

*« Dynamique de la formation des LIPSS  
(Expérience pompe-sonde) »*

**Résumé :** La dynamique de la formation des LIPSS a été étudiée sur deux métaux différents, le Tungstène et l'Aluminium par l'intermédiaire d'une expérience pompe-sonde.

## **1. Introduction**

Dans les sections précédentes, nous avons abordé le rôle important des plasmons de surface dans le couplage laser matière. Dans ce cadre nous avons examiné ce couplage par l'intermédiaire de réseaux avec différentes périodes (440-800 nm) fabriqués à la surface d'un métal (Ni). Nous avons par la suite étudié le rôle important de la force du couplage électron-phonon dans l'évolution de l'amplitude des LIPSS, une expérience a donc été réalisée sur différents matériaux avec différentes constantes de couplage électron-phonon. Cette expérience a révélé que l'évolution de l'amplitude des LIPSS, mesurée en fonction de la fluence pourrait être corrélée avec l'évolution attendue de la force de couplage électron-phonon avec la température. Ce constat nous incite à penser que l'étude de l'influence du temps de relaxation électron phonon sur la formation des LIPSS est indispensable, nous présentons dans ce chapitre cette étude à l'aide d'une expérience pompe-sonde sur deux métaux (W et Al) que nous présenterons dans les sections suivantes.

## 2. Motivation de l'étude

La dynamique du couplage laser-matière correspond à un changement transitoire des propriétés du système absorbant, dû à une excitation des plasmons ou à une relaxation électrons-phonon. La figure 5.1, présente les différentes étapes de cette dynamique. La première étape consiste en l'excitation du plasmon de surface par une forte absorption de l'énergie du faisceau laser incident (chapitre 3). L'énergie captée par ces électrons libres se diffuse ensuite à l'intérieur du matériau par l'intermédiaire du couplage électron-phonon (chapitre 4). Ce couplage est caractérisé par un temps de relaxation thermique entre électron et phonon  $\tau_{e-ph}$ . Ce temps de couplage laser-matière est un facteur influant sur la formation des LIPSS, comme cela a été montré dans le précédent chapitre. Il a d'ailleurs fait l'objet de beaucoup d'études, comme celle qui porte sur le rendement de l'émission des ions [SHB02]. J. Kim et al attestent dans leur article [KNC08] que la formation des LIPSS est une conséquence de l'oscillation des électrons chauds à la surface du matériau. Ces oscillations peuvent être perturbées par une impulsion ultérieure qui aurait lieu avant le transfert d'énergie des électrons chauds au réseau cristallin froid.

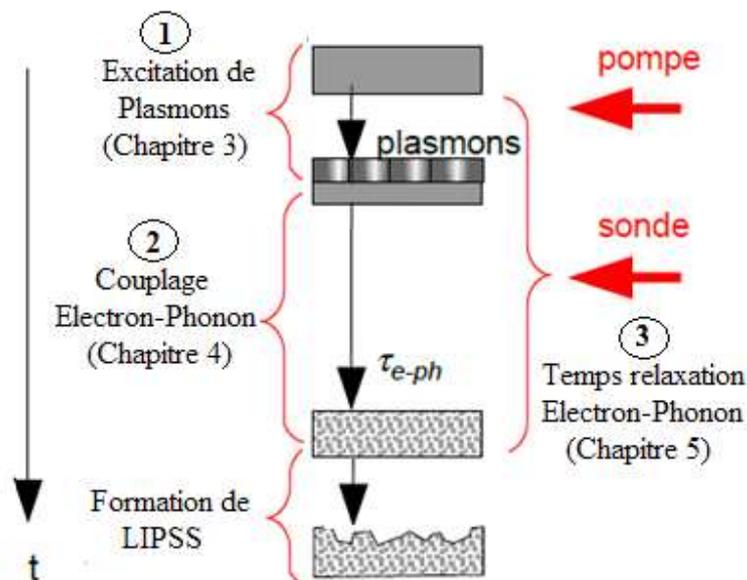


Figure 5.1 : Différentes étapes du couplage laser-matière par deux impulsions pompe sonde avec  $\tau_{e-ph}$  le temps de couplage électron-phonon.

## Chapitre V.

Ces études nous incitent à proposer dans ce chapitre une étude expérimentale sur l'effet dynamique intervenant dans la formation des LIPSS. Les étapes majeures de l'expérience consistent en la génération d'une paire d'impulsions (pompe et sonde) et le réglage du délai qui les sépare. Afin de mieux comprendre le rôle de la relaxation électron-phonon dans la formation des LIPSS, nous portons notre étude sur deux métaux différents ce qui nous permet d'aborder les différents aspects qui régissent cette dynamique. Aussi, nous avons choisi le tungstène et l'aluminium, car ces métaux se distinguent par des densités d'états différentes autour de l'énergie de Fermi.

### **3. Irradiation par paires d'impulsions avec un délai de séparation**

Pour mener à bien cette étude, nous avons utilisé deux dispositifs expérimentaux différents : dans les expériences sur l'aluminium, effectuées à Cottbus, les doubles impulsions étaient préparées par la division d'une impulsion parente dans un interféromètre de Michelson. Le temps entre deux impulsions variables allant jusqu'à 100ps. Dans les expériences sur le tungstène, réalisées au Laboratoire Hubert-Curien, nous nous sommes servis d'un dispositif de mise en forme temporelle, accessible par SLM au sein du laboratoire. Ce dispositif peut délivrer des doubles impulsions avec des délais variables et limités au maximum à 20ps.

#### **3.1. Aluminium**

L'interféromètre de Michelson est un dispositif qui permet de générer deux impulsions pompe-sonde et de contrôler le délai qui les sépare. Les différentes composantes de ce dispositif sont présentées dans la section 2.2.2 du chapitre II.

##### **3.1.1. Conditions expérimentales**

Dans notre expérience relative à l'irradiation de l'aluminium, nous avons utilisé le système laser présenté dans la section 2.1.2 (chapitre 2). Nous avons complété notre système laser par un dispositif d'interférométrie, nous permettant d'obtenir une double impulsion à séparation variable ajustée entre 0s et 100 ps (on trouvera plus de détails dans la section 2.2.2 du chapitre II). Le faisceau laser est polarisé verticalement, avec une

## Chapitre V.

incidence normale, à travers une lentille convergente de 300 mm de focale. Grâce à ce dispositif on réalise une irradiation sur différents matériaux dans une chambre sous vide sous une pression d'environ  $10^{-8}$  mbar. L'ajustement de la puissance laser est effectué à l'aide d'une lame  $\frac{1}{2}$  onde et d'un polariseur. Nous utilisons également un Shutter mécanique permettant de contrôler le nombre d'impulsions. L'alignement des faisceaux laser est obtenu suivant la technique de caractérisation spatiale du faisceau (section 2.4 chapitre II). L'irradiation de l'aluminium a été effectuée dans les mêmes conditions expérimentales (avec une fluence laser de  $0.2 \text{ J/cm}^2$  et 1000 impulsions) en faisant simplement varier le temps entre les impulsions pompe-sonde.

### **3.1.2. Résultats des variations de la morphologie de la surface d'Al**

Différents impacts laser ont été effectués dans les conditions expérimentales exposées précédemment. La figure 5.2 montre les images MEB des différents impacts réalisés par des impulsions pompe-sonde en faisant varier le délai entre deux impulsions de 0s à 100 ps, l'irradiation à été réalisé avec une fluence de  $0.2 \text{ J/cm}^2$  et 1000 impulsions. Ces images montrent donc l'évolution des LIPSS sur la surface d'aluminium en fonction de la variation du délai entre deux impulsions. Les LIPSS sont perpendiculaires au champ électrique incident (en double flèche) et leur période varie entre 1 et  $2\mu\text{m}$ . Dans la littérature, ces structures sont nommées les « grooves », leur polarisation est parallèle au champ électrique [BMS05]. Dans une plage de temps allant de 0fs à 100 ps, nous constatons une croissante variation des LIPSS en fonction du délai entre deux impulsions pompe-sonde, cette variation montre trois plages différentes d'évolution des LIPSS : la première plage entre 0s à 20ps, connaît une augmentation des LIPSS en fonction de l'augmentation du délai. Dans la seconde plage, les LIPSS deviennent importantes autour de 20 ps, la surface irradiée est quasiment couverte par les LIPSS. La dernière plage montre une décroissance des LIPSS sur la surface irradiée pour des délais supérieurs à 20 ps. L'efficacité des impulsions pompe-sonde est donc manifeste pour certains délais.

Chapitre V.

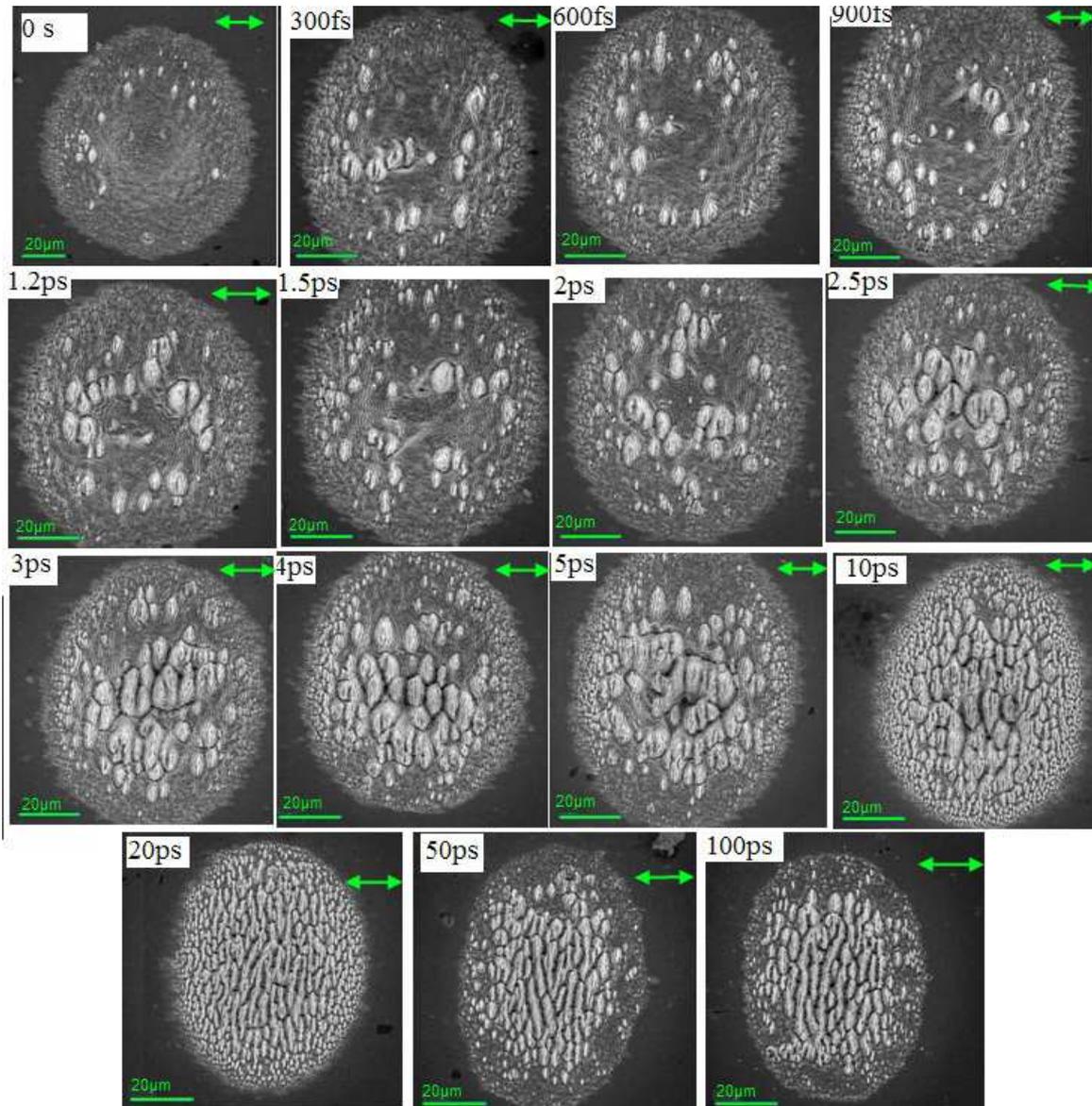


Figure 5.2. Evolution des structures LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0fs à 100 ps dans les mêmes conditions expérimentales, sur une surface d'aluminium irradiée par 1000 paires impulsions de fluence de 0.2 J/cm<sup>2</sup>.

## **3.2. Tungstène**

### **3.2.1. Conditions expérimentales**

Dans notre expérience relative à l'irradiation de Tungstène, nous avons utilisé un système laser présenté dans la section 2.1.1 (chapitre 2). Nous avons complété notre système d'irradiation, par un système de mise en forme temporelle par « SLM » fournissant des doubles impulsions avec des délais ajustables de 0 fs à 20 ps. Nous avons également utilisé une technique de corrélation permettant de contrôler la largeur à mi-hauteur de notre impulsion et la durée entre deux impulsions. Les différentes composantes du dispositif sont présentées dans les sections 2.2.1 et 2.3 du chapitre II. Le faisceau laser est polarisé horizontalement, avec une incidence normale, à travers une lentille convergente de 50.8 mm de focale. L'irradiation de l'échantillon est réalisée à pression atmosphérique dans le plan image d'un diaphragme de diamètre 2.8 mm produisant un spot laser d'un diamètre de 54.68  $\mu\text{m}$  à la surface du matériau. L'échantillon est fixé sur un système de translation 3-axes afin d'obtenir un positionnement précis des échantillons. Les différentes irradiations de W ont été effectuées dans les mêmes conditions expérimentales (avec une fluence laser de 0.29  $\text{J}/\text{cm}^2$  et 80 doubles impulsions) en faisant varier le temps entre double impulsions.

### **3.2.2. Résultats des variations de la morphologie de la surface du W**

Les différents impacts sur W ont été réalisés dans les conditions présentées précédemment. La figure 5. 3 montre les différentes images MEB des impacts réalisés sur la cible de tungstène irradiée par des doubles impulsions présentant des délais variables allant de 0 fs à 20 ps dans les mêmes conditions expérimentales, à une fluence laser de 0.29  $\text{J}/\text{cm}^2$  avec 80 doubles impulsions. Les images de cette figure, présentent l'évolution de la formation des LIPSS à la surface du tungstène en fonction du délai entre double impulsions. Suite au nombre d'impulsions plus faible, nous avons obtenus des LIPSS avec une période est située autour de la longueur d'onde du faisceau incident avec une orientation est perpendiculaire au champ électrique incident (double flèche). Nous pouvons identifier trois différentes plages d'évolution des LIPSS en fonction des délais

## Chapitre V.

entre les deux impulsions. La première plage entre 0 fs et 1.2 ps révèle une augmentation de la formation des LIPSS avec l'augmentation du délai. Dans la seconde plage, la formation des LIPSS devient maximale autour de 1.2 ps, la surface irradiée est quasiment couverte par des LIPSS. La dernière plage se trouve au-dessus de 1.2 ps et correspond à une diminution de la formation des LIPSS sur la surface irradiée jusqu'à la disparition de toute structure pour des délais supérieurs à 10 ps.

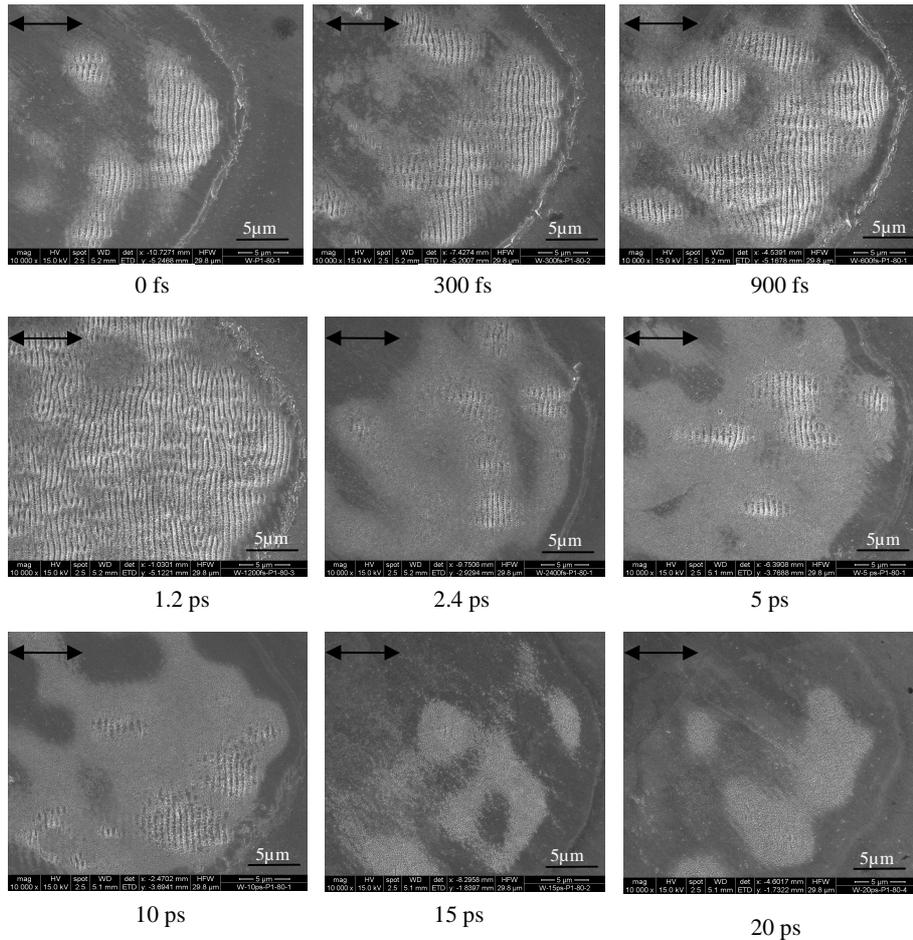


Figure 5.3 : Evolution des LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0fs à 20 ps sur une surface de tungstène irradiée avec une fluence de 0.29 J/cm<sup>2</sup> et 80 paires d'impulsions.

Dans la section suivante nous allons discuter l'influence du délai entre double impulsions sur l'évolution des LIPSS.

#### 4. Discussion

Lors d'une irradiation laser femtoseconde d'une surface métallique, la première impulsion peut créer un réseau de plasmons à la surface du métal par l'intermédiaire d'une excitation de la densité des électrons libres à la surface de matériau (section 3.2.3.4 chapitre I). Ensuite, l'énergie des électrons chauds se diffuse dans le réseau cristallin via l'interaction électron-phonon. Enfin, l'ensemble du système atteint l'équilibre. Comme nous l'avons discuté dans le chapitre précédent, l'absorption complexe de la lumière laser (excitation plasmons) conduit à une modulation de la température électronique à des délais très courts. Ensuite les processus de relaxation hydrodynamique refroidissent la surface métallique du système pouvant générer des instabilités et un déplacement des lignes de contact gaz-liquide ou liquide-solide. Un retard entre deux impulsions laser femtoseconde est utilisé pour examiner l'effet de cette dynamique sur l'évolution de la formation des LIPSS. Les excitations laser femtoseconde induisent un non-équilibre thermique entre les deux sous-systèmes, le transfert d'énergie du gaz d'électrons vers le réseau cristallin du métal conduit à un déséquilibre thermique. Le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre thermique est appelé le temps de la relaxation électron-phonon. Dans ce cas, le temps de refroidissement du gaz d'électrons et d'échauffement du réseau cristallin peut être influencé par le retard entre les deux impulsions pompe-sonde.

Afin d'exploiter les résultats obtenus sur l'Al, nous avons déterminé la densité des LIPSS pour différents délais par un comptage dans une aire définie. Les résultats sont représentés sur la Figure 5.4. Ce graphe montre trois plages différentes de l'évolution de la densité des LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions pompe-sonde. La première partie de ce graphe montre une croissance de la densité des LIPSS en fonction de l'augmentation du délai entre deux impulsions jusqu'à un maximum autour de 20 ps, puis on perçoit une décroissance de la densité des LIPSS pour des grands délais pompe-sonde.

## Chapitre V.

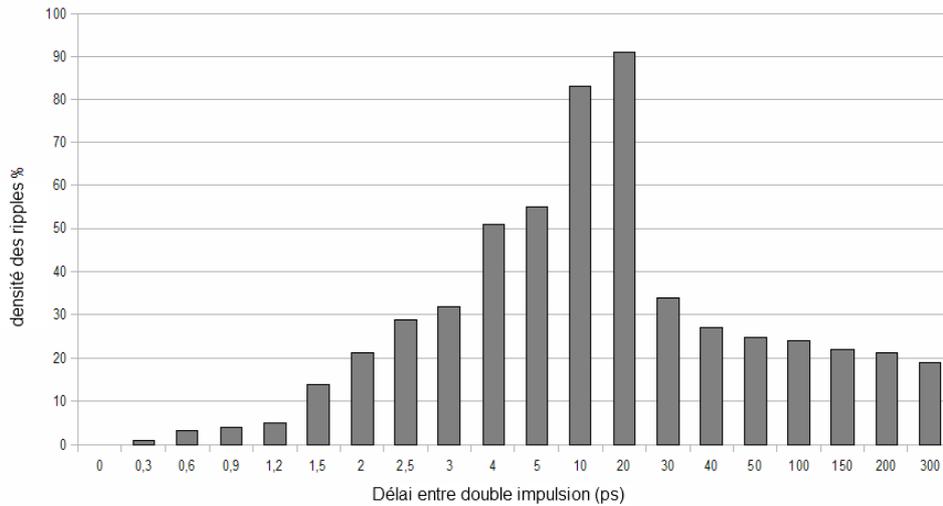


Figure 5.4 : Densité des LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0 fs à 300 ps sur une surface d'aluminium irradiée avec une fluence de 0.2 J/cm<sup>2</sup> et 1000 paires impulsions.

A l'issue de ces résultats, nous constatons une corrélation entre l'évolution de la densité des LIPSS et un effet dynamique introduit par un processus hydrodynamique. Dans le cadre de notre expérience, l'évolution de la densité des LIPSS atteint un maximum autour de 20 ps. Le calcul du temps hydrodynamique de propagation d'une onde ( $\tau_h$ ), dans un métal avec une vitesse de son ( $V_s$ ) est estimé par le rapport entre l'épaisseur de la couche métallique chauffée ( $d$ ) et la vitesse du son dans ce métal [ZNN08] :

$$\tau_h = \frac{d}{V_s}$$

Les calculs effectués montrent que le temps hydrodynamique pour une excitation d'une surface d'aluminium par un laser femtoseconde tourne autour de 20 ps pour une profondeur de la couche chauffée  $d = 110$  nm et une vitesse de son dans ce métal de 6400 m/s [ZNN8]. Le graphe de la figure 5.4 montre une corrélation entre, d'une part la densité des LIPSS et le temps variant entre deux impulsions et d'autre part, ce temps hydrodynamique. Le graphe indique trois plages différentes : La première se caractérise par une augmentation de la densité des LIPSS entre 0s et 10 ps. La deuxième plage présente un maximum de la densité des LIPSS autour de 20 ps et la dernière montre une diminution effective de la densité des LIPSS pour des grands délais. En revanche, lorsque le temps du retard appliqué entre les deux impulsions est inférieur au temps

## Chapitre V.

hydrodynamique  $\tau_h$ , la deuxième impulsion peut perturber la pénétration des ondes générées par la première impulsion et voyageant à la vitesse du son à l'intérieur du métal. La deuxième plage d'évolution des LIPSS, comprend le maximum de la courbe, la densité devient maximale autour d'un délai de 20 ps entre deux impulsions pompe sonde. On peut donc considérer que le temps entre deux impulsions est le même que le temps hydrodynamique d'après les calculs effectués ci-dessus. Il existerait donc une bonne cohérence entre les ondes générées par l'impulsion ultérieure qui se propagent à la vitesse du son à l'intérieur du métal et les ondes générées par la première impulsion. Ainsi, pour ce délai, le processus d'efficacité des impulsions pompe-sonde peut conduire à une forte absorption d'énergie. La dernière gamme du graphe montre une décroissance significative de la densité des LIPSS. Dans ce cas le délai entre deux impulsions pompe-sonde est plus grand que le temps hydrodynamique, donc les ondes de la première impulsion n'affectent plus l'absorption de la deuxième impulsion. Sur la base de ces résultats présentés ci-dessus nous pouvons déduire que le temps hydrodynamique a une corrélation importante avec la formation des LIPSS. Un effet similaire a été observé concernant l'influence du délai entre deux impulsions pompe-sonde sur le rendement de l'émission des ions, ce constat fut présenté par Schmidt et al [SHB00]. Dans le cadre de leur expérience pompe-sonde sur le rendement d'émission des ions dans l'aluminium, ils ont montré que le rendement d'émission des ions devient maximal pour un certain délai entre deux impulsions, ce maximum a été situé autour de 17 ps pour l'aluminium. Ce résultat est confirmé par Costache et al [CER06] qui ont également examiné le rendement d'émission des ions par une expérience similaire pompe-sonde, et ont situé le maximum de rendement pour l'aluminium autour de 17 ps. Le rendement maximum d'émission des ions fut expliqué par une forte absorption d'énergie, tel qu'avec ce temps de retard, l'impulsion sonde apporte plus d'énergie dans le système par une section efficace d'absorption plus élevée de la lumière incidente. Nos résultats corroborent ces résultats de la littérature en ce qui concerne l'efficacité des deux impulsions à un certain délai, conduisant à une forte absorption d'énergie par le système. Cette efficacité dépend de la nature du matériau utilisé.

## Chapitre V.

Dans le cas de l'Al nous avons obtenu des structures grooves avec un nombre de tirs laser élevé (1000 impulsions). Dans le cas de W, la période des LIPSS obtenues est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde en raison d'un plus faible nombre de tirs laser (80 impulsions). Le graphe ci-dessous, présente la variation de la densité des LIPSS en fonction des délais entre les deux impulsions sur le W, ce calcul de la densité ayant été effectué sur les impacts de la figure 5.3. Notons que la densité des LIPSS calculée représente le rapport entre l'aire des LIPSS formées sur la surface de la tache irradiée et l'aire totale de cette même tache irradiée. Le délai entre double impulsions et la dynamique de la relaxation électron-phonon montrent une corrélation avec l'évolution des LIPSS dans cette expérience.

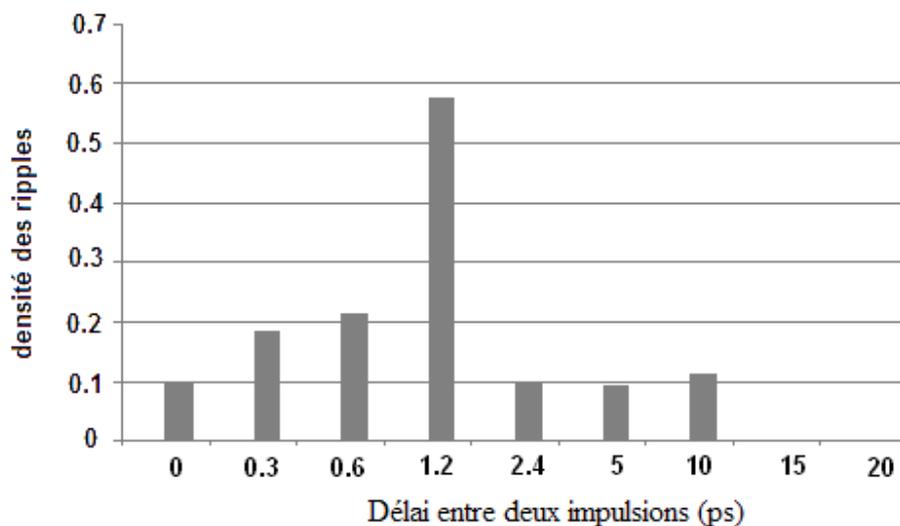


Figure 5.5. Densité des LIPSS en fonction du délai entre deux impulsions sur une surface de tungstène irradiée avec une fluence de  $0.29 \text{ J/cm}^2$  et 80 paires d'impulsions.

Dans ce graphe, l'évolution de la densité des LIPSS peut être divisée en trois plages de délais différents, en outre, ces gammes de délais pour le tungstène sont différentes de celles que l'on a constatées précédemment pour l'aluminium, ainsi les structures obtenues pour les deux matériaux sont différentes à cause des conditions expérimentales différentes (sections ci-dessus). Dans le cas du W, l'évolution de la densité des LIPSS est plutôt due à l'effet dynamique induit par le processus de la relaxation électron-phonon

## Chapitre V.

qu'à perturbation du réseau due à l'effet hydrodynamique observée pour l'Al. Le temps estimé pour le couplage électron-phonon dans le W est autour de 1.2 ps [FLI84]. Ce temps est bien corrélé au délai entre deux impulsions, pour lequel la densité des LIPSS devient maximale. Pour comprendre l'évolution de la densité des LIPSS présentée dans la figure 5.5, nous proposons la dynamique suivant : l'augmentation de la densité des LIPSS entre 0s et 1.2 ps dépend fortement du temps de relaxation de l'énergie entre l'électron et le phonon ; plus on approche du temps d'équilibre thermique entre ces deux systèmes, plus la densité des LIPSS devient importante. Cela est dû à la cohérence dans le temps entre les énergies des deux impulsions transférées dans le matériau. Cette cohérence peut conduire à une forte absorption de l'énergie dans le matériau. En revanche, lorsque le temps du retard appliqué entre les deux impulsions est inférieur au temps d'équilibre thermique entre les deux sous-systèmes (e-ph), l'oscillation des électrons chauds à la surface du matériau générée par la première impulsion peut être perturbée par une impulsion ultérieure qui atteindrait l'échantillon avant le transfert d'énergie des électrons chauds au réseau cristallin. Enfin, la dernière plage de la figure 5.5, montre une décroissance significative de la densité des LIPSS. Dans ce cas, le délai entre deux impulsions est plus grand que le temps d'équilibre thermique entre les électrons et les phonons, et la deuxième impulsion n'affecte plus l'absorption de la première. La plus grande partie de l'énergie a en effet déjà été transférée au réseau cristallin [KNC08].

Un grand défi reste encore à relever dans ce travail, on doit en effet, exploiter ou montrer l'existence d'une corrélation entre les deux différentes structures observées dans les deux matériaux.

#### **4. Conclusion**

Nous avons consacré cette partie de l'étude au rôle de la dynamique des processus impliqués dans la formation des LIPSS dans les matériaux métalliques sous irradiation laser ultrarapide. Nous avons réalisé une irradiation laser femtoseconde sur deux métaux différents (Al et W), chaque irradiation est réalisée dans les conditions expérimentales différentes en variant le délai entre les deux impulsions. Nous avons pu mettre en évidence un délai de séparation optimal entre les deux impulsions, délai propre à chaque métal dans les conditions d'irradiation choisies. Pour chaque métal, le temps caractérisant le maximum de la densité des LIPSS est en corrélation avec une forte absorption d'énergie dans le matériau.

Conclusion générale.

## *Conclusion générale*

Conclusion générale.

## Conclusion générale

---

Ce mémoire présente les résultats expérimentaux de notre étude concernant la génération de structures périodiques « LIPSS » lors de l'interaction entre un laser femtoseconde et des métaux, en employant diverses techniques expérimentales. Différentes expériences sont conçues pour expliquer les processus fondamentaux de l'absorption laser femtoseconde, de l'excitation électronique et des changements morphologiques de la surface à l'échelle nanométrique. Ce travail a été réalisé dans le but d'identifier sur les effets de l'interaction laser femtoseconde sur les différents types de métaux. Le schéma de la figure 6.1 présente un résumé chronologique des différents processus de la dynamique de la formation des LIPSS étudiés dans le cadre de ce travail.

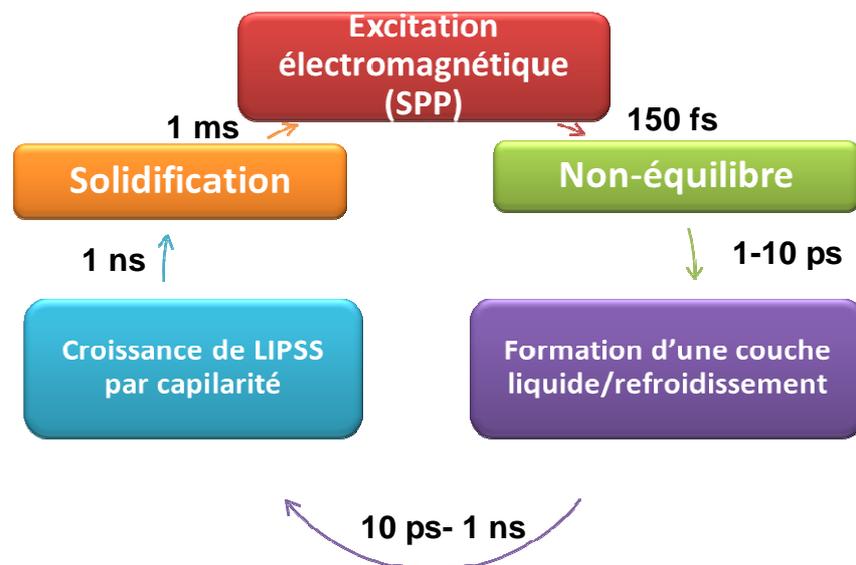


Figure 6.1. Schéma chronologique des différents processus de la formation des LIPSS

Dans la première étape, durant l'excitation laser femtoseconde, une forte absorption d'énergie par le métal induit une excitation des plasmons de surface, produisant un état de non-équilibre du système. On assiste alors à la formation d'une couche liquide refroidissante suite à un échange thermique entre les deux sous-systèmes (électrons-ions). Entre 10 ps et 1 ns, on voit apparaître une croissance des LIPSS à la surface liée aux effets de capillarité (effet de tension de surface), suivie d'une solidification de la surface.

Nous avons commencé par étudier le rôle du couplage des plasmons de surface dans la formation des LIPSS. Pour ce faire, nous avons réalisé une irradiation avec une seule

## Conclusion générale.

impulsion et deux polarisations différentes TM et TE sur des réseaux dotés d'une large gamme de périodes allant de 440 à 800 nm. Ainsi, nous avons constaté que ces fines LIPSS ne sont générées que pour une période de réseau bien définie située autour de 750-760 nm, cela laisse supposer que les ondulations sont induites par le couplage avec les plasmons de surface. Nous avons ainsi pu démontrer que les plasmons de surface induits sous une excitation laser femtoseconde sont responsables de la formation de fines LIPSS sur la surface de nickel. Sur la base des calculs théoriques, il s'avère que la période du réseau attendue est différente de celle qui est calculée par la fonction de la constante diélectrique à  $\lambda = 800$  nm. Le modèle de Drude-Lorentz a été appliqué en tenant compte de la possibilité de changement de la constante diélectrique du nickel en raison de l'excitation laser ultra-courte.

Cette première étude est suivie d'une analyse sur le rôle du couplage électron-phonon dans la formation de LIPSS, dans les matériaux métalliques sous irradiation laser femtoseconde. Ainsi, dans les mêmes conditions expérimentales, nous avons procédé à une irradiation laser femtoseconde de quatre types de métaux (des métaux de transition : Ni, W, Ru et un métal noble : Cu) possédant différentes propriétés dont différentes constantes de couplage électron-phonon. Les résultats obtenus laissent penser que la croissance des LIPSS formées sur les métaux dépend fortement de la force du couplage électron-phonon. De plus, l'évolution des amplitudes des LIPSS mesurées en fonction de la fluence est bien corrélée à l'évolution de la force de couplage électron-phonon avec la température électronique. Nous avons également constaté que le Ruthénium, dont le comportement était inconnu avant ce travail semble, avoir le même comportement que le nickel, avec une diminution faible de la force de couplage électron-phonon avec la température.

Enfin, notre dernière étude a été consacrée au rôle de la dynamique des processus impliqués dans la formation des LIPSS dans les matériaux métalliques sous irradiation laser ultrarapide. Nous avons exposé à une irradiation laser femtoseconde deux métaux différents (Al et W) avec différents temps de relaxation électron-phonon dans les mêmes conditions expérimentales, en variant le délai entre les deux impulsions. On a ainsi pu observer trois régions différentes d'évolution des LIPSS en fonction de la variation du délai entre les deux impulsions. Nous supposons que cette évolution peut dépendre de l'effet dynamique de deux processus, dans le cas de l'aluminium, l'évolution peut être induite par un processus hydrodynamique alors que dans le cas du W, elle serait plutôt due à l'effet dynamique induit par le processus du couplage électron-phonon. Un grand défi reste encore à relever dans ce travail, on doit en effet, exploiter et montrer l'existence d'une corrélation entre les deux différentes structures observées dans les deux métaux.

*Annexe*

**Annexe :****Conditions d'excitation d'une onde plasmonique (d'après [Emm04])**

Cette annexe présente un calcul formel fondé sur les équations de Maxwell de la constante de propagation des plasmons de surface ainsi qu'une démonstration de la nécessité d'un faisceau polarisé TM incident sur l'interface entre un milieu diélectrique et un milieu métallique pour que le plasmon de surface puisse se propager. Equations de Maxwell dans un milieu non magnétique ( $\mu_r = 1$ ) :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0 & \vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0 \\ \vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} & \vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \end{array} \right. \quad (1)$$

En combinant ces équations, nous pouvons en déduire l'équation de propagation du champ magnétique dans un matériau non magnétique :

$$\vec{\nabla}^2 \cdot \vec{H} - \frac{\varepsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{H}}{\partial t^2} = 0 \quad (2)$$

Avec  $c = (\varepsilon_0 \mu_0)^{-1/2}$ .

Dans le cas d'ondes planes, les champs peuvent s'écrire sous la forme suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{H} \\ \vec{E} \end{array} \right. = \frac{\vec{H}_0}{E_0} \exp i(k_x x + k_z z - \omega t) \quad (3)$$

Dans ces conditions, les équations de Maxwell (1) deviennent :

$$\left\{ \begin{array}{ll} k_x E_x + k_z E_z = 0 & k_x H_x + k_z H_z = 0 \\ -k_z E_y = \mu_0 \omega H_x & k_z H_y = \varepsilon_0 \varepsilon_r \omega E_x \\ k_z E_x - k_x E_z = \mu_0 \omega H_y & k_x H_z - k_z H_x = \varepsilon_0 \varepsilon_r \omega E_y \\ k_x E_y = \mu_0 \omega H_z & k_x H_y = -\varepsilon_0 \varepsilon_r \omega E_z \end{array} \right. \quad (4)$$

De même, l'équation de propagation (2) devient :

$$k_x^2 + k_z^2 - \frac{\varepsilon_r \omega^2}{c^2} = 0 \quad (5)$$

Nous allons maintenant étudier les conditions de propagation d'une onde évanescente des deux côtés d'une interface entre un milieu 1 de permittivité  $\varepsilon_1$  et un milieu 2 de permittivité  $\varepsilon_2$ . Cette interface est représentée sur la figure suivante :

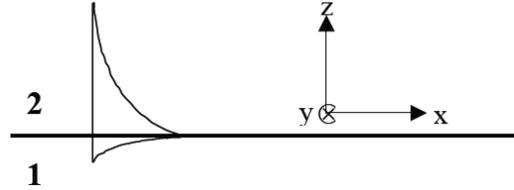


Figure 1 : Onde de surface à l'interface entre deux milieux.

Comme indiqué sur la Figure 1, l'onde se propage selon l'axe  $x$  donc  $k_x$  est un réel positif et est évanescente selon l'axe des  $z$  donc  $k_z$  est un imaginaire pur ( $k_z = i.k_z'$ ). De plus, dans le milieu 1,  $z$  est négatif donc  $k_z'$  est négatif alors que, dans le milieu 2,  $z$  est positif donc  $k_z'$  est positif.

Sur l'interface ( $z = 0$ ), d'après les équations de Maxwell, nous avons une continuité des composantes tangentielles des champs, d'où les relations suivantes :

$$\begin{cases} E_{x,0}^1 \exp i(k_x^1 x - \omega t) = E_{x,0}^2 \exp i(k_x^2 x - \omega t) \\ E_{y,0}^1 \exp i(k_x^1 x - \omega t) = E_{y,0}^2 \exp i(k_x^2 x - \omega t) \\ H_{x,0}^1 \exp i(k_x^1 x - \omega t) = H_{x,0}^2 \exp i(k_x^2 x - \omega t) \\ H_{y,0}^1 \exp i(k_x^1 x - \omega t) = H_{y,0}^2 \exp i(k_x^2 x - \omega t) \end{cases} \quad (6)$$

Ces conditions à l'interface nous donnent les relations suivantes :

$$\begin{cases} E_{x,0}^1 = E_{x,0}^2 = E_{x,0} & E_{y,0}^1 = E_{y,0}^2 = E_{y,0} \\ H_{x,0}^1 = H_{x,0}^2 = H_{x,0} & H_{y,0}^1 = H_{y,0}^2 = H_{y,0} \\ k_x^1 = k_x^2 = k_x \end{cases} \quad (7)$$

En combinant l'équation (4) avec l'équation (7), nous obtenons :

$$\left\{ \begin{array}{l} k_z^1 E_{z,0}^1 = k_z^2 E_{z,0}^2 = -k_x E_{x,0} \\ k_z^1 E_{y,0} = k_z^2 E_{y,0} = -\mu_0 \omega H_{x,0} \\ k_z^1 E_{x,0} - k_x E_{z,0}^1 = k_z^2 E_{x,0} - k_x E_{z,0}^2 = \mu_0 \omega H_{y,0} \\ H_{z,0}^1 = H_{z,0}^2 = (k_x / \mu_0 \omega) E_{y,0} \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} k_z^1 H_{z,0}^1 = k_z^2 H_{z,0}^2 = -k_x H_{x,0} \\ (k_z^1 / \varepsilon_1) H_{y,0} = (k_z^2 / \varepsilon_2) H_{y,0} = \varepsilon_0 \omega E_{x,0} \\ (k_x H_{z,0}^1 - k_z^1 H_{x,0}) / \varepsilon_1 = (k_x H_{z,0}^2 - k_z^2 H_{x,0}) / \varepsilon_2 = \varepsilon_0 \omega E_{y,0} \\ \varepsilon_1 E_{z,0}^1 = \varepsilon_2 E_{z,0}^2 = -(k_x / \varepsilon_0 \omega) H_{y,0} \end{array} \right. \quad (8)$$

Supposons dans un premier temps que  $E_{y,0}$  soit non nul. Nous déduisons les relations suivantes des 2 premières lignes de (8) :

$$\left\{ \begin{array}{l} k_z = k_z^1 = k_z^2 = -\frac{\mu_0 \omega H_{x,0}}{E_{y,0}} \\ E_{z,0} = E_{z,0}^1 = E_{z,0}^2 = -\frac{k_x}{k_z} E_{x,0} \\ H_{z,0} = H_{z,0}^1 = H_{z,0}^2 = -\frac{k_x}{k_z} H_{x,0} \\ H_{y,0} = E_{x,0} = 0 \end{array} \right. \quad (9)$$

L'autre relation contenant  $E_{y,0}$  provenant de la 3<sup>ème</sup> ligne de (8) devient :

$$(k_x H_{z,0} - k_z H_{x,0}) / \varepsilon_1 = (k_x H_{z,0} - k_z H_{x,0}) / \varepsilon_2 = \varepsilon_0 \omega E_{y,0} \quad (10)$$

Or, sachant que  $\varepsilon_1 \neq \varepsilon_2$  et que  $E_{y,0} \neq 0$ , cette équation devient sans solution. La propagation d'une onde de surface nécessite donc que  $E_{y,0}$  soit nul. Une onde de surface ne peut donc pas être excitée par une polarisation TE. Cela explique le premier point : **un plasmon de surface est excité par une polarisation TM.**

Dorénavant, nous supposons que  $E_{y,0} = 0$ . Les relations (8) deviennent :

$$\left\{ \begin{array}{l} k_z^1 E_{z,0}^1 = k_z^2 E_{z,0}^2 = -k_x E_{x,0} \\ H_{x,0} = 0 \\ k_z^1 E_{x,0} - k_x E_{z,0}^1 = k_z^2 E_{x,0} - k_x E_{z,0}^2 = \mu_0 \omega H_{y,0} \\ H_{z,0}^1 = H_{z,0}^2 = 0 \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} 0 = 0 = 0 \\ (k_z^1 / \varepsilon_1) H_{y,0} = (k_z^2 / \varepsilon_2) H_{y,0} = \varepsilon_0 \omega E_{x,0} \\ 0 = 0 = 0 \\ \varepsilon_1 E_{z,0}^1 = \varepsilon_2 E_{z,0}^2 = -(k_x / \varepsilon_0 \omega) H_{y,0} \end{array} \right. \quad (11)$$

Cela nous conduit à l'équation caractéristique d'une onde de surface entre deux milieux :

$$\frac{k_z^1}{k_z^2} = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} \quad (12)$$

Comme expliqué précédemment, sachant que  $k_z = i.k'_z$  et que  $k'_z{}^1$  et  $k'_z{}^2$  sont de signes opposés, cela implique que les permittivités des deux milieux doivent elles aussi être de signe

opposé. Cela explique le deuxième point : **un plasmon de surface ne peut être excité qu'entre un milieu métallique et un milieu diélectrique.**

Nous allons maintenant calculer la composante longitudinale  $k_x$  du vecteur d'onde de surface dans les conditions limites à l'interface (7).

$$\begin{cases} k_x^2 = \varepsilon_1 \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 - (k_z^1)^2 \\ k_x^2 = \varepsilon_2 \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 - (k_z^2)^2 \end{cases} \quad (13)$$

Alors nous obtenons la valeur de  $k_{SP}$  sous la forme suivante.

$$k_{SP}^2 = \left( \frac{\varepsilon_m \cdot \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d} \right) \cdot \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \quad (14)$$

avec  $\varepsilon_m = \varepsilon_1$  la permittivité du milieu métallique et  $\varepsilon_d = \varepsilon_2$  la permittivité du diélectrique. Pour les métaux, la permittivité est complexe et peut s'écrire sous la forme  $\varepsilon_m = \varepsilon_m' + i\varepsilon_m''$ . Dans le cas où  $\varepsilon_m' \gg \varepsilon_m''$ , nous pouvons approximer  $k_{SP}$  de la manière suivante :

$$k_{SP} = \sqrt{\frac{\varepsilon_m' \cdot \varepsilon_d}{\varepsilon_m' + \varepsilon_d}} \cdot \frac{\omega}{c} \quad (15)$$