Huang, P. Krogstrup, J. Nygård, A. Fontcuberta i Morral, et M. L. Brongersma (2012). An electrically-driven GaAs nanowire surface plasmon source. *Nano letters* 12(9), 4943–4947.
- Fano, U. (1961). Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts. *Physical Review* 124(6), 1866.
- Feibelman, P. J. (1982). Surface electromagnetic fields. *Progress in Surface Science* 12(4), 287–407.
- Feigenbaum, E. et M. Orenstein (2008). Ultrasmall volume plasmons, yet with complete retardation effects. *Physical Review Letters* 101(16), 163902.
- Fermi, E. et J. Orear (1950). *Nuclear physics : a course given by Enrico Fermi at the University of Chicago*. University of Chicago Press.
- Feynman, R. P. (1982). Simulating physics with computers. *International journal of theoretical physics* 21(6), 467–488.
- Filter, R., J. Qi, C. Rockstuhl, et F. Lederer (2012). Circular optical nanoantennas : an analytical theory. *Physical Review B* 85(12), 125429.
- Ford, G. W. et W. Weber (1984). Electromagnetic interactions of molecules with metal surfaces. *Physics Reports* 113(4), 195–287.
- Friedler, I., P. Lalanne, J.-P. Hugonin, J. Claudon, J.-M. Gérard, A. Beveratos, et I. Robert-Philip (2008). Efficient photonic mirrors for semiconductor nanowires. *Optics letters* 33(22), 2635–2637.
- Friedler, I., C. Sauvan, J.-P. Hugonin, P. Lalanne, J. Claudon, et J.-M. Gérard (2009). Solid-state single photon sources : the nanowire antenna. *Optics Express* 17(4), 2095–2110.
- Gayral, B., J.-M. Gérard, B. Sermage, A. Lemaitre, et C. Dupuis (2001). Time-resolved probing of the Purcell effect for InAs quantum boxes in GaAs microdisks. *Applied Physics Letters* 78(19), 2828–2830.
- Gazzano, O., S. M. de Vasconcellos, C. Arnold, A. Nowak, E. Galopin, I. Sagnes, L. Lanco, A. Lemaître, et P. Senellart (2013). Bright solid-state sources of indistinguishable single photons. *Nature Communications* 4, 1425.
- Gérard, J., B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, et V. Thierry-Mieg (1998). Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity. *Physical Review Letters* 81(5), 1110.
- Giesz, V., O. Gazzano, A. Nowak, S. Portalupi, A. Lemaître, I. Sagnes, L. Lanco, et P. Senellart (2013). Influence of the Purcell effect on the purity of bright single photon sources. *Applied Physics Letters* 103(3), 033113.
- Gimzewski, J., J. Sass, R. Schlitter, et J. Schott (1989). Enhanced photon emission in scanning tunnelling microscopy. *EPL (Europhysics Letters)* 8(5), 435.
- Granet, G. (1999). Reformulation of the lamellar grating problem through the concept of adaptive spatial resolution. *JOSA A* 16(10), 2510–2516.

- Granet, G. et B. Guizal (1996). Efficient implementation of the coupled-wave method for metallic lamellar gratings in TM polarization. *JOSA A* 13(5), 1019–1023.
- Hartschuh, A., H. N. Pedrosa, L. Novotny, et T. D. Krauss (2003). Simultaneous fluorescence and Raman scattering from single carbon nanotubes. *Science* 301(5638), 1354–1356.
- Helmholtz, H. L. (1885). On the sensations of tone as a physiological basis for the theory of music. 2nd English ed., translated based on the 4th German edition by Alexander J. Ellis.
- Högele, A., C. Galland, M. Winger, et A. Imamoglu (2008). Photon antibunching in the photoluminescence spectra of a single carbon nanotube. *Physical Review Letters* 100(21), 217401.
- Holland, J. (1975). Adaption in natural and artificial systems. *Ann Arbor MI : The University of Michigan Press*.
- Hone, D., B. Mühlshlegel, et D. Scalapino (1978). Theory of light emission from small particle tunnel junctions. *Applied Physics Letters* 33(2), 203–204.
- Hong, C., Z. Ou, et L. Mandel (1987). Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference. *Physical Review Letters* 59(18), 2044.
- Hryciw, A., Y. C. Jun, et M. L. Brongersma (2009). Plasmon-enhanced emission from optically-doped MOS light sources. *Optics Express* 17(1), 185–192.
- Hugonin, J. P. et P. Lalanne (2005). Perfectly matched layers as nonlinear coordinate transforms : a generalized formalization. *JOSA A* 22(9), 1844–1849.
- Jackson, J. D. (1962). *Classical electrodynamics*. John Wiley and Sons, New York.
- Javaux, C., B. Mahler, B. Dubertret, A. Shabaev, A. Rodina, A. L. Efros, D. Yakovlev, F. Liu, M. Bayer, G. Camps, *et al.* (2013). Thermal activation of non-radiative Auger recombination in charged colloidal nanocrystals. *Nature nanotechnology* 8(3), 206–212.
- Johansson, P., R. Monreal, et P. Apell (1990). Theory for light emission from a scanning tunneling microscope. *Physical Review B* 42(14), 9210.
- Johnson, P. B. et R.-W. Christy (1972). Optical constants of the noble metals. *Physical Review B* 6(12), 4370.
- Jun, Y., R. Kekatpure, J. White, et M. Brongersma (2008). Nonresonant enhancement of spontaneous emission in metal-dielectric-metal plasmon waveguide structures. *Physical Review B* 78(15), 153111.
- Keller, U. (2003). Recent developments in compact ultrafast lasers. *Nature* 424(6950), 831–838.
- Kinkhabwala, A., Z. Yu, S. Fan, Y. Avlasevich, K. Müllen, et W. Moerner (2009). Large single-molecule fluorescence enhancements produced by a bowtie nanoantenna. *Nature Photonics* 3(11), 654–657.
- Kirtley, J., T. Theis, J. Tsang, et D. DiMaria (1983). Hot-electron picture of light emission from tunnel junctions. *Physical Review B* 27(8), 4601.
- Knill, E., R. Laflamme, et G. J. Milburn (2001). A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature* 409(6816), 46–52.
- Knop, K. (1978). Rigorous diffraction theory for transmission phase gratings with deep rectangular grooves. *JOSA* 68(9), 1206–1210.
- Koenderink, A. F. (2010). On the use of Purcell factors for plasmon antennas. *Optics letters* 35(24), 4208–4210.

- Krainer, L., R. Paschotta, S. Lecomte, M. Moser, K. J. Weingarten, et U. Keller (2002). Compact Nd : YVO 4 lasers with pulse repetition rates up to 160 GHz. *Quantum Electronics, IEEE Journal of* 38(10), 1331–1338.
- Kühn, S., U. Hakanson, L. Rogobete, et V. Sandoghdar (2006). Enhancement of single-molecule fluorescence using a gold nanoparticle as an optical nanoantenna. *Physical Review Letters* 97(1), 017402.
- Ladd, T. D., F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe, et J. L. O'Brien (2010). Quantum computers. *Nature* 464(7285), 45–53.
- Laks, B. et D. Mills (1979). Photon emission from slightly roughened tunnel junctions. *Physical Review B* 20(12), 4962.
- Lalanne, P., M. Besbes, J. Hugonin, S. Van Haver, O. Janssen, A. Nugrowati, M. Xu, S. Pereira, H. Urbach, A. Van De Nes, et al. (2007). Numerical analysis of a slit-groove diffraction problem. *Journal of the European Optical Society-Rapid Publications* 2.
- Lalanne, P. et M. P. Jurek (1998). Computation of the near-field pattern with the coupled-wave method for transverse magnetic polarization. *Journal of modern optics* 45(7), 1357–1374.
- Lalanne, P. et G. M. Morris (1996). Highly improved convergence of the coupled-wave method for TM polarization. *JOSA A* 13(4), 779–784.
- Lalanne, P. et E. Silberstein (2000). Fourier-modal methods applied to waveguide computational problems. *Optics Letters* 25(15), 1092–1094.
- Lambe, J. et R. Jaklevic (1968). Molecular vibration spectra by inelastic electron tunneling. *Physical Review* 165(3), 821.
- Lambe, J. et S. McCarthy (1976). Light emission from inelastic electron tunneling. *Physical Review Letters* 37(14), 923.
- Landau, H. J. et H. O. Pollak (1961). Prolate spheroidal wave functions, Fourier analysis and uncertainty-II. *Bell System Technical Journal* 40(1), 65–84.
- Landau, H. J. et H. O. Pollak (1962). Prolate Spheroidal Wave Functions, Fourier Analysis and Uncertainty-III : The Dimension of the Space of Essentially Time-and Band-Limited Signals. *Bell System Technical Journal* 41(4), 1295–1336.
- Lau, E. K., A. Lakhani, R. S. Tucker, et M. C. Wu (2009). Enhanced modulation bandwidth of nanocavity light emitting devices. *Optics Express* 17(10), 7790–7799.
- Law, S., V. Podolskiy, et D. Wasserman (2013). Towards nano-scale photonics with micro-scale photons : the opportunities and challenges of mid-infrared plasmonics. *Nanophotonics* 2(2), 103–130.
- Lecamp, G., J.-P. Hugonin, et P. Lalanne (2007). Theoretical and computational concepts for periodic optical waveguides. *Optics Express* 15(18), 11042–11060.
- Lee, H. M., S. M. Jin, H. M. Kim, et Y. D. Suh (2013). Single-molecule surface-enhanced Raman spectroscopy : a perspective on the current status. *Physical Chemistry Chemical Physics* 15(15), 5276–5287.
- Lee, K., X. Chen, H. Eghlidi, P. Kukura, R. Lettow, A. Renn, V. Sandoghdar, et S. Götzinger (2011). A planar dielectric antenna for directional single-photon emission and near-unity collection efficiency. *Nature Photonics* 5(3), 166–169.
- Li, L. (1996a). Formulation and comparison of two recursive matrix algorithms for modeling layered diffraction gratings. *JOSA A* 13(5), 1024–1035.
- Li, L. (1996b). Use of Fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures. *JOSA A* 13(9), 1870–1876.

- Lounis, B. et M. Orrit (2005). Single-photon sources. *Reports on Progress in Physics* 68(5), 1129.
- Lü, J.-T., R. B. Christensen, et M. Brandbyge (2013). Light emission and finite-frequency shot noise in molecular junctions : From tunneling to contact. *Physical Review B* 88(4), 045413.
- Lukosz, W. et R. Kunz (1977). Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane interface. I. Total radiated power. *JOSA* 67(12), 1607–1615.
- Luk'yanchuk, B., N. I. Zheludev, S. A. Maier, N. J. Halas, P. Nordlander, H. Giessen, et C. T. Chong (2010). The Fano resonance in plasmonic nanostructures and metamaterials. *Nature materials* 9(9), 707–715.
- Mahboub, O., S. C. Palacios, C. Genet, F. Garcia-Vidal, S. G. Rodrigo, L. Martin-Moreno, et T. Ebbesen (2010). Optimization of bull's eye structures for transmission enhancement. *Optics Express* 18(11), 11292–11299.
- Mahler, B., P. Spinicelli, S. Buil, X. Quelin, J.-P. Hermier, et B. Dubertret (2008). Towards non-blinking colloidal quantum dots. *Nature materials* 7(8), 659–664.
- Maier, S. A. (2006). Plasmonic field enhancement and SERS in the effective mode volume picture. *optics express* 14(5), 1957–1964.
- Maier, S. A. (2007). *Plasmonics : Fundamentals and Applications : Fundamentals and Applications*. Springer.
- Maksymov, I., M. Besbes, J.-P. Hugonin, J. Yang, A. Beveratos, I. Sagnes, I. Robert-Philip, et P. Lalanne (2010). Metal-coated nanocylinder cavity for broadband non-classical light emission. *Physical Review Letters* 105(18), 180502.
- Malheiros-Silveira, G. N., G. S. Wiederhecker, et H. E. Hernández-Figueroa (2013). Dielectric resonator antenna for applications in nanophotonics. *Optics Express* 21(1), 1234–1239.
- Mandel, L. et E. Wolf (1995). *Optical coherence and quantum optics*. Cambridge university press.
- Mao, D., X. Liu, Z. Sun, H. Lu, D. Han, G. Wang, et F. Wang (2013). Flexible high-repetition-rate ultrafast fiber laser. *Scientific reports* 3.
- Maystre, D. (1972). Sur la diffraction d'une onde plane par un reseau metallique de conductivite finie. *Optics Communications* 6(1), 50–54.
- Maystre, D. (1982). "General Study of grating anomalies from electromagnetic surface modes", *Electromagnetic Surface Modes*, edited by A. D. Boardman.
- Moharam, M. et T. Gaylord (1981). Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating diffraction. *JOSA* 71(7), 811–818.
- Moharam, M. et T. K. Gaylord (1982). Diffraction analysis of dielectric surface-relief gratings. *JOSA* 72(10), 1385–1392.
- Moharam, M., E. B. Grann, D. A. Pommet, et T. Gaylord (1995). Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings. *JOSA A* 12(5), 1068–1076.
- Mongia, R. K. et P. Bhartia (1994). Dielectric resonator antennas - A review and general design relations for resonant frequency and bandwidth. *International Journal of Microwave and Millimeter-Wave Computer-Aided Engineering* 4(3), 230–247.
- Moreau, A., C. Ciracì, et D. R. Smith (2013). Impact of nonlocal response on metallo-dielectric multilayers and optical patch antennas. *Physical Review B* 87(4), 045401.

- Nakamura, Y., Y. Mera, et K. Maeda (1999). A reproducible method to fabricate atomically sharp tips for scanning tunneling microscopy. *Review of Scientific Instruments* 70(8), 3373–3376.
- Neubrech, F., S. Beck, T. Glaser, M. Hentschel, H. Giessen, et A. Pucci (2014). Spatial Extent of Plasmonic Enhancement of Vibrational Signals in the Infrared. *ACS nano*.
- Novotny, L. (1997). Allowed and forbidden light in near-field optics. I. A single dipolar light source. *JOSA A* 14(1), 91–104.
- Novotny, L. et B. Hecht (2012). *Principles of nano-optics*. Cambridge university press.
- Novotny, L. et N. Van Hulst (2011). Antennas for light. *Nature Photonics* 5(2), 83–90.
- Nowak, A., S. Portalupi, V. Giesz, O. Gazzano, C. Dal Savio, P.-F. Braun, K. Karrai, C. Arnold, L. Lanco, I. Sagnes, *et al.* (2014). Deterministic and electrically tunable bright single-photon source. *Nature Communications* 5.
- Obayya, S. (2011). *Computational photonics*. John Wiley & Sons.
- Ozbay, E. (2006). Plasmonics : merging photonics and electronics at nanoscale dimensions. *science* 311(5758), 189–193.
- Palik, E. D. (1985). *Handbook of optical constants of solids*, Volume 3. Academic press.
- Palumbo, M. E., G. A. Baratta, M. P. Collings, et M. R. McCoustra (2006). The profile of the 2140 cm⁻¹ solid CO band on different substrates. *Physical Chemistry Chemical Physics* 8(2), 279–284.
- Pernice, W., C. Schuck, O. Minaeva, M. Li, G. Goltsman, A. Sergienko, et H. Tang (2012). High-speed and high-efficiency travelling wave single-photon detectors embedded in nanophotonic circuits. *Nature Communications* 3, 1325.
- Perronet, K., L. Barbier, et F. Charra (2004). Influence of the Au (111) reconstruction on the light emission induced by a scanning tunneling microscope. *Physical Review B* 70(20), 201405.
- Persson, B. et A. Baratoff (1992). Theory of photon emission in electron tunneling to metallic particles. *Physical Review Letters* 68(21), 3224.
- Peter, E., S. Laurent, J. Bloch, J. Hours, S. Varoutsis, I. Robert-Philip, A. Beveratos, A. Lemaître, A. Cavanna, G. Patriarche, *et al.* (2007). Fast radiative quantum dots : From single to multiple photon emission. *Applied physics letters* 90(22), 223118.
- Pisarenco, M., J. Maubach, I. Setija, et R. Mattheij (2010). Aperiodic Fourier modal method in contrast-field formulation for simulation of scattering from finite structures. *JOSA A* 27(11), 2423–2431.
- Pohl, D. (2000). Near field optics seen as an antenna problem. *Near-field optics - principles and applications : the second Asia-Pacific workshop on near-field optics*.
- Purcell, E. (1946). *Physical Review* 69, 681.
- Rai, P., N. Hartmann, J. Berthelot, J. Arocas, G. C. des Francs, A. Hartschuh, et A. Bouhelier (2013). Electrical excitation of surface plasmons by an individual carbon nanotube transistor. *Physical Review Letters* 111(2), 026804.
- Ralph, T., A. White, W. Munro, et G. Milburn (2001). Simple scheme for efficient linear optics quantum gates. *Physical Review A* 65(1), 012314.
- Ren, F.-F., K.-W. Ang, J. Ye, M. Yu, G.-Q. Lo, et D.-L. Kwong (2011). Split bull’s eye shaped aluminum antenna for plasmon-enhanced nanometer scale germanium photodetector. *Nano Letters* 11(3), 1289–1293.
- Ren, F.-F., W.-Z. Xu, J. Ye, K.-W. Ang, H. Lu, R. Zhang, M. Yu, G.-Q. Lo, H. H. Tan, et C. Jagadish (2014). Second-order surface-plasmon assisted responsivity enhancement

- in germanium nano-photodetectors with bull's eye antennas. *Optics Express* 22(13), 15949–15956.
- Rendell, R. et D. Scalapino (1981). Surface plasmons confined by microstructures on tunnel junctions. *Physical Review B* 24(6), 3276.
- Rendell, R., D. Scalapino, et B. Mühlischlegel (1978). Role of local plasmon modes in light emission from small-particle tunnel junctions. *Physical Review Letters* 41(25), 1746.
- Rogovin, D. et D. Scalapino (1974). Fluctuation phenomena in tunnel junctions. *Annals of Physics* 86(1), 1–90.
- Roy, D. et J. Fendler (2004). Reflection and absorption techniques for optical characterization of chemically assembled nanomaterials. *Advanced Materials* 16(6), 479–508.
- Sauvan, C., J.-P. Hugonin, I. Maksymov, et P. Lalanne (2013). Theory of the spontaneous optical emission of nanosize photonic and plasmon resonators. *Physical Review Letters* 110(23), 237401.
- Schietinger, S., M. Barth, T. Aichele, et O. Benson (2009). Plasmon-enhanced single photon emission from a nanoassembled metal- diamond hybrid structure at room temperature. *Nano Letters* 9(4), 1694–1698.
- Schlücker, S. (2014). Surface-Enhanced Raman Spectroscopy : Concepts and Chemical Applications. *Angewandte Chemie International Edition* 53(19), 4756–4795.
- Schneider, N., J. Lü, M. Brandbyge, et R. Berndt (2012). Light emission probing quantum shot noise and charge fluctuations at a biased molecular junction. *Physical Review Letters* 109(18), 186601.
- Schneider, N. L., G. Schull, et R. Berndt (2010). Optical probe of quantum shot-noise reduction at a single-atom contact. *Physical Review Letters* 105(2), 026601.
- Schottky, W. (1918). *Annalen der Physik* 57, 541.
- Schull, G., N. Néel, P. Johansson, et R. Berndt (2009). Electron-plasmon and electron-electron interactions at a single atom contact. *Physical Review Letters* 102(5), 057401.
- Shor, P. W. (1997). Polynomial-time algorithms for prime factorization and discrete logarithms on a quantum computer. *SIAM journal on computing* 26(5), 1484–1509.
- Silberstein, E., P. Lalanne, J.-P. Hugonin, et Q. Cao (2001). Use of grating theories in integrated optics. *JOSA A* 18(11), 2865–2875.
- Silveirinha, M. et N. Engheta (2006). Tunneling of electromagnetic energy through sub-wavelength channels and bends using ε -near-zero materials. *Physical Review Letters* 97(15), 157403.
- Silveirinha, M. et N. Engheta (2007). Theory of supercoupling, squeezing wave energy, and field confinement in narrow channels and tight bends using ε near-zero metamaterials. *Physical Review B* 76, 245109.
- Sipe, J. E. (1987). New Green-function formalism for surface optics. *JOSA B* 4(4), 481–489.
- Sirinakis, G., R. Siddique, I. Manning, P. H. Rogers, et M. A. Carpenter (2006). Development and characterization of Au-YSZ surface plasmon resonance based sensing materials : High temperature detection of CO. *The Journal of Physical Chemistry B* 110(27), 13508–13511.
- Slepian, D. (1978). Prolate spheroidal wave functions, Fourier analysis, and uncertainty-V : The discrete case. *Bell System Technical Journal* 57(5), 1371–1430.

- Spitzer, W., D. Kleinman, et D. Walsh (1959). Infrared properties of hexagonal silicon carbide. *Physical Review* 113(1), 127.
- Stewart, M. E., C. R. Anderton, L. B. Thompson, J. Maria, S. K. Gray, J. A. Rogers, et R. G. Nuzzo (2008). Nanostructured plasmonic sensors. *Chemical Reviews* 108(2), 494–521.
- Stockman, M. I. (2011). Nanoplasmonics : past, present, and glimpse into future. *Optics Express* 19(22), 22029–22106.
- Taflove, A. et S. C. Hagness (2005). Computational electromagnetics : the finite-difference time-domain method. *Artech House*.
- Teperik, T., P. Nordlander, J. Aizpurua, et A. Borisov (2013). Robust subnanometric plasmon ruler by rescaling of the nonlocal optical response. *Physical review letters* 110(26), 263901.
- Tetienne, J.-P., A. Bousseksou, D. Costantini, R. Colombelli, A. Babuty, I. Moldovan-Doyen, Y. De Wilde, C. Sirtori, G. Beaudoin, L. Largeau, et al. (2010). Injection of midinfrared surface plasmon polaritons with an integrated device. *Applied Physics Letters* 97(21), 211110.
- Tittl, A., H. Giessen, et N. Liu (2014). Plasmonic gas and chemical sensing. *Nanophotonics* 3(3), 157–180.
- Uehara, Y., T. Fujita, et S. Ushioda (1999). Scanning tunneling microscope light emission spectra of Au (110)-(2× 1) with atomic spatial resolution. *Physical Review Letters* 83(12), 2445.
- Vahala, K. J. (2003). Optical microcavities. *Nature* 424(6950), 839–846.
- Varnava, M., D. E. Browne, et T. Rudolph (2008). How good must single photon sources and detectors be for efficient linear optical quantum computation? *Physical Review Letters* 100(6), 060502.
- Walmsley, D., T.-S. Tan, et P. Dawson (2004). Light emission from gold and silver thin films in a scanning tunneling microscope : role of contamination and interpretation of grain structure in photon maps. *Surface science* 572(2), 497–520.
- Wang, F. et Y. R. Shen (2006). General properties of local plasmons in metal nanostructures. *Physical Review Letters* 97(20), 206806.
- Wang, L.-X. et X.-E. Jiang (2012). Bioanalytical applications of surface-enhanced infrared absorption spectroscopy. *Chinese Journal of Analytical Chemistry* 40(7), 975–982.
- Wang, T., E. Boer-Duchemin, Y. Zhang, G. Comtet, et G. Dujardin (2011). Excitation of propagating surface plasmons with a scanning tunnelling microscope. *Nanotechnology* 22(17), 175201.
- Wang, X., X. Ren, K. Kahen, M. A. Hahn, M. Rajeswaran, S. Maccagnano-Zacher, J. Silcox, G. E. Cragg, A. L. Efros, et T. D. Krauss (2009). Non-blinking semiconductor nanocrystals. *Nature* 459(7247), 686–689.
- Wei, H. et H. Xu (2012). Nanowire-based plasmonic waveguides and devices for integrated nanophotonic circuits. *Nanophotonics* 1(2), 155–169.
- Wood, R. (1902). XLII. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 4(21), 396–402.
- Wootters, W. K. et W. H. Zurek (1982). A single quantum cannot be cloned. *Nature* 299(5886), 802–803.

- Yang, J., C. Sauvan, A. Jouanin, S. Collin, J.-L. Pelouard, et P. Lalanne (2012). Ultrasmall metal-insulator-metal nanoresonators : impact of slow-wave effects on the quality factor. *Optics Express* 20(15), 16880–16891.
- Zou, L., W. Withayachumnankul, C. M. Shah, A. Mitchell, M. Bhaskaran, S. Sriram, et C. Fumeaux (2013). Dielectric resonator nanoantennas at visible frequencies. *Optics Express* 21(1), 1344–1352.