

la nano-antenne unique au couplage

Sommaire

IV.1 Nano-antenne MIM	81
IV.1.1 Résonance et propriétés	81
IV.1.2 Influence des paramètres géométriques	84
IV.1.3 Fabrication	89
IV.2 Étude numérique	90
IV.2.1 Modèles de matériaux	90
IV.2.2 Section efficace	91
IV.2.3 Densité locale d'états électromagnétiques	92
IV.3 Étude expérimentale	93
IV.3.1 Caractérisation en spectroscopie de champ lointain	93
IV.3.2 Caractérisation en imagerie de champ proche	96
IV.4 Limites expérimentales	97
IV.4.1 Contribution de la diffusion	98
IV.4.2 Sensibilité	98
IV.4.3 Précision de localisation	101
IV.4.4 Bruits	102
IV.5 Couplage inter-antennes	102
IV.5.1 Nano-antennes MIM individuelles	103
IV.5.2 Alignement de nano-antennes MIM	104
IV.5.3 biMIM à gap variable	106
IV.6 Conclusions et perspectives	110

Le contrôle des propriétés d'émission et d'absorption de surfaces et d'objets de taille finie dans la gamme spectrale de l'infrarouge (IR) constitue un enjeu important pour des applica-

tions diverses telles que le refroidissement radiatif [104], l'extraction thermique [105, 106], la conception d'absorbants pour la détection [107-111], l'identification de molécules [112] ou bien encore la conversion d'énergie thermophotovoltaïque [113].

Un autre domaine d'intérêt est le développement de nouvelles sources IR aux propriétés innovantes : sélectivité spatiale ou spectrale [9, 23, 114, 115], dimensions sub-longueur d'onde permettant une grande compacité ou capacité de modulation [116, 117].

Alors que les sources thermiques sans structuration de surface particulière sont quasi-isotropes et larges spectralement dans le champ lointain, les matériaux qui supportent des polaritons de surface donnent lieu à des lobes de diffraction étroits quand leur surface est structurée en réseau [9, 118]. Réciproquement, ils peuvent permettre une absorption parfaite pour les ondes électromagnétiques à un angle d'incidence et une longueur d'onde donnée [119].

Des effets thermiques similaires à ceux d'antennes ont été réalisés sur une large bande spectrale avec des structures à couches minces [120].

Les métasurfaces constituent une autre voie de développement pour parvenir à contrôler le spectre [23, 114, 115] ou la direction [121, 122] de l'émission thermique. Les sources thermiques basées sur les métasurfaces composées de résonateurs sub-longueur d'onde reposent en général sur la périodisation d'une cellule unité contenant une ou plusieurs nano-antennes de sorte à réaliser un réseau bipériodique. La diffraction ainsi que des effets de couplage entre nano-antennes voisines viennent se superposer sur la réponse optique intrinsèque à la cellule unité [43]. Les mesures effectuées sur des ensembles de nano-antennes subissent également un élargissement inhomogène et des effets statistiques puisque toutes les nano-antennes n'ont pas parfaitement la même taille en raison des imprécisions de fabrication. Bien qu'il soit d'intérêt majeur de caractériser une métasurface à l'échelle de sa cellule unité afin d'avoir la connaissance précise et la maîtrise de sa réponse optique intrinsèque, atteindre une fine résolution à la fois spatiale et spectrale en conjonction d'une sensibilité suffisamment élevée pour détecter une nano-antenne unique demeure un défi expérimental en raison des dimensions sub-longueur d'onde de l'objet et de la relativement faible détectivité des détecteurs adaptés à l'infrarouge moyen.

Nous verrons dans un premier temps les mécanismes de résonance d'une nano-antenne plasmonique. Puis nous décrirons les outils numériques permettant d'effectuer les simulations avant de détailler les résultats expérimentaux en spectroscopie et en imagerie obtenus avec des nano-antennes uniques. Nous discuterons ensuite des limites de sensibilité et de précision des mesures réalisées. Le résumé de cet ensemble de travaux a fait l'objet d'une publication au cours de ma thèse [123]. Enfin, nous présenterons des résultats préliminaires sur des structures plus complexes mettant en jeu plusieurs nano-antennes en interaction.

IV.1 Nano-antenne MIM

Comme nous l'avons vu dans le chapitre I, les travaux de recherche autour des nano-antennes se sont largement inspirés de leurs homologues radioélectriques dont la technologie est solidement établie depuis plusieurs décennies. C'est le cas du type de nano-antenne que nous avons choisi d'étudier, qui est inspiré des antennes planaires aussi appelées antennes patch. Ces nano-antennes métal-isolant-métal (MIM) sont composées comme leur nom l'indique d'un empilement multi-couches où un diélectrique sépare un élément métallique sub-longueur d'onde d'un miroir métallique. Outre la forme de croix adoptée par le groupe de Padilla et présentée précédemment [22, 23], d'autres motifs ont été étudiés qu'il soient unidimensionnels (rubans ou guides d'onde [124, 125]) ou bidimensionnels (rectangles [114, 126, 127], disques [128]). La versatilité des nano-antennes MIM les rend aussi adaptées à d'autres gammes spectrales allant du visible [129] au térahertz [130].

IV.1.1 Résonance et propriétés

Les nano-antennes MIM que nous étudions sont composées d'une superposition d'une couche continue d'or d'épaisseur t'_m servant de miroir, une couche continue de silice d'épaisseur t_d et enfin des motifs d'or de forme carrée d'épaisseur t_m et de côté w comme le montre le schéma IV.1. Les épaisseurs des couches métalliques sont supérieures à la distance d'atténuation du plasmon de surface dans l'or qui vaut $\delta_{or} = \frac{1}{2|\text{Im}(k_{z,or})|} = 15 \text{ nm}$ pour une longueur d'onde de $10 \mu\text{m}$ (Eq. II.15).

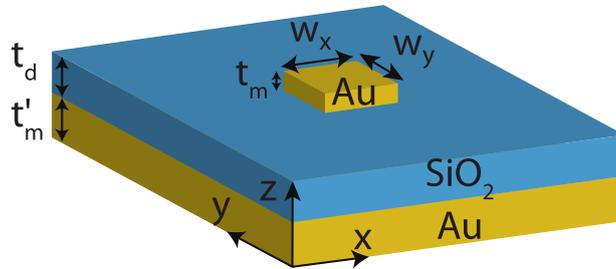


FIGURE IV.1 – Schéma d'une nano-antenne MIM de taille carrée.

Au sein de cet empilement de trois couches, un plasmon-polariton de surface se propage à chacune des deux interfaces métal-diélectrique. Ces deux ondes de surface se couplent pour former ce qui est appelé un plasmon de gap qui reste confiné dans un volume de dimensions sub-longueur d'onde en raison de la taille finie du motif métallique supérieur qui constitue le patch. La nano-antenne MIM se comporte comme un résonateur de type Fabry-Perot au sein duquel le plasmon de gap est réfléchi par les extrémités du patch en or. Les longueurs d'onde de résonance λ_{res} s'expriment de façon simple selon la condition d'accord de phase :

$$\lambda_{res} = \frac{2n_{eff}w}{m - \frac{\phi_r}{\pi}} \quad (\text{IV.1})$$

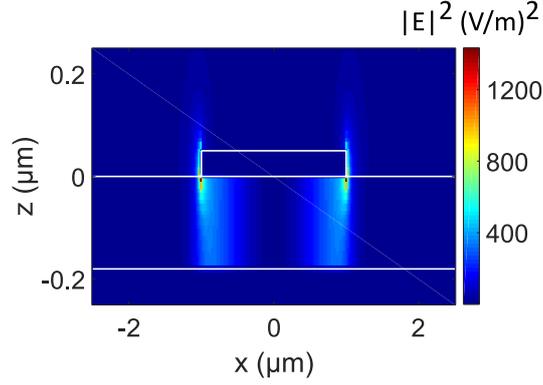


FIGURE IV.2 – Carte d'intensité électrique dans le plan xz passant par le centre de la nano-antenne en $y = 0$ à la longueur d'onde de résonance $\lambda_{\text{res}} = 6.6 \mu\text{m}$.

où n_{eff} est la partie réelle de l'indice effectif complexe du mode $\tilde{n}_{\text{eff}} = n_{\text{eff}} + ik_{\text{eff}}$, m est l'ordre du mode et ϕ_r est un facteur de correction de phase provenant des réflexions aux extrémités du patch.

L'indice effectif complexe d'un guide d'onde métallique s'exprime en fonction des permittivités diélectriques du métal et du diélectrique, respectivement ε_m et ε_d , le constituant [131] :

$$n_{\text{eff}} = \sqrt{\varepsilon_d} \left(1 + \frac{\lambda}{\pi t_d \sqrt{-\varepsilon_m}} \sqrt{1 + \frac{\varepsilon_d}{-\varepsilon_m}} \right)^{1/2} \quad (\text{IV.2})$$

Nous nous intéressons au mode fondamental supporté par la cavité, ce qui donne pour $m = 1$:

$$\lambda_{\text{res}} = 2n_{\text{eff}}w + \lambda_\phi \quad (\text{IV.3})$$

où λ_ϕ est un facteur de correction constant. Ce facteur provenant des réflexions aux extrémités de la cavité formée par le patch augmente la longueur effective de la nano-antenne.

La carte du champ électrique dans le plan xz pour $y = 0$ est calculée avec le logiciel de simulation Lumerical qui sera détaillé dans la section suivante. Pour déterminer tous les modes de la nano-antenne, nous avons calculé la réponse de celle-ci en absorption pour un faisceau non polarisé en incidence normale. Nous observons sur la carte obtenue en figure IV.2 qui passe par le centre de la nano-antenne que l'essentiel du champ électrique est confiné dans la couche de diélectrique et qu'il est localisé de façon intense au niveau des bords du patch. Une partie du champ s'échappe de ces bords et est accessible pour une mesure en surface de la nano-antenne mais son intensité est bien plus réduite.

Excitation du mode fondamental à des résonances distinctes

La condition d'accord de phase pour le mode fondamental (Eq. IV.3) montre la dépendance de la longueur d'onde de résonance $\lambda_{\text{rés}}$ avec l'indice effectif. Les études précédentes qui ont été menées à l'ONERA employaient ce type de nano-antennes MIM dans une autre fenêtre de transparence de l'infrarouge moyen, la bande II entre 3 et 5 μm . Dans cette gamme spectrale, le diélectrique employé, la silice en l'occurrence, est très peu dispersif et son indice de réfraction est essentiellement réel et constant, sa variation n'étant que de 5% sur la plage considérée. En revanche, l'indice de réfraction complexe possède une partie réelle variant fortement ainsi qu'une partie imaginaire non nulle autour de 10 μm et cela se répercute sur l'indice effectif n_{eff} du mode donné dans l'expression IV.2.

Nous représentons graphiquement l'équation $2n_{\text{eff}}w = \lambda$ avec $w = 2 \mu\text{m}$ (Fig. IV.3(a)) et nous constatons que la courbe rouge intersecte la droite en pointillés, représentant λ , à trois reprises. Cela signifie qu'il existe plusieurs résonances à des longueurs d'onde distinctes dont la distribution spatiale correspond à celle du mode fondamental, $m = 1$.

La section efficace d'absorption d'une nano-antenne MIM de côté w que nous avons calculée numériquement est présentée en figure IV.3(b). Seuls deux pics résonants sont visibles et proches des intersections à 6 et 10 μm de la figure IV.3(a). Le léger décalage spectral peut être attribué au fait que nous avons négligé λ_{ϕ} en représentant la courbe rouge dans la figure IV.3(a). En revanche, la résonance vers 9 μm , qui correspond à la deuxième intersection dans la figure IV.3(a), n'est pas exprimée car elle coïncide avec un pic du coefficient d'extinction k_{eff} . La forte valeur de k_{eff} donne lieu à des pertes dans le matériau qui font obstacle au confinement optique au sein de la cavité à la résonance et au développement du mode Fabry-Perot.

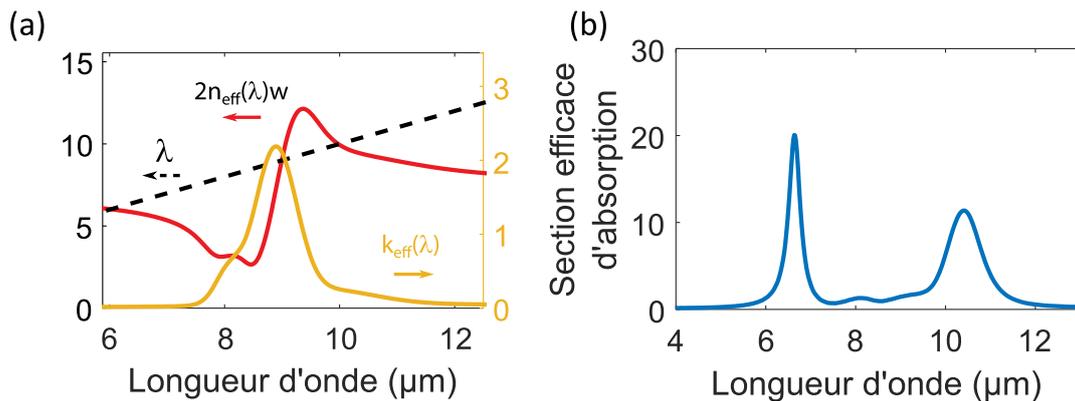


FIGURE IV.3 – (a) Condition d'accord de phase pour le mode fondamental $2n_{\text{eff}}w = \lambda$ et coefficient d'extinction k_{eff} . (b) Section efficace d'absorption d'une nanoantenne MIM.

Pour vérifier qu'il s'agit bien de la même distribution spatiale du mode d'ordre $m = 1$ à deux longueurs d'onde différentes, nous traçons les cartes d'intensité électromagnétique $|E|^2$ à

chacune des deux résonances $\lambda_1 = 6.65 \mu\text{m}$ et $\lambda_2 = 10.4 \mu\text{m}$ (Fig. IV.4). Nous représentons la distribution dans le plan xy pris à plusieurs valeurs de z : au milieu de la cavité diélectrique et à 50 nm de hauteur au-dessus du patch carré.

Nous confirmons avec les cartes prélevées dans la couche diélectrique où est confiné l'essentiel du champ que chacune des deux résonances λ_1 et λ_2 suit bien la même distribution spatiale caractéristique du mode fondamental : une forte concentration de l'intensité est présente aux quatre coins de la structure carrée où se produit un effet de pointe ainsi qu'un champ nul au centre. Les cartes prises dans un plan z situé en hauteur montrent également que le champ électrique subsistant en-dehors de la nano-antenne demeure suffisamment intense pour être propice à être détecté à l'aide d'une sonde de champ proche.

En outre, nous remarquons une différence d'intensité $|E|^2$ entre les deux résonances de près d'un ordre de grandeur.

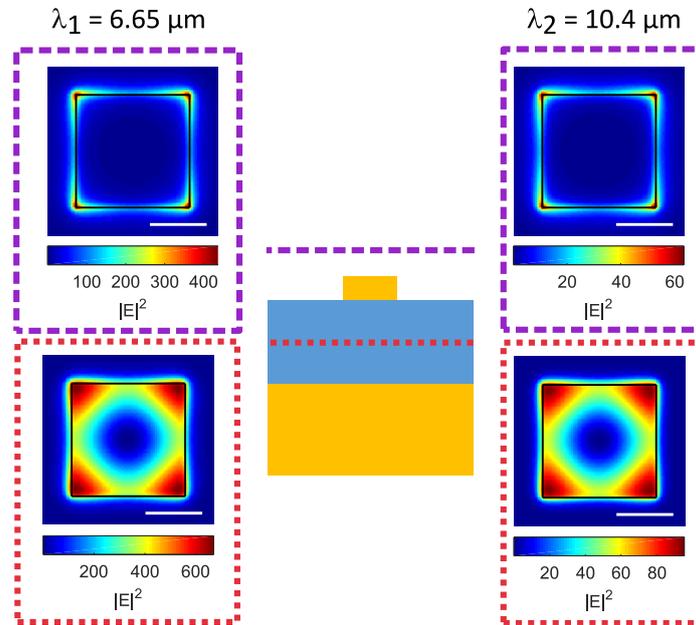


FIGURE IV.4 – Cartes d'intensité du champ électrique en xy d'une nano-antenne MIM de taille $w = 2 \mu\text{m}$ prises au milieu de la couche de silice (encadrés rouges) et au-dessus du patch carré (encadrés mauves) pour les résonances $\lambda_1 = 6.65 \mu\text{m}$ et $\lambda_2 = 10.4 \mu\text{m}$. Les bords de la structure sont représentés en noir et la barre d'échelle correspond à $1 \mu\text{m}$.

IV.1.2 Influence des paramètres géométriques

La nano-antenne se comportant comme un résonateur, il est possible d'accorder de façon précise la position de la résonance en faisant varier les paramètres géométriques.

Nous prenons comme exemple de structure une nano-antenne MIM constituée d'or et de silice d'épaisseur $t_m = 50 \text{ nm}$, $t_d = 180 \text{ nm}$ et $t'_m = 200 \text{ nm}$. Le patch d'or est de dimensions $w_x = 2 \mu\text{m}$ en longueur et $w_y = 2 \mu\text{m}$ en largeur et nous faisons varier un à un les paramètres

pour étudier leur influence.

Dépendance de la longueur et largeur de la nano-antenne

L'onde incidente est polarisée dans la direction x et nous modifions la longueur du patch w_x de l'antenne en gardant une largeur de patch constante $w_y = 2 \mu\text{m}$. Nous obtenons les spectres de section efficace d'absorption σ_{abs}^x représentés en figure IV.5(a), l'indice x indiquant qu'il s'agit du cas polarisé en x .

Dans la gamme spectrale d'intérêt dans l'infrarouge moyen, nous constatons que la section efficace d'absorption présente deux résonances, λ_1 et λ_2 , une autour de $7 \mu\text{m}$ et l'autre autour de $11 \mu\text{m}$.

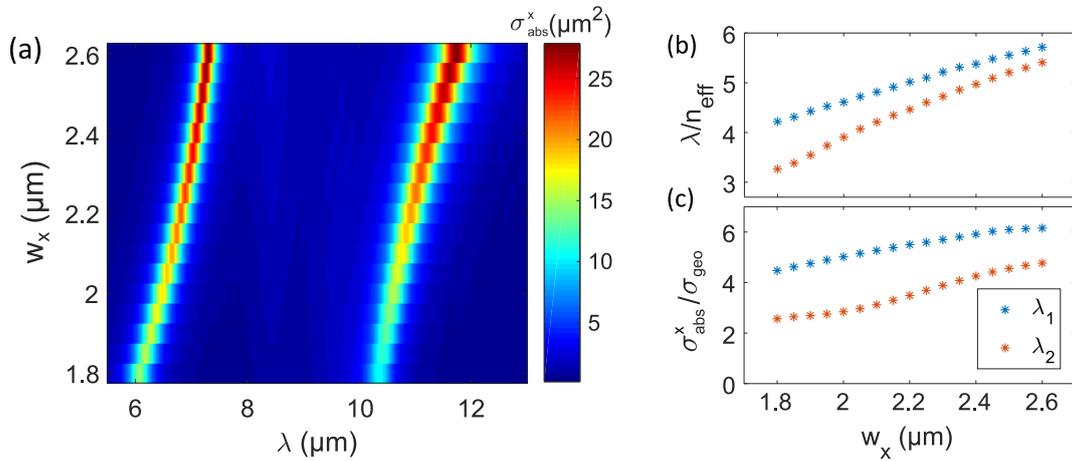


FIGURE IV.5 – (a) Section efficace d'absorption σ_{abs}^x de nano-antennes MIM pour une direction de polarisation x en fonction de la longueur w_x pour $w_y = 2 \mu\text{m}$. Évolution de (b) la position des résonances λ_1 et λ_2 et de (c) leur amplitude.

La position de chaque résonance est décalée vers les grandes longueurs d'onde avec la longueur de l'antenne, ce qui illustre la condition d'accord de phase dans une cavité résonante (Eq. IV.1) comme le montre la figure IV.5(b). Le rapport entre la position spectrale de la première résonance λ_1 et l'indice effectif n_{eff} suit une tendance linéaire avec la taille de l'antenne (Eq. IV.3) alors que ce n'est pas le cas de la seconde résonance λ_2 pour laquelle l'influence du coefficient d'extinction k_{eff} n'est pas négligeable.

En outre, les amplitudes des résonances de σ_{abs}^x excèdent la taille géométrique de la nano-antenne $w_x \times w_y$. Nous traçons en figure IV.5(c) l'efficacité d'absorption définie comme étant le rapport $\sigma_{\text{abs}}^x / \sigma_{\text{geo}}$ au maximum de chaque résonance et nous observons une évolution croissante avec la taille de l'antenne sur la plage étudiée.

En conservant une illumination avec une onde incidente polarisée dans la direction x , la figure IV.6(a) montre les spectres de section efficace d'absorption quand la largeur du patch w_y varie pour une longueur constante $w_x = 2 \mu\text{m}$. Dans cette configuration, la position des

résonances est indépendante de la largeur de la nano-antenne comme le montre la figure IV.6(b).

On remarque que la première résonance garde une amplitude constante, ce qui donne lieu à une efficacité d'absorption qui diminue avec la largeur de la nano-antenne. En revanche, la section efficace d'absorption de la seconde résonance augmente avec la taille géométrique de sorte à ce que le rapport reste quasiment constant.

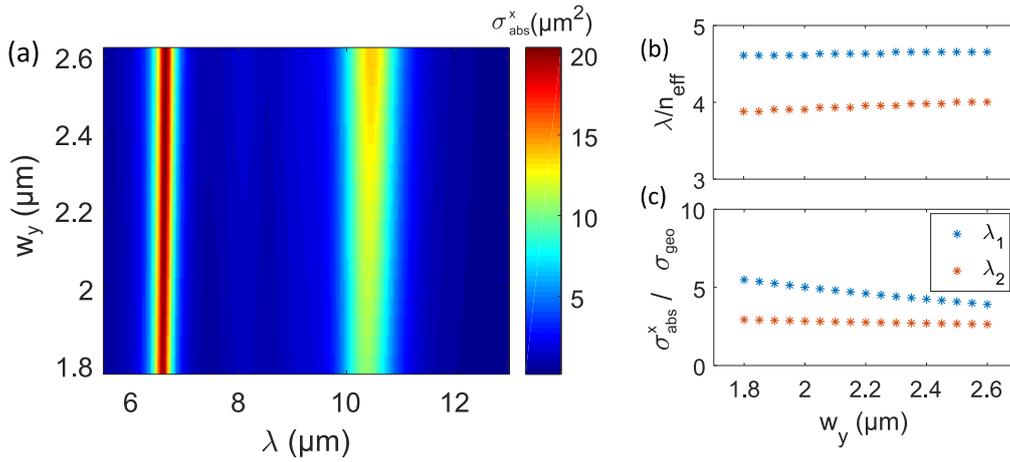


FIGURE IV.6 – (a) Section efficace d'absorption σ_{abs}^y de nano-antennes MIM de nano-antennes MIM pour une direction de polarisation y en fonction de la largeur w_y pour $w_x = 2 \mu\text{m}$. Évolution de (b) la position des résonances λ_1 et λ_2 et de (c) leur amplitude.

Pour rendre compte de la collection sans polariseur du montage expérimental, nous simulons une onde plane non polarisée en effectuant la somme incohérente des résultats obtenus pour deux polarisations orthogonales. La figure IV.7 montre l'évolution de la section efficace d'absorption $\sigma_{\text{abs}}^{\text{eff}}$ quand seulement l'un des côtés du patch w varie en taille et met en évidence la superposition des quatre résonances provenant des deux polarisations quand le patch est rectangulaire.

Alors qu'une forme rectangulaire présente des résonances à des longueurs d'onde distinctes pour chaque polarisation associée aux deux côtés, lorsque le patch est carré ($w_x = w_y$), l'absorption et donc l'émission thermique ne dépendent pas de la direction de polarisation. Pour maximiser l'émission de la nanostructure unique détectable dans le cas où le montage expérimental ne comporte pas de polariseur, notre choix se porte sur une forme carrée du patch.

Dépendance de l'épaisseur t_d de la couche de silice

Un autre paramètre géométrique affectant la résonance est l'épaisseur de la couche de diélectrique t_d constituant la nano-antenne, puisque de celle-ci dépend le couplage entre les deux plasmons-polaritons de surface se propageant à chaque interface entre l'or et la silice. Les couches métalliques, en revanche, n'ont qu'une influence limitée car elles sont suffisamment épaisses pour considérer qu'elles se comportent comme des miroirs.

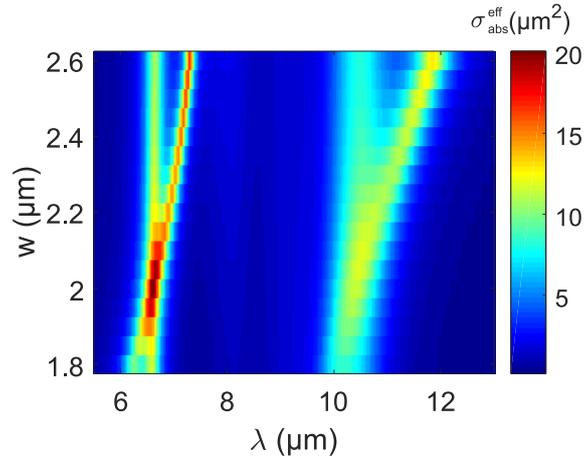


FIGURE IV.7 – Section efficace d’absorption $\sigma_{\text{abs}}^{\text{eff}}$ de nano-antennes MIM pour une illumination non polarisée en fonction de w l’un des côtés de l’antenne, l’autre étant constant à $2 \mu\text{m}$.

Les spectres présentés en figure IV.8 sont obtenus pour différentes valeurs de t_d et un patch carré de côté $w = 2 \mu\text{m}$.

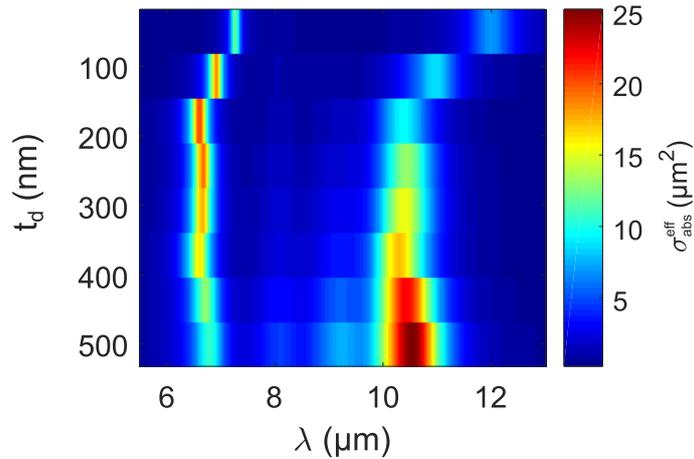


FIGURE IV.8 – Section efficace d’absorption $\sigma_{\text{abs}}^{\text{eff}}$ de nano-antennes MIM de nano-antennes MIM non polarisée en fonction de t_d l’épaisseur de la couche de silice.

Dans le cas de la première résonance, un maximum en amplitude est atteint autour de 200 nm d’épaisseur indiquant une configuration où le couplage est optimal. Pour d’autres épaisseurs, l’amplitude diminue et est décalée vers les grandes longueurs d’onde en particulier pour les épaisseurs plus fines. La seconde résonance est affectée de façon similaire pour t_d petit au niveau de sa position mais son amplitude est plus grande pour une couche plus épaisse, montrant que la qualité du couplage n’est pas la même pour les deux résonances et qu’à plus grande longueur d’onde, les dimensions de la nano-antenne doivent l’être également pour retrouver les conditions de résonance optimales.

Dépendance angulaire

Les simulations précédentes ont été effectuées avec une onde arrivant en incidence normale sur la structure. Or, notre montage expérimental détecte le rayonnement provenant de l'échantillon par le biais d'un objectif de type Cassegrain qui collecte les faisceaux de lumière compris entre les angles 15° et 30° par rapport à la normale au plan focal où se trouve l'échantillon comme l'illustre la figure IV.9. Il nous faut donc vérifier si cela affecte significativement la section efficace détectée.

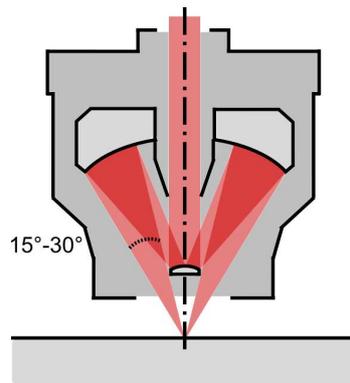


FIGURE IV.9 – Angle de collection de l'objectif Cassegrain.

Pour rendre compte de cet aspect dans l'espace de simulation, nous modifions l'angle d'incidence θ de la source. Des instabilités de calculs émergent du fait que l'angle d'injection dépend de la longueur d'onde et nous restreignent à effectuer les calculs numériques dans le cas monochromatique plutôt que large bande. En outre, les couches PML sont optimisées pour absorber les ondes qui leur parviennent avec une incidence normale. Sous incidence oblique, il faut en mettre davantage pour éviter les réflexions parasites, ce qui contribue à augmenter le temps de simulation.

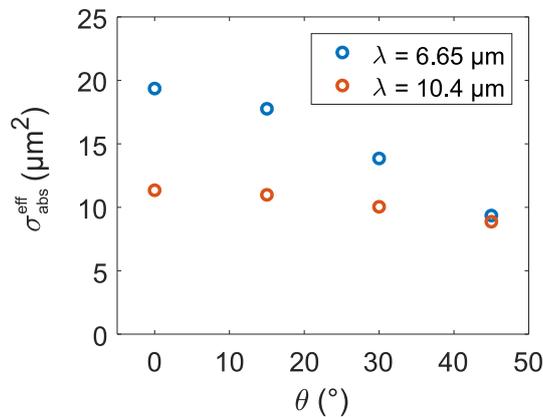


FIGURE IV.10 – Section efficace d'absorption $\sigma_{\text{abs}}^{\text{eff}}$ de nano-antennes MIM en fonction de θ l'angle d'incidence.

Nous nous plaçons au niveau des deux résonances établies précédemment pour une nano-antenne carrée et obtenons les résultats présentés en figure IV.10.

La section efficace d'absorption $\sigma_{\text{abs}}^{\text{eff}}$ est maximale pour les ondes à incidence normale sur l'antenne patch ($\theta = 0^\circ$) et diminue avec θ croissant. La première résonance à $\lambda = 6.65 \mu\text{m}$ diminue de façon plus prononcée que la seconde à $10.4 \mu\text{m}$. Cela entraîne un rapport d'amplitude entre les deux résonances qui varie par rapport au cas en incidence normale.

IV.1.3 Fabrication

Un premier lot d'échantillons de nano-antennes MIM que nous avons caractérisé a été fabriqué par Nathalie Bardou au Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N) et un second lot a été réalisé par NIL Technology, un prestataire extérieur.

Les deux lots d'échantillons ont été fabriqués par lithographie électronique. Les étapes de fabrication sont sensiblement les mêmes. Les différences qui peuvent exister proviennent essentiellement des disparités de l'indice de réfraction des matériaux composant la nano-antenne MIM. En effet, les propriétés optiques de la silice, utilisée ici comme le matériau diélectrique séparant le patch du miroir d'or, sont sensibles à de multiples facteurs tels que les conditions de dépôt, les impuretés éventuelles ou la forme cristalline [132].

Le procédé de fabrication typique des nano-antennes MIM suit les étapes décrites par la figure IV.11.

Sur un substrat de silicium, après avoir déposé au préalable une fine couche d'accroche (de chrome ou titane) de quelques nanomètres d'épaisseur pour promouvoir l'adhésion, une première couche d'or est déposée par évaporation en chauffant le métal au-dessus de son point de fusion dans une enceinte sous vide.

La couche de silice est ensuite déposée par pulvérisation cathodique magnétron. Un plasma formé par un gaz inerte sous vide pulvérise les atomes d'une cible de sorte à effectuer un dépôt sur le substrat.

La lithographie électronique permet de transférer les motifs nanométriques définis par un masque au format GDS. Une résine sensible aux électrons est d'abord enduite sur l'échantillon avant d'être exposée à un faisceau électronique. Lors du développement de la résine, les zones qui sont exposées au faisceau sont dissoutes si la résine est positive. Un dépôt d'or est ensuite effectué par évaporation. Une étape de lift-off consistant à plonger l'échantillon dans un solvant chimique comme du trichloréthylène permet de retirer la résine subsistante de sorte à ce qu'il ne reste que les motifs d'or souhaités.

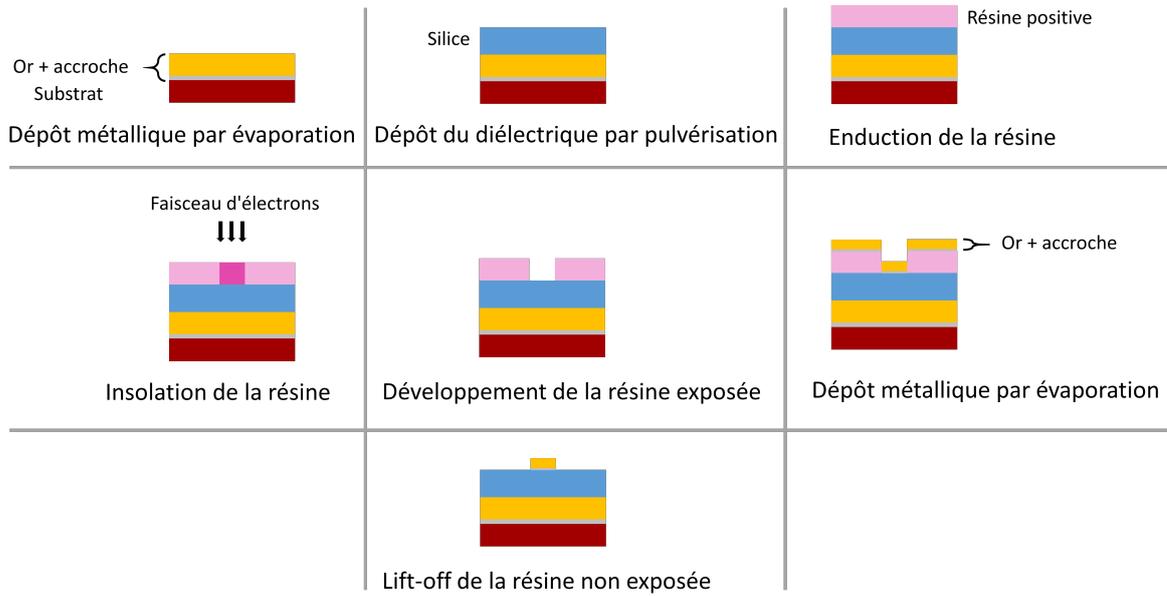


FIGURE IV.11 – Étapes de fabrication des nano-antennes MIM par lithographie électronique.

IV.2 Étude numérique

Les calculs numériques présentés ont été effectués à l'aide d'un logiciel commercial (Lumerical FDTD Solutions) de simulation à différence finie dans le domaine temporel (FDTD).

Cette méthode de calcul permet de résoudre les équations différentielles de Maxwell dans une grille discrétisée spatialement et temporellement de sorte à obtenir chaque composante des champs électrique et magnétique dans une cellule de Yee de dimensions Δx , Δy , Δz . Une taille de maillage très fine entraîne une plus grande fiabilité des résultats et une meilleure représentation de la structure, mais c'est au prix d'un temps de calcul plus important et avec des limites imposées par les capacités de l'ordinateur utilisé.

IV.2.1 Modèles de matériaux

Des modèles analytiques de matériaux dispersifs basés sur des valeurs tabulées de (n, k) (les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction complexe) sont implémentés dans Lumerical pour calculer la réponse électromagnétique de la structure simulée.

Cas de l'or

Dans l'infrarouge, la permittivité de l'or suit un modèle de Drude dont la description détaillée a été donnée au paragraphe II.1.3 :

$$\epsilon(\lambda) = 1 - [(\lambda_p/\lambda + i\gamma)\lambda_p/\lambda]^{-1} \quad (\text{IV.4})$$

où $\lambda_p = 159$ nm et $\gamma = 0.0048$, les valeurs ayant été choisies pour leur bonne concordance avec des mesures expérimentales.

Cas de la silice

La permittivité de la silice a quant à elle été obtenue à partir de mesures ellipsométriques dans l'infrarouge sur une couche mince à température ambiante. A ces mesures a été appliqué un modèle de Brendel-Bormann qui permet de mieux prendre en compte l'aspect non-Lorentzien des films minces amorphes dans l'infrarouge [133]. Dans ce modèle, l'oscillateur de Lorentz que comprend le modèle de Drude est remplacé par une superposition d'oscillateurs. Les paramètres de chaque oscillateur N du modèle sont détaillés dans le tableau IV.1.

Les mesures ayant été conduites sur des films de silice d'épaisseurs différentes de celles des échantillons étudiés, un écart entre l'indice de réfraction complexe modélisé et celui du matériau composant l'échantillon est possible puisque ce paramètre affecte l'absorption au sein du diélectrique [132].

TABLE IV.1 – Paramètres des oscillateurs dans le modèle de Brendel-Bormann

N	$\epsilon(\infty)$	ν_{0N}	$\nu_{\tau N}$	ν_{pN}	σ_N
1	2.17	1004	9.3	250.2	63.7
2		1103.2	15.3	691.2	30
3		1356.7	1637	6.6	121.1
4		1217.5	0.0178	264	48.6

IV.2.2 Section efficace

Pour caractériser la réponse d'une nano-antenne unique, nous cherchons à calculer sa section efficace d'absorption $\sigma_{\text{eff}}^{\text{abs}}$ qui est équivalente à sa section efficace d'émission $\sigma_{\text{eff}}^{\text{ém}}$. Cette grandeur physique représente la surface d'interaction avec le rayonnement.

Dans l'espace de simulation de Lumerical (Fig. IV.12), la structure est illuminée par une onde plane polarisée arrivant en incidence normale sur la nano-antenne MIM avec une intensité $I_{\text{source}}(\omega)$. Des couches absorbantes parfaitement adaptées (PML : *Perfectly matched layers*) sont appliquées aux limites pour absorber le rayonnement orienté vers l'extérieur.

Le flux du vecteur de Poynting $\mathbf{\Pi} = \mathbf{E}(\omega) \times \mathbf{H}^*(\omega)$ permet de déterminer la puissance électromagnétique traversant une surface S disposée à une certaine distance de la structure. En comparant cette valeur à la puissance de la source, nous obtenons la puissance rayonnée dans une direction de l'espace.

Si nous prenons par exemple une surface de taille finie dans le plan yz , située à une distance x positive de la structure, la puissance passant par celle-ci s'écrit :

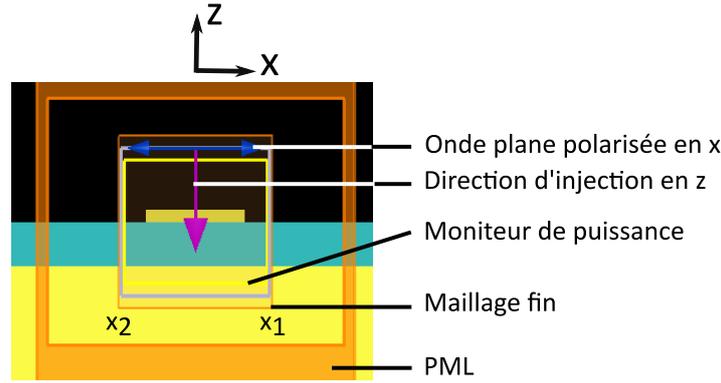


FIGURE IV.12 – Espace de simulation dans Lumerical : une onde plane polarisée selon la double flèche bleue illumine en incidence normale la nano-antenne qui est encadrée de moniteurs en jaune enregistrant la puissance nette qui les traverse.

$$P_{x1}(\omega) = \frac{1}{2} \int_S \text{Re}[\mathbf{\Pi}(\omega)] \cdot d\mathbf{S} \quad (\text{IV.5})$$

Par symétrie du problème, la puissance passant par une surface située à la distance $-x$ de la structure est : $P_{x2}(\omega) = P_{x1}(\omega)$

La puissance totale est déterminée en prenant en compte les six directions de l'espace qui encadrent la structure étudiée :

$$P_{\text{tot}}(\omega) = \sum_{i=x,y,z} \sum_{j=1,2} P_{ij}(\omega) \quad (\text{IV.6})$$

La section efficace est alors déduite à partir de l'intensité de la source :

$$\sigma_{\text{ém}}^{\text{eff}}(\omega) = \sigma_{\text{abs}}^{\text{eff}}(\omega) = \frac{P_{\text{tot}}(\omega)}{I_{\text{source}}(\omega)} \quad (\text{IV.7})$$

IV.2.3 Densité locale d'états électromagnétiques

La densité locale d'états électromagnétiques (LDOS), dont la description a été traitée plus en détail dans le chapitre II peut être assimilée au nombre de désexcitations disponibles pour un dipôle \mathbf{p} orienté dans la direction \mathbf{u} pour une position \mathbf{r} et à une fréquence ω . Dans une vision classique, elle correspond à la puissance perdue par un dipôle source placé en un point de l'espace dans un environnement donné. Cette LDOS, notée $\rho_{\mathbf{u}}(\mathbf{r}, \omega)$, est dite partielle car elle correspond à une direction d'orientation du dipôle fixe. La LDOS totale résulte de la somme des LDOS partielles dans les trois directions d'orientation possible du dipôle.

La puissance P émise par le dipôle peut être mise en lien avec la LDOS par la relation de proportionnalité suivante [74] :

$$P = \frac{\pi\omega^2}{4\epsilon_0} |\mathbf{p}|^2 \rho_{\mathbf{u}}(\mathbf{r}, \omega) \quad (\text{IV.8})$$

Nous obtenons une cartographie de la LDOS au voisinage d'une nano-antenne MIM par simulation à l'aide de Lumerical en déterminant la puissance rayonnée par un dipôle électrique en fonction de sa position spatiale dans un plan xy situé au-dessus de la structure, de manière à émuler la situation d'une sonde locale à balayage qui la survole. Obtenir la LDOS totale nécessiterait trois simulations pour les trois orientations du dipôle mais comme abordé dans le chapitre II, notre montage expérimental TRSTM favorise davantage la contribution de la composante orientée dans l'axe de la pointe oscillante et nous nous contentons de calculer la puissance pour un dipôle orienté en z . Cette simplification se justifie par la lourdeur des calculs numériques, un pixel d'une carte de LDOS étant équivalent à une simulation FDTD complète de toute la structure.

IV.3 Étude expérimentale

Les échantillons étudiés ont été réalisés au C2N par lithographie électronique selon le processus présenté précédemment. Ils comportent des nano-antennes MIM constituées d'une couche d'or d'épaisseur $t'_m = 200$ nm, une couche de silice d'épaisseur $t_d = 180$ nm et enfin d'un patch carré d'or d'épaisseur $t_m = 50$ nm et de largeur w variant entre 2 et 2.4 μm (Fig.IV.13(a)). La dimension de la nano-antenne a été choisie de sorte à ce que la résonance qui suit la condition d'accord de phase pour l'ordre fondamental (Eq.IV.3) se situe dans l'infrarouge moyen dans la gamme spectrale adaptée au détecteur MCT utilisé dans les montages d'imagerie et de spectroscopie de nos expériences. La densité de nano-antennes couvrant l'échantillon est volontairement très faible avec un pas de 100 μm afin de pouvoir considérer chaque nano-antenne comme indépendante de ses voisines. De plus, ce pas important permet de ne conserver qu'une seule nano-antenne dans le champ de vue du montage expérimental lors de la caractérisation (Fig.IV.13(b)).

IV.3.1 Caractérisation en spectroscopie de champ lointain

Nous utilisons la technique de spectroscopie par modulation spatiale dont le montage expérimental est explicité au chapitre III pour caractériser les nano-antennes MIM.

Localisation de la nano-antenne

Une difficulté réside dans l'alignement de la nano-antenne unique. L'ajustement visuel de la position de la nano-antenne dans le champ de l'objectif est délicat car ce dernier est essentiellement destiné à un usage dans l'infrarouge et ses performances dans le visible sont assez médiocres comparativement aux objectifs corrigés disponibles pour les observations dédiées au

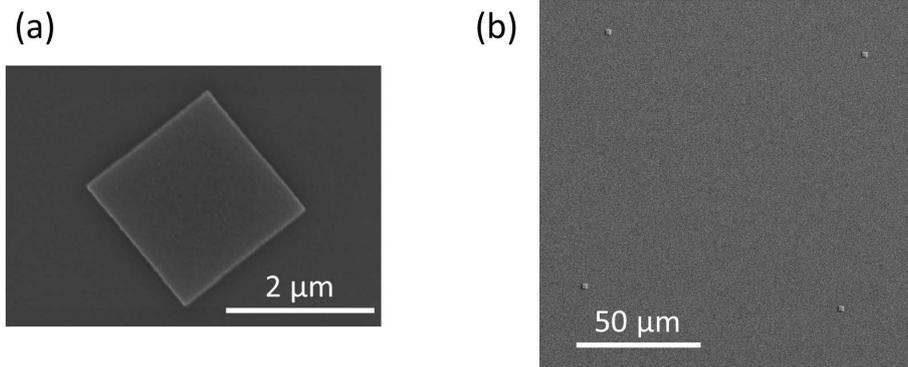


FIGURE IV.13 – Images MEB (a) d’une nano-antenne MIM unique et (b) de quatre nano-antennes MIM arrangées en réseau bipériodique de pas égal à $100\ \mu\text{m}$.

visible en microscopie.

La région confocale, qui correspond à la zone dans le plan échantillon conjuguée avec le détecteur infrarouge, fait environ $30\ \mu\text{m}$ de côté. Pour y amener la nano-antenne unique, nous faisons d’abord chauffer de façon uniforme l’échantillon à une température d’environ 160°C et appliquons avec un générateur de basses fréquences une modulation sinusoïdale qui s’écrit sous la forme $\frac{A_x}{2} \sin(2\pi ft)$ avec $A_x = 26\ \mu\text{m}$ l’amplitude de modulation dans la direction x et $f = 21\ \text{Hz}$ la fréquence de modulation. Nous effectuons une image en xy avec une modulation de l’échantillon rapide par rapport à la vitesse de balayage afin que plusieurs oscillations de la nano-antenne autour de sa position moyenne soient intégrées par pixel sur la période fixée par la constante de temps de notre détection synchrone.

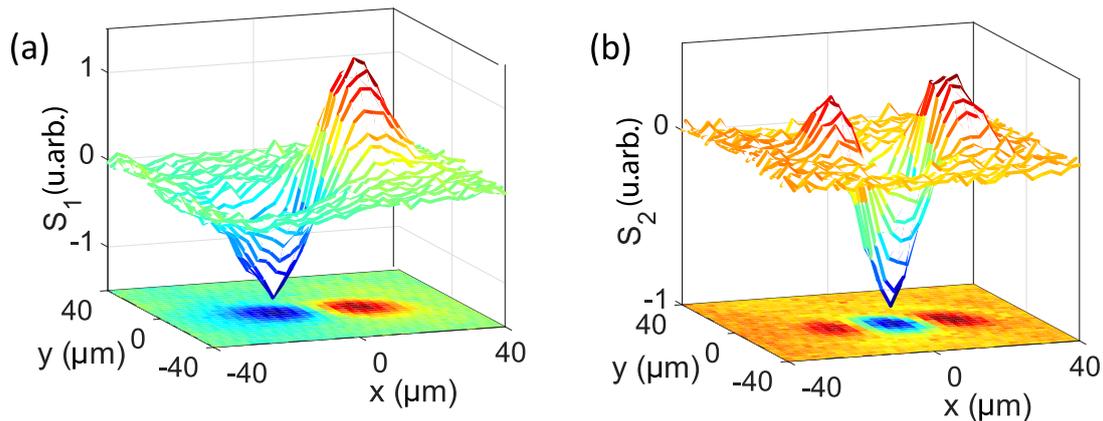


FIGURE IV.14 – Représentations en relief des signaux S_1 et S_2 lors du balayage dans le plan xy d’une nano-antenne unique modulée spatialement dans la direction x avec projection en deux dimensions en bas du graphique.

Les images correspondant aux signaux S_1 et S_2 démodulés à Ω et 2Ω respectivement par la détection synchrone sont tracées simultanément et représentées en figure IV.14 en relief pour

mieux rendre compte des fortes variations spatiales des signaux. Nous retrouvons des lobes avec alternance de signe dans la direction de modulation x . Comme il a été vu dans le chapitre III, la nano-antenne se trouve au centre de la zone de détection dans le plan échantillon quand il y a à la fois une annulation du signal S_1 et un extremum en S_2 . Nous pouvons ainsi localiser notre nanostructure unique avec une précision sub-longueur d'onde par le biais de cette technique de champ lointain. Pour obtenir le maximum de signal, nous déplaçons la nano-antenne au sommet de l'un des lobes de S_1 et nous la maintenons à cette position pour l'enregistrement d'un spectre d'émission.

Mesure du spectre d'émission

Nous passons à présent en voie de spectroscopie afin d'analyser le contenu spectral du signal démodulé S_1 . Un ensemble de nano-antennes carrées de tailles différentes, leur côté w variant de 2 à 2.4 μm , est étudié en conservant les mêmes paramètres expérimentaux.

La faible fréquence de modulation spatiale est imposée par les limites du piézoélectrique et nous contraind à intégrer sur de longues durées les oscillations spatiales de la nano-antenne lors de la mesure avec le FTIR en mode *step scan*. La constante de temps τ est réglée à 500 ms et un délai de stabilisation de 5τ est choisi pour chaque pas qu'effectue le miroir mobile. Les spectres moyennés représentés dans la suite correspondent chacun à une durée d'acquisition d'environ 45 minutes.

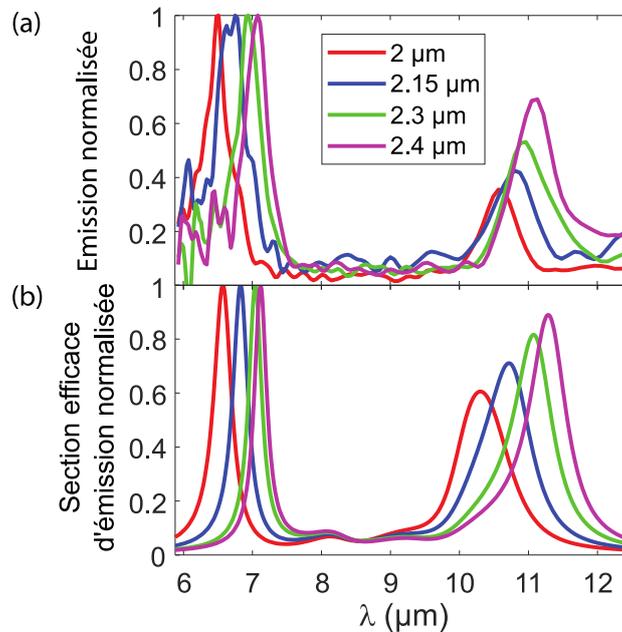


FIGURE IV.15 – (a) Spectres d'émission normalisés mesurés pour différentes tailles de nano-antennes MIM de côté w . (b) Sections efficaces d'émission normalisées obtenues par calculs numériques.

Les spectres bruts mesurés sont divisés par un spectre expérimental de référence de corps noir de même température afin de s'affranchir de la réponse instrumentale comme il a été détaillé dans le paragraphe II.2.3. Les spectres résultants normalisés à 1 (Fig. IV.15(a)) sont comparés avec les sections efficaces d'émission calculées numériquement (Fig. IV.15(b)). En accord avec les prédictions théoriques, deux résonances se dégagent dans la gamme spectrale d'intérêt avec une bonne concordance quant à la position des pics. Comme dans les simulations numériques, nous mesurons également un décalage spectral des résonances vers les plus grandes longueurs d'onde quand la taille de la nano-antenne augmente.

Les différences d'amplitudes relatives entre les deux résonances observées en comparant mesures et simulations peuvent être attribuées à des désaccords entre l'indice de la silice modélisé et son indice véritable et potentiellement aussi à des facteurs expérimentaux délicats à maîtriser qui font que tout le rayonnement provenant de la nano-antenne MIM n'est pas collecté uniformément sur toute la gamme spectrale détectée.

IV.3.2 Caractérisation en imagerie de champ proche

Le fait que les nano-antennes MIM fabriquées supportent plusieurs résonances pour une même distribution modale présente un avantage pour notre technique d'imagerie en champ proche où le signal détecté est extrêmement faible, l'essentiel du champ étant confiné sous le patch carré de la nano-antenne, dans une zone inaccessible à la pointe du TRSTM. En effet, nous pouvons nous permettre d'intégrer le signal sur toute la gamme spectrale du détecteur MCT de notre montage plutôt que d'avoir recours à un filtre. Puisqu'il n'y a pas coexistence de plusieurs modes de distributions spatiales différentes qui se superposeraient, nous pouvons de cette manière gagner en amplitude de signal détectée par le TRSTM.

Pour effectuer une image de champ proche de l'échantillon, celui-ci est amené à une température d'environ 100°C. La température est plus basse que les mesures spectrales en raison de la sensibilité de la pointe à la chaleur. Au-delà d'environ 120°C, le collage cyanoacrylate, qui maintient la pointe de tungstène solidaire au diapason, se ramollit, perd en adhérence, ce qui cause des instabilités lors de l'asservissement du contact entre la pointe et la surface de l'échantillon.

La structure que nous étudions est une nano-antenne MIM carrée de côté $w = 2.4 \mu\text{m}$ que nous amenons sous l'extrémité de la pointe avant d'initier le contact. La constante de temps de la détection synchrone τ connectée au détecteur MCT est réglée à 200 ms et la zone de balayage s'étend sur $6 \mu\text{m} \times 6 \mu\text{m}$ et comprend 128×128 pixels. Le signal provenant de la démodulation à la seconde harmonique S_2^{NF} est enregistré.

Les images de topographie (Fig. IV.16(a)) et de champ proche (Fig. IV.16(b)) sont obtenues simultanément à partir de la boucle de rétroaction régissant la hauteur en z de la pointe et de la détection synchrone respectivement. Le relief du patch carré de hauteur 50 nm est reconstitué au cours du balayage ligne par ligne de la pointe. L'échantillon présentant une légère inclinaison,

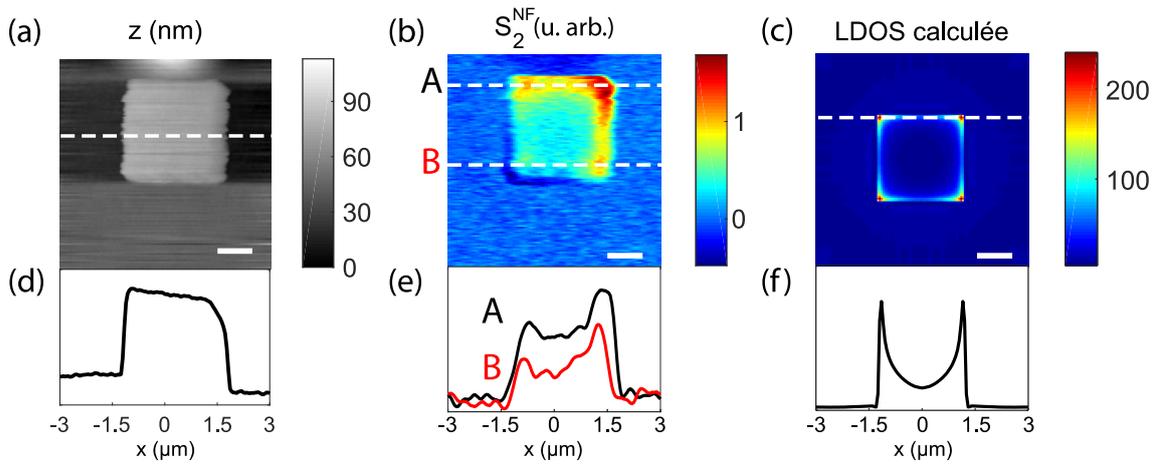


FIGURE IV.16 – (a) Topographie et (b) distribution optique en champ proche. (c) Carte de LDOS calculée à la résonance λ_1 dans un plan z situé à 50 nm au-dessus du patch carré. (d-f) Profils correspondants aux lignes en pointillé. La barre d'échelle représente 1 μm .

un retrait de la pente moyenne de chaque ligne de balayage est appliqué aux données brutes en post-traitement et est à l'origine des bords sombres de l'image topographique apparaissant de part et d'autre de la structure carrée. Comme le montre le profil (Fig. IV.16(d)), le patch carré apparaît plus large que sa dimension nominale de $w = 2.4 \mu\text{m}$ en raison de la taille non ponctuelle de la pointe qui engendre une convolution entre la forme de celle-ci et celle de l'objet.

L'image optique de champ proche, qui reflète la distribution de la LDOS à la surface de l'échantillon, révèle la présence d'une plus forte intensité au niveau des bords de la structure, en particulier aux coins, en accord qualitatif avec les simulations numériques (Fig. IV.16(c)). Un plus fort signal est visible dans le coin supérieur droit du patch carré. Toutefois, le profil (Fig. IV.16(d)) montre bien que des maxima locaux sont situés à chacun des quatre coins du carré. Cette asymétrie provient de la légère inclinaison de la pointe diffusante par rapport à l'axe optique causée par les contraintes de collage avec le diapason et qui résulte en la détection privilégiée d'une direction. Des images effectuées avec la même pointe sur d'autres nano-antennes font preuve de cette même asymétrie, confirmant que cette tendance n'est pas propre à un défaut local d'une nano-antenne en particulier.

IV.4 Limites expérimentales

A cause de la nature ténue du signal à extraire de l'environnement, nous discutons dans cette section de la sensibilité du montage expérimental et de ses limites.

IV.4.1 Contribution de la diffusion

Pour le montage expérimental de spectroscopie de champ lointain exploitant la modulation spatiale d'un échantillon chauffé, le signal détecté provient de la collection du rayonnement thermique modulé dans la région confocale. Comme l'échantillon est chauffé par le bas et que le miroir en or composant les nano-antennes MIM est suffisamment épais pour pouvoir négliger la transmission, nous considérons que la plaque chauffante ne contribue pas au signal détecté et que l'essentiel du signal collecté provient de l'émission de la nano-antenne isolée.

Cependant, l'environnement qui est à la température ambiante T_{amb} et qui entoure l'échantillon produit un rayonnement de champ lointain susceptible d'être diffusé par la nano-antenne modulée spatialement, donnant lieu à une contribution supplémentaire dépendant de la section efficace de la nano-antenne σ_{scat} . Pour estimer son influence, nous faisons l'hypothèse que ce rayonnement ambiant peut être assimilé à celui d'un corps noir à la température T_{amb} , ce qui constitue une borne supérieure. Nous pouvons ainsi appliquer la loi de Planck (Eq. I.2) et obtenir la luminance spectrale L_{λ} exprimée en $\text{W/m}^2/\text{sr/m}$.

L'intensité spectrale émise ou diffusée par un objet donné est exprimée en $\text{W/sr}/\mu\text{m}$ et s'obtient par la formule suivante :

$$I_{\lambda}(\lambda, T) = \sigma_{\text{eff}} L_{\lambda}(\lambda, T) \quad (\text{IV.9})$$

où σ_{eff} est la section efficace d'émission ou de diffusion de l'objet.

Nous pouvons ainsi déterminer une limite supérieure au terme de diffusion $\sigma_{\text{scat}}^{\text{eff}} L_{\lambda}(\lambda, T_{\text{amb}})$ et la comparer à la contribution de l'intensité émise par la nano-antenne chauffée à $T_{\text{éch}}$ qui est égale à $\sigma_{\text{ém}}^{\text{eff}} L_{\lambda}(\lambda, T_{\text{éch}})$.

Considérons une nano-antenne de côté $w = 2 \mu\text{m}$ et dont les couches ont les mêmes épaisseurs que l'échantillon étudié précédemment. Le calcul numérique de sa section efficace d'émission et de diffusion nous permet d'obtenir les courbes suivantes d'intensité spectrale en figure IV.17.

L'intensité diffusée par la nano-antenne est inférieure à celle émise par la nano-antenne chauffée d'un facteur 7 pour la première résonance et d'un facteur 32 pour la seconde. Ce cas représentant celui le plus défavorable où le maximum de rayonnement ambiant est collecté, nous considérons que la contribution diffusée par la nano-antenne est assez petite pour pouvoir être négligée.

IV.4.2 Sensibilité

La technique de modulation spatiale couplée au rayonnement thermique permet d'atteindre une sensibilité assez élevée pour isoler la réponse d'une nanostructure individuelle de dimen-

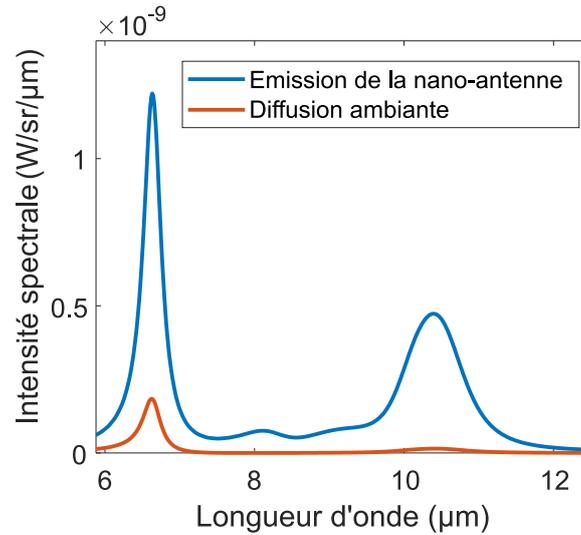


FIGURE IV.17 – Intensité spectrale en $\text{W/sr}/\mu\text{m}$ de l'émission d'une nano-antenne chauffée à la température $T_{\text{éch}} = 433\text{K}$ et de la diffusion d'un rayonnement de corps noir à température ambiante $T_{\text{amb}} = 293\text{K}$ par la nano-antenne.

sions sub-longueur d'onde. Nous estimons par une étude radiométrique la puissance émise par une nano-antenne MIM de taille $w = 2 \mu\text{m}$ par rapport à celle du fond thermique environnant de laquelle elle est extraite.

En figure IV.17 est représentée l'intensité spectrale calculée d'une nano-antenne MIM à la température $T_{\text{éch}} = 433\text{K}$. En intégrant l'intensité spectrale sur la plage d'intérêt (entre 6 et 12 μm) ainsi que sur l'angle solide dans lequel la nano-antenne rayonne, nous obtenons la puissance émise par la nano-antenne P_{MIM} .

Pour simplifier le problème, nous considérons que l'émission de la nano-antenne est homogène dans l'ensemble de son lobe de rayonnement, c'est-à-dire qu'elle est la même dans l'angle solide défini par un cône de demi-angle 30° et qu'elle est nulle en-dehors. En intégrant l'équation IV.9 sur la plage spectrale et l'angle solide, nous obtenons $P_{\text{MIM}} \simeq 1 \text{ nW}$.

Tout le rayonnement émis par la nano-antenne MIM ne parvient pas jusqu'au détecteur. En effet, l'objectif Cassegrain utilisé dans le montage collecte la lumière dans les angles d'incidence compris entre 15 et 30° . En outre, la détectivité du détecteur MCT dépend de la longueur d'onde. A cela s'ajoutent des pertes additionnelles liées à la propagation sur le trajet optique qui traverse le spectromètre FTIR et mesure environ $1,5 \text{ m}$. Ainsi, la puissance réellement détectée est bien plus faible que la puissance totale émise par la nano-antenne. Expérimentalement, les signaux mesurés de la nano-antenne modulée correspondent à une puissance détectée typiquement de l'ordre de $\sim 50 \text{ pW}$.

En revanche, le rayonnement du fond thermique provenant du substrat de l'échantillon est

prépondérant puisqu'il est collecté sur toute la surface du plan échantillon conjuguée au détecteur, soit la région confocale A_{conf} . Comme nous l'avons vu dans le chapitre III, la réponse spatiale du détecteur peut être approximée par une fonction Gaussienne 2D dont la largeur à mi-hauteur est évaluée expérimentalement à $17 \mu\text{m}$ (Fig. III.10). Cela signifie que la détectivité est maximale pour un objet ponctuel situé au centre de la zone de détection et qu'elle chute de moitié quand l'objet est excentré de $17 \mu\text{m}$. En intégrant spatialement cette Gaussienne, nous obtenons la surface de la région confocale $A_{\text{conf}} \simeq 350 \mu\text{m}^2$.

Les mesures de spectroscopie d'émission comparant un substrat homogène composé d'un empilement d'or et de silice sans nanostructuration avec une référence se comportant comme un corps noir de même température ont été réalisées sans modulation. Connaissant la luminance d'un corps noir, nous pouvons estimer le rayonnement du fond thermique collecté dans la région confocale et obtenons ainsi $P_{\text{fond}} \simeq 18 \text{ nW}$. Ainsi la contribution de la nano-antenne ne s'élève qu'à un faible pourcentage du rayonnement total arrivant au détecteur.

Les mesures spectrales ont été effectuées de façon systématique à une température d'échantillon de 160°C . Chauffer à une température plus élevée permettrait d'améliorer le rapport signal sur bruit des mesures mais nous sommes limités par des contraintes expérimentales. En effet, le système de translation fine sur lequel repose l'échantillon a une plage de température d'opération limitée car au-dessus de la température de Curie, le matériau perd ses propriétés piézoélectriques. Il faut donc veiller à ne pas dépasser une température de 80°C au niveau du piézoélectrique.

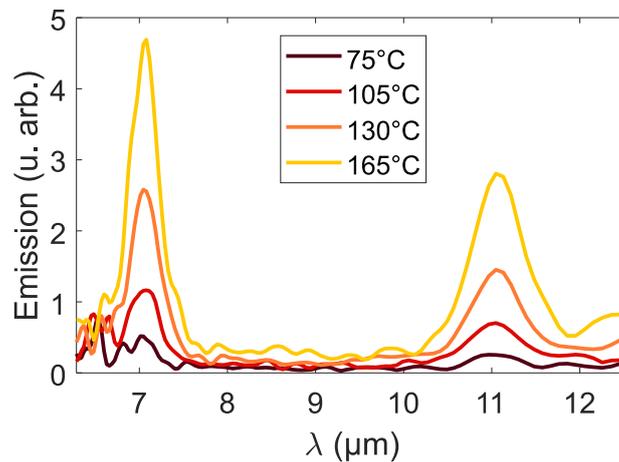


FIGURE IV.18 – Spectres d'émission d'une nano-antenne MIM de taille $w = 2.4 \mu\text{m}$ en fonction de la température.

Nous avons effectué des mesures de spectres à différentes températures pour déterminer la limite de détection de notre montage expérimental (IV.18). En descendant à 75°C , il demeure possible d'extraire les résonances spectrales du bruit. A cette température, l'intensité spectrale

de la nano-antenne est environ trois fois plus faible qu'à 165°C. Comme la nano-antenne étudiée est le siège de deux résonances d'environ même énergie, nous nous attendons à ce que la limite de détection corresponde à une puissance émise d'un ordre de grandeur en-dessous de celle des nano-antennes que nous avons étudiées. Cela est cohérent avec les limites typiques du détecteur infrarouge MCT refroidi à l'azote liquide utilisé dans notre montage qui permet de détecter des signaux correspondant à une puissance incidente de quelques picowatts. Cette limite de détection de puissance est en lien avec la section efficace d'émission minimale que notre montage peut résoudre.

IV.4.3 Précision de localisation

Avec la technique de modulation spatiale, le déplacement de l'échantillon est piloté par une platine de translation piézoélectrique de sorte à ce que la position de la nano-antenne en fonction du temps peut s'écrire de la façon suivante : $x(t) = x_0 + \frac{A_x}{2} \sin(\Omega t)$ avec x_0 la position moyenne d'oscillation de la nano-antenne, A_x l'amplitude de modulation totale de la nano-antenne dans la direction x et Ω la fréquence d'oscillation.

La position de la nano-antenne relative à la région confocale est déterminée par les variations spatiales des signaux démodulés aux fréquences Ω et 2Ω par la détection synchrone, S_1 et S_2 respectivement.

Nous pouvons déterminer que la nano-antenne est placée au centre de la région confocale quand nous avons simultanément l'annulation de S_1 et l'extremum de S_2 . Pour évaluer la précision de localisation d'un objet sub-longueur d'onde par cette technique de champ lointain, nous répétons le balayage d'une nano-antenne modulée spatialement en x en gardant la position y fixe. Les lignes balayées sont corrigées de la légère dérive thermique et sont tracées en Fig.IV.19. Le temps total d'acquisition de ces 64 lignes est de 43 minutes.

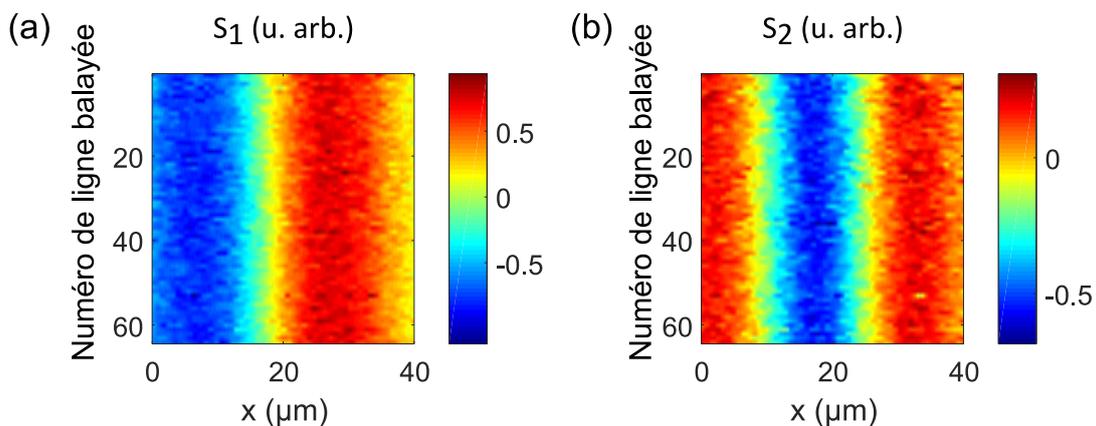


FIGURE IV.19 – Précision de localisation d'une nano-antenne modulée spatialement au cours de 64 balayages de ligne déterminée par la mesure des signaux démodulés (a) S_1 et (b) S_2 .

La position moyenne de la nano-antenne x_0 est 17.78 ± 0.48 µm pour le signal démodulé à

Ω et $17.43 \pm 1.24 \mu\text{m}$ pour une démodulation à 2Ω . La précision de localisation est meilleure avec le signal S_1 en raison du fait qu'il est plus évident de déterminer le passage à zéro plutôt qu'un extremum au voisinage direct duquel le signal varie peu et qui dépend de façon plus sensible du nombre de points de mesure pour une ligne.

IV.4.4 Bruits

La technique de spectroscopie alliant modulation spatiale et rayonnement thermique est sujette à diverses limitations de bruit comme le bruit thermique, le bruit de Schott ou le bruit en $1/f$.

Nous déterminons le rapport signal sur bruit dans nos mesures en estimant dans les spectres expérimentaux le maximum d'amplitude à la résonance et l'écart-type des fluctuations de la ligne de base dans la plage spectrale en-dehors des résonances [100]. Nous trouvons ainsi un rapport signal sur bruit compris entre environ 15 et 45 pour les différents spectres mesurés en figure IV.15.

Une manière d'augmenter le rapport signal sur bruit outre l'élévation de la température de chauffage déjà mentionnée serait d'augmenter la fréquence de modulation de la nanostructure étudiée, qui est actuellement d'environ 20 Hz. Cela permettrait de réduire le bruit en $1/f$ ainsi que d'acquérir plus rapidement des spectres pour pouvoir en moyennner davantage. Le temps d'acquisition des données expérimentales par modulation spatiale est pour le moment limité par l'utilisation du spectroscope en mode *step-scan* ainsi que par la vitesse d'opération limitée de la platine de translation piézoélectrique.

IV.5 Couplage inter-antennes

Suite à ces études sur des nano-antennes individuelles qui nous ont permis d'extraire leur réponse propre, nous avons commencé à nous intéresser à la caractérisation d'un nombre réduit d'antennes pour étudier les effets de couplage affectant la réponse optique.

Un nouveau lot d'échantillons a été fabriqué spécifiquement pour étudier les interactions entre nano-antennes MIM voisines selon leur nombre ou la distance les séparant. Ces échantillons alternent trois couches or/silice/or d'épaisseurs $t_m = 100 \text{ nm}$, $t_d = 300 \text{ nm}$ et $t'_m = 100 \text{ nm}$ avec des couches d'accroche de chrome de 5 nm.

Comme les échantillons ont été fabriqués par un prestataire extérieur, des mesures de caractérisation de la couche diélectrique par ellipsométrie infrarouge ont été réalisées à l'Institut Pprime avec l'aide de Jérémie Drevillon et de Hélène Grassin afin d'affiner le modèle du matériau employé dans les simulations numériques.

En complément de la technique de spectroscopie par modulation spatiale nouvellement développée, nous confrontons les résultats avec des spectres de réflectivité obtenus avec un instrument commercial (Bruker Hyperion) couplant un microscope droit doté d'une illumination IR large bande arrivant par le haut avec un FTIR et d'un objectif Cassegrain d'ouverture numérique 0.4. Cet instrument, qu'a acquis l'ONERA au cours de ma dernière année de thèse, met en jeu un diaphragme ajustable avec une précision micrométrique à l'aide de lame de couteaux permettant de grandement réduire la contribution du fond environnant lors de mesures de nanostructures isolées. Les spectres réalisés avec l'Hyperion sont normalisés avec une référence prise sur les couches silice et or, en-dehors de toute nanostructure, et sont comparables à la section efficace d'extinction $\sigma_{\text{ext}}^{\text{eff}}$ et non directement à la section efficace d'émission $\sigma_{\text{ém}}^{\text{eff}}$ à cause de la diffusion.

Notons qu'il s'agit ici d'un travail préliminaire et encore très prospectif qui méritera d'être approfondi par la suite.

IV.5.1 Nano-antennes MIM individuelles

Comme les échantillons nouvellement réalisés présentent des couches d'épaisseurs différentes et ont été fabriqués par un prestataire extérieur, les conditions de résonance ne sont pas identiques à l'étude précédente (cf. section IV.3) et nous avons commencé par caractériser des nano-antennes individuelles. Celles-ci sont également de forme carrée et de taille w variant de 2 à 2.7 μm par pas de 100 nm.

Des mesures sont réalisées en émission par modulation spatiale (Fig. IV.20(a)) et en réflectivité avec le microscope Hyperion (Fig. IV.20(b)). Pour cette dernière, les mesures exigent un temps d'acquisition long en raison du flux lumineux grandement réduit par la taille du diaphragme et chaque courbe obtenue correspond à la moyenne de 2000 spectres.

Dans les deux cas de figure, deux résonances, résultant de la dispersion de l'indice effectif, sont de nouveau observées expérimentalement avec un décalage vers les grandes longueurs d'onde pour une taille w qui augmente. En réflectivité, les antennes produisent une extinction partielle du flux incident rétro-réfléchi à la surface de l'échantillon. Les résonances se manifestent donc dans les spectres par des creux correspondant à une diminution de l'ordre de 2 à 3% du signal par rapport à sa valeur hors résonance.

La différence d'ouvertures numériques entre les deux montages ainsi que la contribution supplémentaire de la diffusion dans les mesures de réflectivité affectent les spectres et ne les rendent pas directement comparables vis-à-vis de l'amplitude et de la largeur des résonances. Toutefois, ces données apportent des éléments complémentaires et nous pouvons vérifier que la position des résonances, obtenue par ajustement des courbes de résonance par des lorentziennes, se superpose pour les deux méthodes expérimentales (Fig. IV.20(c)), les faibles écarts (< 50 nm) entre les deux pouvant être attribués au bruit affectant les spectres des antennes de plus petites dimensions (en violet et bleu) ainsi qu'à des écarts de tailles d'antenne avec la valeur

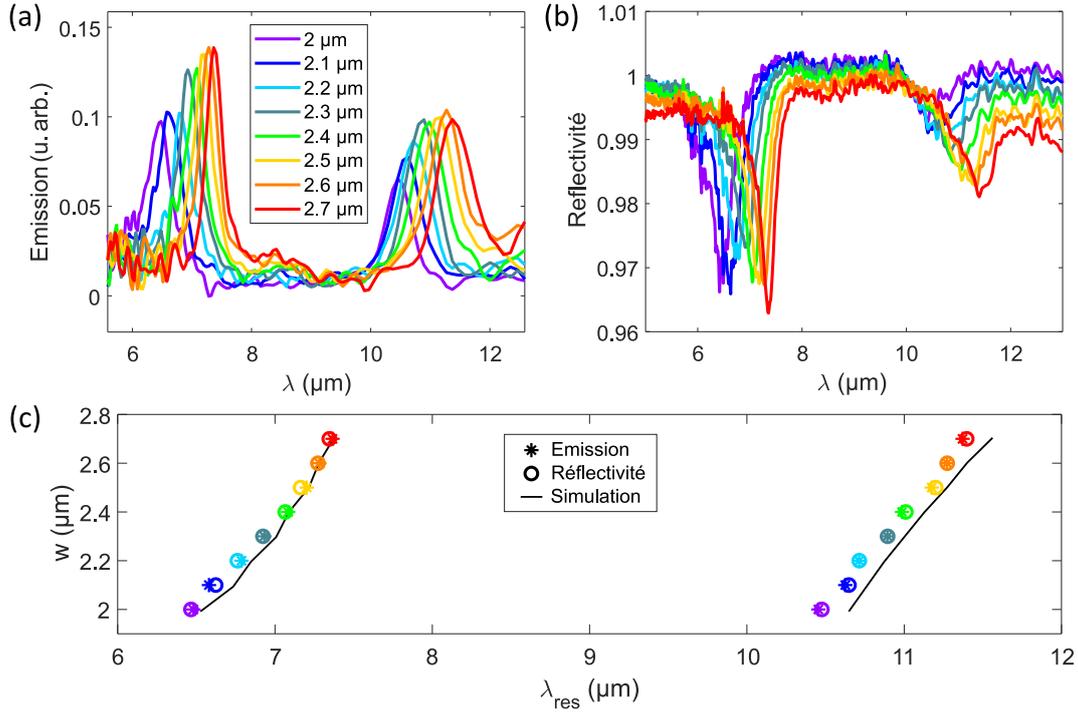


FIGURE IV.20 – Spectres de nano-antennes MIM de taille w variable (a) en émission par modulation spatiale (b) en réflectivité. (c) Comparaison de la position de la longueur d’onde de résonance λ_{res} entre les techniques expérimentales et les simulations numériques pour chaque taille de nano-antenne w .

nominales, les mesures n’ayant pas été réalisées exactement sur la même nano-antenne au sein de l’échantillon.

Les simulations numériques présentent un bon accord pour la première résonance λ_1 . Pour la seconde λ_2 , un décalage vers les grandes longueurs d’onde atteignant 190 nm est visible qui pourrait être issu du modèle de silice employé pour les simulations, cette seconde résonance étant davantage influencée par les variations de n_{eff} et k_{eff} avec la longueur d’onde.

IV.5.2 Alignement de nano-antennes MIM

Nous étudions N nano-antennes MIM identiques de taille $w = 2 \mu\text{m}$ alignées les unes à la suite des autres avec N un nombre entier allant de 1 à 8 (Fig. IV.21(a)). La section efficace d’émission étant estimée numériquement à $20 \mu\text{m}^2$ pour une unique nano-antenne de côté $w = 2 \mu\text{m}$ (Fig. IV.3(b)), cela revient à un diamètre d’environ $5 \mu\text{m}$ si l’on ramène la section efficace à un cercle. La distance inter-antennes g définie comme étant la distance centre-à-centre les séparant est de $4 \mu\text{m}$, ce qui assure qu’il y ait un recouvrement partiel des sections efficaces de deux nano-antennes voisines.

L’objectif de cette structure est de déterminer si la réponse d’une nano-antenne est perturbée par la présence de nano-antennes voisines identiques. Comme la section efficace d’absorption

$\sigma_{\text{abs}}^{\text{eff}}$ d'une nano-antenne est plus grande que sa section géométrique à la longueur d'onde de résonance, il est possible de réaliser une métasurface dont l'absorptivité est quasi-unitaire avec un pavage adéquat de la cellule unité [22]. Pour des nano-antennes placées à forte proximité (Fig. IV.21(b)), le recouvrement de leurs sections efficaces d'absorption peut susciter une compétition entre les deux nano-antennes puisque les photons incidents arrivant à leur intersection sont susceptibles d'être absorbés par l'une ou l'autre [134].

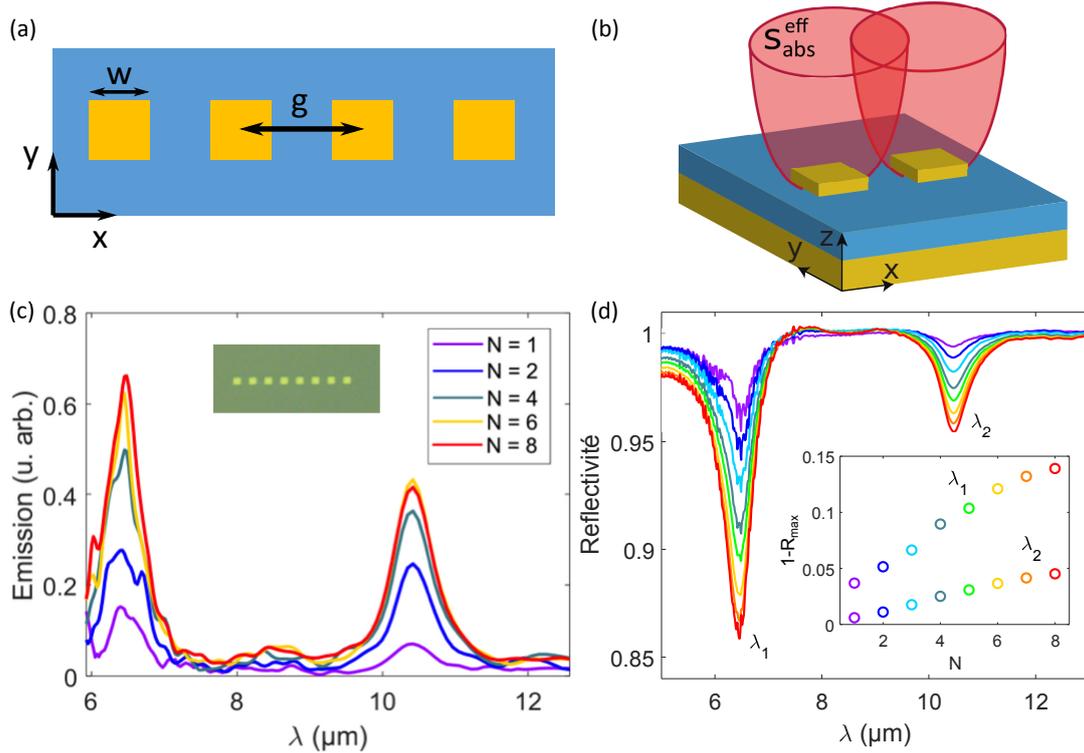


FIGURE IV.21 – (a) Schéma de la structure où N nano-antennes MIM identiques de côté $w = 2 \mu\text{m}$ sont alignées en étant séparées par un écart de $g = 4 \mu\text{m}$. (b) Schéma illustrant le recouvrement possible des sections efficaces d'absorption $\sigma_{\text{abs}}^{\text{eff}}$ de nano-antennes MIM proches l'une de l'autre. (c) Spectres de N nano-antennes MIM en émission par modulation spatiale avec en encart une image de la structure à 8 nano-antennes MIM. (d) Spectres en réflectivité avec la représentation en encart de l'amplitude de la résonance en fonction du nombre N d'antennes.

Nous remarquons dans les spectres obtenus par les deux techniques expérimentales que les amplitudes des résonances évoluent différemment. Dans le cas des mesures en réflectivité, la progression est quasi-linéaire avec le nombre d'antennes N (Fig. IV.21(d)) jusqu'à $N = 7$. L'amplitude de la première résonance λ_1 pour $N = 8$ étant proche de celle pour $N = 7$ (courbes rouge et orange), cela se traduit par une amorce de rupture de pente dans le graphique en encart. Une hypothèse possible est que le diaphragme de champ du microscope Hyperion ait été choisi trop petit par rapport à la section efficace d'extinction et qu'il ait coupé une partie du

flux ayant interagi avec la structure.

Ces mesures spectrales mettent en avant un comportement intéressant qui se voit à la progression des amplitudes des résonances λ_1 et λ_2 en fonction de N . Quand on passe de $N = 1$ à $N = 2$, l'amplitude de la résonance augmente d'un facteur 1.4 pour λ_1 et 1.8 pour λ_2 dans les spectres obtenus en réflectivité. Si les nano-antennes étaient indépendantes l'une de l'autre, l'amplitude de la résonance serait directement proportionnel à N , le fait que ce ne soit pas le cas signifie que la surface intersectée par les sections efficaces pour les deux résonances n'est pas la même, il y a un plus grand recouvrement pour la première résonance.

En revanche, la tendance est différente en spectroscopie d'émission par modulation spatiale. L'amplitude est quasiment doublée pour les deux résonances en passant de $N = 1$ à $N = 2$ antennes, puis de nouveau de $N = 2$ à $N = 8$ antennes (Fig. IV.21(c)). Ceci est causé par l'étendue de l'objet non ponctuel. Avec la spectroscopie par modulation spatiale, il est plus difficile de mettre en rapport le signal démodulé provenant d'ensembles d'antennes MIM qui s'étendent sur des régions de taille comparable, chaque point de ces structures plus complexes produisant potentiellement une puissance émise différente. D'autres paramètres interviennent comme la direction de modulation, elle est prise pour cette mesure dans la direction de l'alignement des nano-antennes et une modulation spatiale dans la direction orthogonale donnerait lieu à des amplitudes de résonance différentes.

Les positions des résonances ne sont quant à elles pas affectées par la présence de multiples nano-antennes. L'écart de $4 \mu\text{m}$ séparant deux nano-antennes voisines permet un recouvrement partiel de leurs sections efficaces mais pas une interaction forte entre celles-ci, les nano-antennes MIM étant difficiles à coupler entre elles puisque les plasmons de gap demeurent fortement confinés au sein de la couche diélectrique directement sous le patch carré métallique de chaque nano-antenne MIM.

IV.5.3 biMIM à gap variable

Pour jouer sur le couplage inter-antennes, nous faisons varier la distance g séparant deux nano-antennes MIM, le couple étant appelé une structure biMIM.

biMIM symétrique

Dans un premier temps, nous étudions des structures biMIM où les deux patches carrés sont de taille identique $w = 2 \mu\text{m}$ et l'écart g les séparant varie de 2.5 à $8 \mu\text{m}$ (Fig.IV.22(a)).

Les simulations numériques FDTD de la section efficace d'extinction (Fig.IV.22(b)) sont confrontées aux mesures expérimentales en émission par modulation spatiale (Fig.IV.22(c)) et en réflectivité (Fig.IV.22(d)).

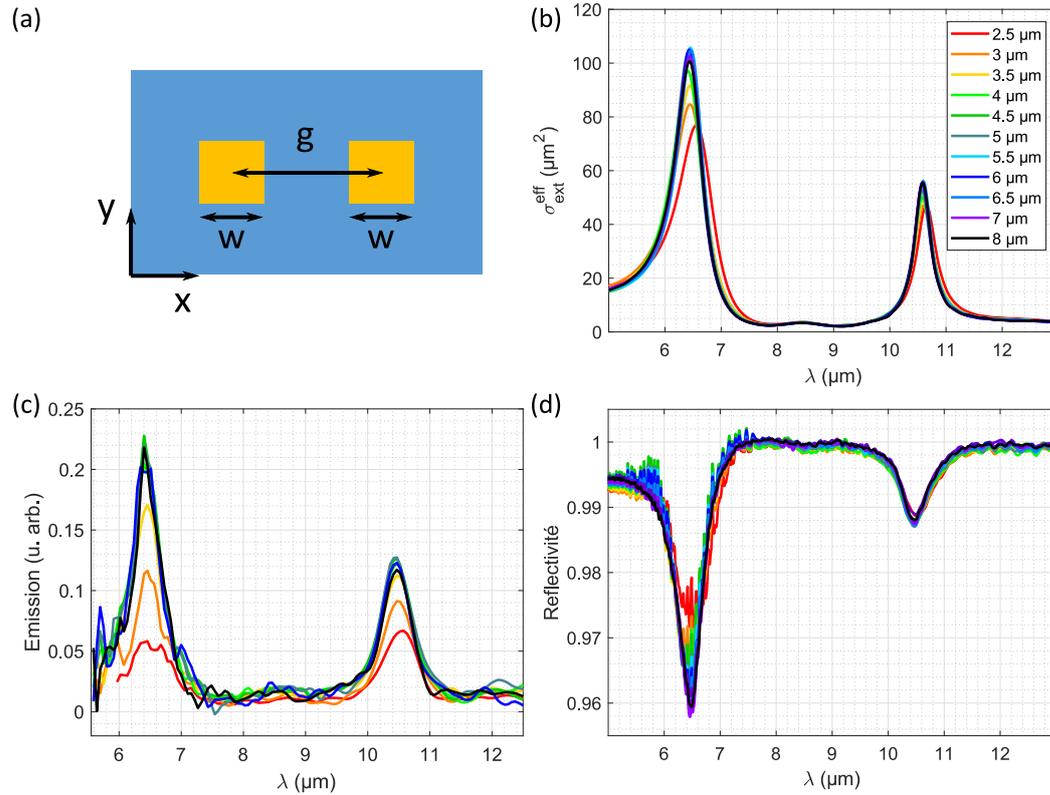


FIGURE IV.22 – (a) Schéma de la structure biMIM symétrique où chaque nano-antenne est de côté $w = 2 \mu\text{m}$. (b) Simulations numériques de la section efficace d’extinction $\sigma_{\text{ext}}^{\text{eff}}$ en fonction de l’écart variable g . (c) Spectres expérimentaux en émission par modulation spatiale et (d) en réflectivité.

Une première tendance qui se dégage est la croissance de l’amplitude des résonances avec l’écart inter-antennes g jusqu’à atteindre une valeur de saturation qui se produit pour environ $g \geq 4 \mu\text{m}$. Au-delà de cette valeur, les courbes se superposent. Cet effet est davantage visible pour la première résonance vers $\lambda = 6.45 \mu\text{m}$ pour laquelle l’amplitude est plus forte. Cette évolution de l’amplitude de résonance semble indicative de l’existence de deux régimes d’interaction. Pour de faibles écarts inter-antennes g , l’émission, ne pouvant dépasser celle d’un corps noir, est limitée à la surface correspondant à l’union de leurs sections efficaces respectives, la zone d’intersection des sections efficaces ne contribuant qu’une fois au rayonnement. Au-delà d’une certaine valeur correspondant à une distance d’interaction, il n’y a plus de recouvrement entre les sections efficaces d’émission et les deux nano-antennes se comportent de façon indépendante.

L’écart inter-antennes a également une influence sur la position de la résonance. Pour les très faibles écarts, un décalage vers les grandes longueurs d’onde est perceptible pour les deux résonances, la courbe rouge pour $g = 2.5 \mu\text{m}$ étant visiblement décalée d’une centaine de

nanomètres aussi bien expérimentalement que dans les simulations numériques par rapport aux courbes correspondant aux grandes valeurs de g .

Ce décalage spectral a pour origine l'interaction en champ proche de deux structures plasmoniques résonantes, déjà observé dans le visible avec des dimères de nanoparticules métalliques [135]. Il peut être compris en considérant un modèle de deux dipôles couplés [136] dont un schéma est donné en figure IV.23 : en polarisation parallèle à l'alignement des dipôles, l'interaction entre les deux est attractive car les charges de signes opposés se font face et la fréquence d'oscillation se voit réduite ; en polarisation orthogonale, les charges de même signe se retrouvent côte à côte et se repoussent, augmentant la fréquence de résonance. La force attractive étant prépondérante, c'est le décalage vers le rouge qui l'emporte dans le cas non polarisé, d'où les résultats expérimentaux obtenus.

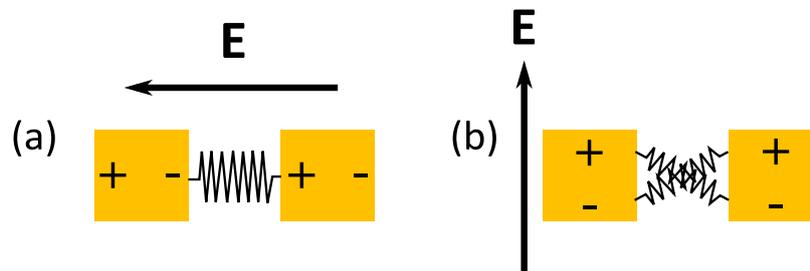


FIGURE IV.23 – Couplage dipolaire pour un champ électrique incident polarisé dans l'axe (a) longitudinal et (b) transverse.

biMIM asymétrique

Nous nous intéressons à présent au cas où le biMIM est asymétrique lorsque les deux nano-antennes MIM sont de tailles différentes avec ici $w = 2 \mu\text{m}$ et $w' = 2.5 \mu\text{m}$ (Fig. IV.24(a)). L'écart inter-antennes g est plus faible que précédemment et varie de 2.3 à 3.25 μm , ce qui est équivalent à une distance bord-à-bord allant de 50 nm à 1 μm . Moins souvent étudié que le dimère symétrique, ce type de structure aussi appelé hétérodimère rend possible l'interaction de modes aux caractéristiques différentes [137].

Les spectres d'émission et de réflectivité (Fig. IV.24(b-c)) révèlent des résonances multiples sur la gamme spectrale d'observation, chaque antenne ayant une contribution de deux résonances. Au total, quatre résonances sont présentes, celle située à 10.5 μm étant de plus faible amplitude et apparaît comme un épaulement de la résonance adjacente à 11.12 μm .

Les écarts inter-antennes sont suffisamment faibles pour qu'il y ait une interaction importante entre les deux antennes. Les deux plus faibles écarts entraînent un dédoublement de la seconde résonance vers 7.24 μm . Pour un écart de 2.35 μm , qui correspond à une distance de 100 nm bord-à-bord, un autre pic apparaît vers 7.5 μm . Ce pic supplémentaire se retrouve encore davantage décalé vers le rouge pour un écart de 2.3 μm et est discernable vers 8 μm .

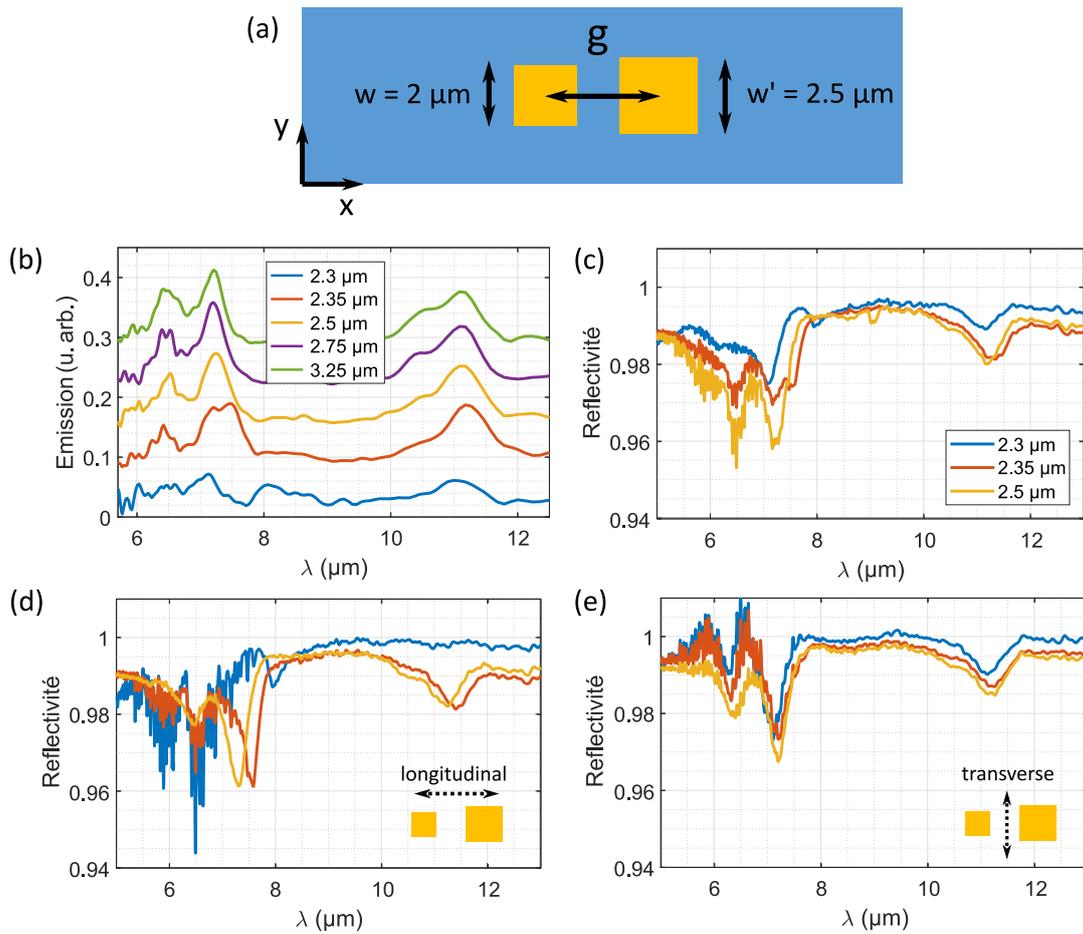


FIGURE IV.24 – (a) Schéma de la structure biMIM asymétrique à écart variable. (b) Spectres de biMIM asymétrique à écart variable g en émission par modulation spatiale avec offset et (c) en réflectivité en illumination non polarisée, (d) en polarisation longitudinale selon l'axe long du biMIM, (e) en polarisation transverse.

Nous confirmons que ce dédoublement résulte de la somme des contributions des deux polarisations orthogonales en répétant les mesures de réflectivité avec un polariseur dans le chemin optique. En illumination polarisée longitudinalement par rapport au biMIM, le fort décalage vers le rouge de plusieurs centaines de nanomètres à la seconde résonance est mis en évidence (Fig. IV.24(d)) alors que pour une illumination polarisée transversalement, les résonances ne sont que légèrement décalées vers les plus faibles longueurs d'onde (Fig. IV.24(e)).

Quoique très préliminaires à ce stade, l'ensemble de ces mesures nous fournit des informations complémentaires sur l'émission et l'extinction de nanostructures et nous a permis d'observer des effets de couplage entre nano-antennes impactant leur comportement résonant lorsque celles-ci sont suffisamment proches. Une distance d'interaction en relation avec la section efficace d'émission peut être établie pour différencier deux régimes où les nano-antennes sont indépendantes ou non.

IV.6 Conclusions et perspectives

Nous avons décrit dans ce chapitre les propriétés d'un type particulier de nano-antennes plasmoniques dites MIM et étudié leur comportement dans l'infrarouge moyen à l'aide d'outils numériques et de montages expérimentaux suffisamment sensibles pour détecter le rayonnement thermique de structures sub-longueur d'onde uniques afin de les caractériser à la fois spatialement et spectralement.

Nous avons montré qu'en exploitant les variations de l'indice effectif d'une cavité plasmonique nous pouvions obtenir des résonances à des longueurs d'onde distinctes possédant la même distribution spatiale correspondant à un même mode spatial, dans ce cas-ci le mode fondamental d'une nano-antenne MIM. Le rayonnement thermique de champ proche à la surface d'un tel objet a pu être détecté par le TRSTM, fournissant qualitativement l'image de la LDOS à la surface de la nano-antenne.

Par ailleurs, la méthode de spectroscopie par modulation spatiale que nous avons implémentée permet de réaliser des mesures en champ lointain en éliminant le fond thermique environnant, qui masque la signature spectrale recherchée. Cette approche nous a permis de révéler les résonances de nano-antennes MIM isolées de taille variable. La confrontation de nos résultats avec des simulations FDTD a permis de corroborer les tendances observées.

La versatilité de ces techniques permet de les appliquer à n'importe quelle structure résonante dans l'infrarouge moyen et d'explorer les propriétés d'autres types d'objets sub-longueur d'onde et de nanomatériaux. D'autres configurations expérimentales sont envisagées pour donner plus de flexibilité au montage expérimental comme coupler le détecteur à une source infrarouge large bande ou bien encore explorer une gamme spectrale différente en changeant de détecteur.

Les résultats obtenus ouvrent la voie à une meilleure compréhension du comportement résonant à l'échelle de la nano-antenne individuelle et offre de nouvelles perspectives pour la conception et l'optimisation des propriétés d'émission des métasurfaces aussi bien en champ proche qu'en champ lointain. Une nano-antenne unique représente la brique élémentaire de nombreuses structures photoniques. Une fois sa réponse électromagnétique déterminée, nous devrions être en mesure de mieux appréhender les effets de couplage qui surviennent quand plusieurs nano-antennes sont placées à proximité les unes des autres et interagissent entre elles.

Au-delà de nos mesures sur des nano-antennes uniques qui ont fait l'objet d'une publication récente [123], des premières mesures sur des nano-antennes couplées ont été réalisées pour mettre en évidence les effets d'interaction via des spectres d'émission obtenus avec la technique de modulation spatiale et qui ont été supplémentés par une caractérisation en réflectivité. Des effets physiques produits par les interactions inter-antennes ont déjà pu être observés et des travaux futurs sont prévus pour s'intéresser plus en détail au comportement de telles structures

et étudier de façon systématique l'influence de différents paramètres tels que l'influence de la distance inter-antennes et la polarisation. La géométrie des antennes MIM est telle qu'elles sont difficiles à coupler, d'autres géométries d'antennes pouvant être envisagées aussi pour augmenter les effets de couplage.

La réunion de l'ensemble de ces techniques expérimentales d'imagerie et de spectroscopie qui s'étendent du champ proche au champ lointain concourt à édifier une caractérisation complète des structures sub-longueur d'onde dans l'infrarouge.

