

Titre: Modélisation de l'influence de la géométrie sur des capteurs
Title: plasmoniques à détection de phase

Auteur: Olivier d'Allivy Kelly
Author:

Date: 2011

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: d'Allivy Kelly, O. (2011). Modélisation de l'influence de la géométrie sur des
Citation: capteurs plasmoniques à détection de phase [Mémoire de maîtrise, École
Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/636/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/636/>
PolyPublie URL:

**Directeurs de
recherche:** Michel Meunier
Advisors:

Programme: Génie physique
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

MODÉLISATION DE L'INFLUENCE DE LA GÉOMÉTRIE SUR DES
CAPTEURS PLASMONIQUES À DÉTECTION DE PHASE

OLIVIER D'ALLIVY KELLY

DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE PHYSIQUE)

JUIN 2011

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

MODÉLISATION DE L'INFLUENCE DE LA GÉOMÉTRIE SUR DES
CAPTEURS PLASMONIQUES À DÉTECTION DE PHASE

présenté par : d'ALLIVY KELLY Olivier

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès science appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

Mme LACROIX Suzanne, D.Sc. , présidente

M. MEUNIER Michel, Ph.D. , membre et directeur de recherche

M. BERINI Pierre, Ph.D. , membre

DÉDICACE

*À mes très chers parents,
pour leur soutien qui m'a accompagné tout au long de mes études.*

REMERCIEMENTS

En premier lieu, je tiens à exprimer mes plus sincères remerciements à mon directeur de recherche monsieur Michel Meunier pour m'avoir permis de réaliser mon projet de maîtrise au sein du laboratoire de Plasmonique et Procédés par Laser mais aussi pour ses nombreux conseils, sa patience et la confiance qu'il m'a accordé et enfin pour le soutien financier dont il m'a fait bénéficier.

Je voudrais aussi exprimer mes remerciements aux professeurs, Suzanne Lacroix et Pierre Bérini qui m'ont fait l'honneur d'avoir accepté d'être membres du jury de cette maîtrise.

Je souhaite aussi remercier monsieur Sergiy Patkovsky pour m'avoir encadré et conseillé tout au long de mes recherches; son expertise m'a été très bénéfique dans ce travail.

Je tiens à remercier l'ensemble des membres du laboratoire de Plasmonique et Procédés par Laser pour leur bonne humeur et leur esprit de cohésion.

Je remercie plus particulièrement mes collègues de "l'équipe plasmonique" à savoir Laurent Guyot, Mathieu Maisonneuve et André-Pierre Blanchard-Dionne pour leurs précieux conseils et toute l'aide qu'ils m'ont apportée au cours de ma maîtrise et de la rédaction de ce mémoire.

Merci à Isabelle pour son soutien indéfectible dans les moments difficiles de la rédaction de ce mémoire.

Merci à mes amis qui, outre atlantique, m'ont témoigné leur soutien.

Enfin, je remercie ma grand-mère, ma sœur et mes parents à qui je dédie ce mémoire.

RÉSUMÉ

L'interface entre un métal et un milieu diélectrique peut supporter des ondes guidées appelées « plasmons de surfaces » liées aux oscillations des électrons à la surface du milieu métallique. Différents types de coupleurs plasmoniques permettent l'excitation de ces ondes de surfaces. Parmi les dispositifs les plus employés, on distingue les coupleurs plans reposant sur le phénomène de réflexion totale atténuée et les nanostructures périodiques qui exploitent la diffraction évanescence de la lumière.

L'excitation des plasmons de surface est principalement exploitée au sein de capteurs d'indice de réfraction de haute précision. Un faisceau laser a alors la possibilité de se coupler au système (on parle alors de résonance), la détection se fait donc à partir du faisceau émergent du système. Le suivi d'indice peut se faire en étudiant la variation de l'intensité ou du déphasage liée au coupleur en fonction d'un paramètre ajustable (longueur d'onde, angle de couplage).

Les capteurs à détection d'intensité sont aujourd'hui bien connus et représentent la grande majorité des dispositifs de détection existants. Moins étudiée, la détection de phase représente pourtant une voie intéressante d'amélioration des performances de détection selon la géométrie du coupleur employé.

Ce mémoire a pour principal objectif de mieux comprendre le lien entre la géométrie des coupleurs plasmoniques et la réponse de phase qui leur est associée afin de proposer des voies d'amélioration pour ce type de détection. Pour ce faire, les deux principales méthodes employées en détection plasmonique, à savoir le couplage par prisme et le couplage par réseau de diffraction, sont modélisées dans ce travail.

Dans le cadre d'un couplage par prisme, le formalisme de Fresnel permet de modéliser la réponse de phase du système. Nous avons étudié une configuration dite de *Kretschmann-Raether* impliquant le dépôt sur le prisme d'une couche mince métallique. Pour une épaisseur particulière de cette couche, le couplage plasmonique conduit à une annulation de l'intensité réfléchie par le système. Dans un premier temps, on montre l'importance de cette épaisseur dans l'étude de la réponse de phase du même système. Une caractérisation des performances de détection est par la suite proposée. Elle permet de mesurer le gain en sensibilité et les inconvénients en termes de résolution et de plage de détection qu'il peut y avoir à travailler à cette épaisseur dite

« optimale ». D'autre part, une relative indépendance de la réponse de phase par rapport à la géométrie de la couche métallique est mise en évidence puis étudiée de manière détaillée. Ceci nous a conduit à proposer un dispositif tirant profit de ce phénomène et permettant d'améliorer la résolution d'une détection angulaire du couplage plasmonique.

Afin de modéliser le signal plasmonique obtenu avec une nanostructure périodique, nous avons développé une méthode numérique s'inspirant d'une analyse dite des « ondes couplées ». Les performances du programme réalisé ont par la suite été évaluées afin de valider son utilisation pour modéliser un réseau métallique binaire unidimensionnel. Le déphasage induit par une telle structure en transmission est modélisé en fonction de la longueur d'onde de la source lumineuse. Cette étude permet de simuler le comportement de la réponse de phase en fonction des paramètres géométriques, à savoir le pas du réseau ainsi que la largeur et l'épaisseur des lames métalliques qui le constituent. Ces résultats sont finalement discutés dans une optique d'amélioration des performances de détection d'un tel capteur.

ABSTRACT

"Surface plasmons" are electromagnetic waves originating from surface electrons oscillation which can exist at the metal/dielectric interface. These guided waves can be excited by using various types of plasmonic couplers which are usually based on attenuated total reflection phenomenon or diffraction grating (which uses diffraction of evanescent waves).

These surface waves can be excited by resonant coupling with an incident light beam. This phenomenon is very sensitive to the surrounding refractive index and can be used in order to build sensors with high performances. Usually, the monitoring of the sensing events is made possible through the analysis of the beam emerging from this plasmonic coupler. The study of either the intensity or the phase variation of this beam allows to follow the refractive index change versus a tunable parameter (wavelength, coupling angle).

While nowadays sensors based on intensity detection are commonly used, sensors using phase variation are slowly emerging. However, phase detection is still less known and studied but could lead to performances improvement for some particular couplers.

The main purpose of this master's thesis is to suggest better ways to detect the phase. In order to do so, we have modeled the phase signal obtained from two methods mainly used to detect plasmons: prism coupling and grating coupling.

Phase signal with a sensor based on prism coupler can be modeled using the Fresnel formalism. We have used a Kretschmann-Raether configuration which implies a thin metal layer on the prism. For a specific thickness this configuration can lead to null reflectivity during the plasmonic coupling. In this study, we show the importance of such a thickness in phase detection. Then, we analyse the relationship between detection performances and the geometry of the system in order to highlight the advantages (sensitivity) and the drawbacks (resolution and dynamic range) of this "optimal" thickness. We are then able to demonstrate a specific property of phase response which is independent from the metal thickness in certain conditions. This leads us to suggest a new design for the sensor that benefits from this phenomenon and improves the resolution in an angular plasmonic coupling detection.

As for the study of phase detection in grating coupler, a numerical method based on coupled waves analysis has been developed and tested. Using this method we have simulated the phase

transmitted by such a structure versus the incident beam's wavelength in order to understand the phase dependency on the following geometrical parameters: period, thickness and width of the grating ridges. Finally, these results are discussed in order to improve detection performances of such a sensor.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....	III
REMERCIEMENTS	IV
RÉSUMÉ.....	V
ABSTRACT	VII
TABLE DES MATIÈRES	IX
LISTE DES TABLEAUX.....	XIII
LISTE DES FIGURES.....	XIV
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	XVIII
LISTE DES ANNEXES	XXII
INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE 1 RÉSONANCE PLASMONIQUE DE SURFACE	4
1.1 Propriétés optiques des métaux et plasmons	4
1.1.1 Fonction diélectrique et modèle de Drude	4
1.1.2 Plasmons.....	6
1.2 Le phénomène de résonance	7
1.2.1 Un exemple de résonance en physique	8
1.2.2 Guide d'onde plasmonique.....	9
1.2.3 Propriétés fondamentales	12
1.3 Couplage lumière-plasmons de surface.....	15
1.3.1 Réflexion totale atténuée.....	15
1.3.2 Réseau de diffraction.....	17
1.4 Les capteurs à résonance de plasmons de surface.....	18
1.4.1 Principe de fonctionnement.....	19
1.4.2 Les capteurs à sensibilité de phase.....	21
1.5 Amélioration structurelles	24
1.5.1 Choix du métal	24

1.5.2	Géométrie du coupleur	24
CHAPITRE 2 MODÉLISATION DE CAPTEURS PLANS		26
2.1	Dispositif considéré	26
2.2	Formalisme de Fresnel	27
2.2.1	Coefficient de réflexion global	27
2.2.2	Généralisation au cas des multicouches	30
2.2.3	Modélisation de la réponse	32
2.3	Approximation de Kretschmann	32
CHAPITRE 3 INFLUENCE DE LA GÉOMÉTRIE SUR DES CAPTEURS PLANS		36
3.1	Épaisseur "optimale" de la couche métallique	36
3.1.1	Lien entre minimum de réflectivité et déphasage	36
3.1.2	Dimensionnement du système	38
3.2	Influence de la rugosité de la couche métallique	40
3.2.1	Théorie du milieu effectif	40
3.3	Analyse du profil angulaire de phase	44
3.3.1	Suivi de la phase à angle d'incidence fixe	45
3.3.2	Suivi de l'angle de couplage	50
3.3.3	Discussions	51
3.3.4	Zone de convergence des courbes de phase	52
3.4	Application : la convergence des courbes de phase	54
3.4.1	Interprétations	55
3.4.2	Approche simplifiée	57
3.4.3	Prise en compte des pertes	59
3.4.4	Optimisation de la convergence de phase	61
3.4.5	Application pratique	63

CHAPITRE 4	MODÉLISATION DE STRUCTURES NANOPLASMONIQUES	68
4.1	Cadre de modélisation d'un réseau de diffraction.....	68
4.1.1	Bref aperçu des techniques de modélisations existantes	68
4.1.2	Géométrie du réseau.....	69
4.1.3	Structure du champ électromagnétique	70
4.2	Principe et implémentation d'une méthode d'analyse d'ondes couplées	71
4.2.1	Étape 1 : Onde dans les substrats et superstrats	72
4.2.2	Étape 2 : Décomposition de Fourier du champ et du réseau	73
4.2.3	Étape 3 : Résolution sous forme matricielle.....	75
4.2.4	Étape 4 : Raccordement des solutions.....	75
4.3	Discussions.....	77
4.3.1	Vitesse de convergence	77
4.3.2	Temps de calcul.....	78
CHAPITRE 5	INFLUENCE DES PARAMÈTRES GÉOMÉTRIQUES SUR LA PHASE TRANSMISE PAR UN RÉSEAU PÉRIODIQUE UNIDIMENSIONNEL.....	80
5.1	Dispositif considéré.....	80
5.1.1	Structure du montage	80
5.1.2	Modélisation de la réponse.....	81
5.2	Analyse et interprétation du profil spectral de phase	83
5.2.1	Émergence du premier ordre de diffraction	83
5.2.2	Longueur d'onde de couplage plasmonique.....	84
5.3	Influence de la géométrie des lames métalliques	86
5.3.1	Largeur des lames métalliques	87
5.3.2	Épaisseur des lames métalliques	90
5.3.3	Traitement couplé de l'épaisseur et de la largeur des lames métalliques.....	92

CONCLUSION	94
BIBLIOGRAPHIE	97
ANNEXES	100

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 3.1	Récapitulatif du comportement des principales grandeurs caractérisant la détection de phase en fonction de l'épaisseur de la couche métallique.....	51
Tableau 3.2	Dimensions optimales de la ZCCP pour différents intervalles d'épaisseurs	62

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1	Fonctions diélectriques de l'or simulée à partir du modèle de Drude	5
Figure 1.2	Oscillation de charges à l'interface métal/diélectrique	7
Figure 1.3	Schéma d'un résonateur simple : le système masse-ressort.....	8
Figure 1.4	Gain et déphasage du système masse-ressort.....	9
Figure 1.5	Profil de l'interface métal-diélectrique.	9
Figure 1.6	Décroissance du champ électrique suivant l'axe z (à gauche), suivant l'axe x (à droite).....	12
Figure 1.7	Module au carré et argument du coefficient de réflexion entre l'eau et l'or en polarisation p au voisinage de la résonance	13
Figure 1.8	Relation de dispersion des plasmons de surface	14
Figure 1.9	Représentation des configurations (a) de Kretschmann-Raether, (b) d'Otto.....	15
Figure 1.10	Relation de dispersion des plasmons de surface pour un coupleur ATR.....	16
Figure 1.11	Représentation schématique d'un réseau coupleur unidimensionnel	17
Figure 1.12	Relation de dispersion des plasmons de surface pour couplage par réseau	18
Figure 1.13	Schéma de principe du fonctionnement d'un capteur SPR	19
Figure 1.14	Caractérisation du couplage plasmonique en intensité (courbe bleu), en phase (courbe rouge) pour une interrogation angulaire	21
Figure 1.15	Illustration des variations profils (a) d'intensité et (b) de phase par rapport à l'indice de réfraction de l'analyte.....	23
Figure 2.1	Illustration détaillée du couplage par prisme en configuration Kretschmann-Raether	26
Figure 2.2	Réflexions multiples entre deux interfaces	28
Figure 2.3	Champs électromagnétiques incident, réfléchis et transmis à l'interface ij	29
Figure 2.4	(a) schéma d'un dispositif multicouche ; (b) réflexion et transmission aux limites de la $n^{ième}$ couche	30

Figure 2.5	Profil angulaire (a) de la réflectivité et (b) de la phase pour plusieurs valeurs d'indice de réfraction du milieu diélectrique.	32
Figure 2.6	Profil angulaire de la réflectivité (trait discontinu) et de la phase (trait plein).	34
Figure 3.1	Représentation complexe du coefficient de réflexion global r_{pmd} pour différentes épaisseurs (inférieur, supérieur, égale à d_{opt}) sur une plage de variation angulaire de 3 degrés autour de l'angle de résonance.	37
Figure 3.2	Profil spectral d'épaisseur optimale de différents métaux.....	39
Figure 3.3	Modélisation de la rugosité par une couche effective de constante diélectrique ϵ_{eff}	40
Figure 3.4	Profils angulaires (a) d'intensité et (b) de phase pour différentes rugosités.....	42
Figure 3.5	Évolution de l'épaisseur optimale en fonction de la rugosité de la surface.....	43
Figure 3.6	Profils angulaire (a) d'intensité et (b) de phase pour différentes rugosités, à l'épaisseur optimale correspondante.....	44
Figure 3.7	Illustration du principe de mesure de phase à angle d'incidence fixé.....	45
Figure 3.8	Zones de variation (gris) et de saturation (blanc) de phase (a), définies à partir de la pente de phase (b)	46
Figure 3.9	Évolution (a) de l'amplitude du déphasage $ \Delta\phi $ et (b) de $\Delta\theta$ en fonction de l'épaisseur d'or.....	47
Figure 3.10	Principe de test logique d'indice de réfraction	48
Figure 3.11	Approximation de la courbe de phase par sa tangente.....	49
Figure 3.12	Évolutions théoriques de la sensibilité de phase (à gauche) et de la plage dynamique linéaire (à droite) en fonction de l'épaisseur d'or.	49
Figure 3.13	Zone de convergence des courbes angulaires de phase formée par les profils relatifs à des épaisseurs d'or allant de $d=40\text{nm}$ à $d=55\text{nm}$ par pas de 1nm	52
Figure 3.14	Zone de convergence des courbes de phase formée par les profils relatifs à des épaisseurs d'or allant de $d=d_{\text{opt}}$ à $d_{\text{opt}}+10\text{nm}$	53
Figure 3.15	Modélisation de Fresnel.....	55

Figure 3.16	Interprétation du rôle numérateur r_a	56
Figure 3.17	Interprétation du rôle dénominateur r_b	56
Figure 3.18	Profils de ϕ_a (rouge) et ϕ_b (bleu) en fonction de θ pour différentes épaisseurs d d'or	58
Figure 3.19	Importante variation du déphasage associé à r_{md} permettant les relations (3.11) et (3.13).....	59
Figure 3.20	Variation de ϕ_a en fonction de l'épaisseur d à incidence θ_{opt}	60
Figure 3.21	Schéma de principe d'une détection de point de convergence de phase	64
Figure 3.22	Comparaison de l'intensité (trait discontinu) et de la valeur absolue de la différence de phase pour deux épaisseurs d'or (trait plein)	65
Figure 3.23	Réflectivité angulaire pour plusieurs épaisseurs d'or (figure de gauche $d \in [d_{opt} \pm 20nm]$) ; la dépendance angulaire des minima de réflexion (point rouges) à l'épaisseur d'or est représentée sur la figure de droite.....	66
Figure 3.24	Simulations de la variation des angles θ_I et θ_{PDC} pour d (resp. d_{moy}) appartenant à $I_{\pm 10nm}$ en fonction de la longueur d'onde.....	67
Figure 4.1	Configuration géométrique d'un réseau binaire.....	69
Figure 4.2	Représentation des champs diffractés par le réseau en polarisation p	72
Figure 4.3	Profil de la partie réelle de l'indice du réseau.....	73
Figure 4.4	Sommes des $2N$ premiers termes de la série de Fourier décrivant le profil d'indice dans le réseau. Pour $N=2$; $N=10$; $N=100$	74
Figure 4.5	Modélisation du déphasage et de l'efficacité de diffraction de l'ordre fondamental (transmission et réflexion) en fonction du nombre d'harmoniques retenues dans la décomposition de Fourier. Polarisation TE	77
Figure 4.6	Modélisation du déphasage et de l'efficacité de diffraction de l'ordre fondamental (transmission et réflexion) en fonction du nombre d'harmoniques retenues dans la décomposition de Fourier. Polarisation TM	78

Figure 4.7	Évolution du temps de calcul d'un appel de la méthode RCWA en fonction de n ...	79
Figure 5.1	Schéma du dispositif expérimental permettant de mesurer le déphasage en transmission par un réseau de diffraction métallique.....	80
Figure 5.2	Profil spectral (a) de la transmittivité et (b) de la phase	81
Figure 5.3	Profil spectral (a) de la transmittivité et (b) de la phase pour plusieurs valeurs d'indice de réfraction du milieu diélectrique.	82
Figure 5.4	Évolutions des longueurs d'onde de couplage en fonction du pas du réseau Λ	85
Figure 5.5	Évolutions des longueurs d'onde de couplage en fonction de l'indice n_d	86
Figure 5.6	Simulation du profil spectral de phase au voisinage du couplage plasmonique pour différentes largeurs de lames d'or.....	87
Figure 5.7	Profil spectral de phase pour différentes largeurs de bandes métalliques. a) résultats théoriques ; b) résultats expérimentaux	88
Figure 5.8	Évolution de la sensibilité de phase en fonction du paramètre f	89
Figure 5.9	Évolution de la longueur d'onde de couplage λ_l en fonction de la largeur w	90
Figure 5.10	Dépendance de sensibilité de phase à l'épaisseur d selon la valeur de f	91
Figure 5.11	Simulation du comportement de la sensibilité de phase en fonction de l'épaisseur et de la profondeur d'or.....	92
Figure 5.12	Modélisation de la sensibilité de phase en fonction du rapport f (en abscisse) et de l'épaisseur des lames métalliques (en ordonnées)	93
Figure 5.13	Représentation complexe du coefficient de réflexion r_{pmd}	100

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

ATR	<i>Attenuated Total Reflection</i> (réflexion totale atténuée)
CCD	<i>Charge-Coupled Device</i> (dispositif à transfert de charge)
CMOS	<i>Complementary Metal Oxide Semiconductor</i> (Métal Oxyde Semi-conducteur complémentaire)
FDTD	<i>Finite Difference Time Domain</i> (différences finies dans le domaine temporel)
FIB	<i>Focused Ion Beam</i> (faisceau d'ions focalisés)
LP2L	Laboratoire de Plasmonique et Procédés par Laser
TE	Transverse Électrique
TM	Transverse Magnétique
PDC	Point De Convergence
PDL	Plage Dynamique Linéaire
PS	Plasmon de Surface
RCWA	<i>Rigorous Coupled Wave Analysis</i> (analyse rigoureuse des ondes couplées)
RIU	<i>Refractive Index Unit</i> (unité d'indice de réfraction)
SERS	<i>Surface Enhanced Raman Scattering</i> (diffusion Raman exaltée de surface)
SNOM	<i>Scanning Near-field Optical Microscope</i> (microscope optique à champ proche)
SPR	<i>Surface Plasmon Resonance</i> (résonance des plasmons de surface)
ZCCP	Zone de Convergence des Courbes de Phase
B	Induction magnétique
β	Constante de propagation d'une onde de surface
C	centre géométrique du cercle osculateur
c	Vitesse de la lumière
D	Déplacement électrique

DE	Efficacité de diffraction du réseau
(d)	Milieu diélectrique
d_i	Épaisseur du milieu d'indice i (pour un seul milieu on écrit omet l'indice)
d_{opt}, d_{eff}	Épaisseur optimale, épaisseur effective
$\Delta\Theta, \Delta\Phi$	Extension en angle et en phase respectivement de la zone de convergence de courbes de phase
$\Delta\theta_{linéaire}$	Plage angulaire linéaire
E, e	Champ électrique, amplitude complexe du champ (notation vectorielle)
E_i, E_r	Champs électriques incidents et réfléchis (notation scalaire)
e	Charge de l'électron
ε	Constante diélectrique, par la suite fonction diélectrique relative effective
$\tilde{\varepsilon}, \tilde{\varepsilon}', \tilde{\varepsilon}''$	Fonction diélectrique complexe, partie réelle, partie imaginaire
ε_0	Constante diélectrique du vide
$\varepsilon_i, \varepsilon_{eff}$	Fonction diélectrique du milieu i , fonction diélectrique effective
ε_∞	Permittivité relative du métal à des fréquences infinies
F, F_0	Force sinusoïdale d'excitation d'un système masse ressort, amplitude de cette force
f	Rapport entre la largeur des bandes métalliques et diélectriques du réseau
f_{res}	Grandeur physique caractéristique de la résonance plasmonique
G_ϕ	Gain de la sensibilité de phase par rapport à la sensibilité angulaire
$\tilde{\Gamma}$	Terme d'amortissement d'un résonateur à un degré de liberté
H, h	Champ magnétique, amplitude complexe du champ (notation vectorielle)
H_i, H_r	Champs magnétiques incidents et réfléchis (notation scalaire)
H	Fonction de transfert
$\hbar$	Constante de Planck réduite

I_{inc}, I_r	Intensité du faisceau incident, réfléchi
Im	Partie imaginaire
K	Constante de raideur du ressort
k	Pulsation spatiale
k_x, k_{iz}	Pulsation spatiale projetée selon l'axe x (quelque soit le milieu), selon l'axe z (au sein du milieu i)
L	Distance de propagation du plasmon
$L_{p,i}$	Profondeur de pénétration du champ électrique dans le milieu i
Λ	Pas du réseau
λ	Longueur d'onde
μ, μ_r	Perméabilité magnétique, perméabilité magnétique relative
M	Masse du ressort
m	Masse de l'électron
(m)	Milieu métallique
n_i	Indice de réfraction complexe du milieu i
n_e	Densité volumique d'électrons libres
ω	Fréquence
ω_0	Pulsation propre
ω_p	Pulsation plasma
$p m d$	Système à trois couches : prisme, métal, diélectrique
ϕ	Déphasage associé à l'interaction du faisceau laser et du capteur plasmonique
R	Réflectivité
Re	Partie réelle
r_{ij}	Coefficient de réflexion à l'interface entre les milieux i et j
r_{ijk}	Coefficient de réflexion global pour un système à trois couches i, j et k

S, S_i	Sensibilité du capteur, sensibilité relative au paramètre d'interrogation i
σ	Conductivité
t_{ij}	Coefficient de transmission à l'interface entre les milieux i et j
TE, TM	Mode de polarisation transverse électrique (encore noté s), mode de polarisation transverse magnétique (encore noté p)
θ	Angle d'incidence du laser
$\theta_{SPR}, \theta_L, \theta_{opt}$	Angles associés : au couplage plasmonique, au minimum de réflectivité, à l'annulation de la réflectivité
w	Largeur des lames métalliques

LISTE DES ANNEXES

Annexe 1	Lien entre minimum de réflexivité et variation maximale de la phase	100
Annexe 2	Simplification de la condition d'optimisation de la convergence de phase	102
Annexe 3	Code du programme rcwa	104

INTRODUCTION

La découverte des plasmons de surface remonte au début du siècle dernier avec les travaux de R.W. Wood qui observe, en 1902, des anomalies (bandes sombres) dans le spectre de réflectivité d'un réseau de diffraction [1]. Les outils théoriques de l'époque ne lui permettent toutefois pas d'expliquer ces anomalies. Quarante ans plus tard, U. Fano propose une explication du phénomène avec une théorie vectorielle de la diffraction, il parle alors d'ondes de surface se propageant le long de réseaux métalliques [2].

La notion de plasmon de surface est introduite en 1957 par Ritchie [3] qui décrit la possibilité de guider la lumière à l'interface entre un métal et un milieu diélectrique. En 1965, pour décrire les anomalies de Wood, A. Hessel et A. Oliner abordent la notion de résonance et d'amplification du champ issue du couplage entre l'onde incidente et les modes propres supportés par un réseau de diffraction.

L'année 1968 est marquée par l'apparition d'une nouvelle technique d'excitation des plasmons : le couplage par réflexion totale interne. La possibilité d'exciter des ondes de surface est alors mise en évidence à travers deux configurations expérimentales assez proches développées respectivement par A. Otto [4] et le duo E. Kretschmann et H. Raether [5]. Ce type de couplage permet d'aboutir à des dispositifs expérimentaux plus simples et élargit le champ des applications liées aux plasmons de surface.

Le développement des premiers capteurs plasmoniques remonte à une trentaine d'années : dans les années 1980, une première application de la configuration *Kretschmann-Raether* [6] est réalisée par C. Nylander et B. Liedberg [7] pour la détection de gaz et de biomolécules. Le phénomène d'excitation en résonance de plasmons de surface (SPR pour *Surface Plasmon Resonance*) est alors principalement utilisé dans le guidage optique ainsi qu'au sein de dispositifs de détection à haute sensibilité. C'est cette dernière application qui a su montrer le plus d'intérêt.

En effet, ce phénomène a permis le développement de capteurs capables de mesurer des variations d'indice de réfraction avec une très grande précision, la détection reposant sur une mesure d'intensité lumineuse. Ce type de capteurs connaît un grand succès avec une application naturelle dans le milieu biomédical pour suivre des interactions biologiques en temps réel par exemple.

Le développement de nouvelles techniques fondées sur la SPR a permis d'accroître les performances de détection pour répondre à la demande provenant de certains domaines d'application tels que le monde pharmaceutique qui nécessite une métrologie très précise. Une avancée significative a été réalisée en 1997 avec la mise en évidence de l'intérêt de passer d'une détection d'intensité à une détection de phase pour améliorer la sensibilité des capteurs SPR [8].

Cette même année les travaux de T. Ebbesen [9] sur la transmission optique extraordinaire amorcent de nombreuses applications reposant sur l'excitation de plasmons à la surface de nanostructures périodiques. Ces structures connaissent un grand intérêt en raison, d'une part, de la demande croissante de capteurs intégrés (laboratoires sur puces) qui a éprouvé les limites de miniaturisation des méthodes conventionnelles fondées sur la réflexion totale atténuée et, d'autre part, du développement des techniques de microfabrication permettant de réduire les coûts.

La complexification de la forme des capteurs plasmoniques dont dépend fortement le signal de phase rend nécessaire la modélisation de ces structures afin de comprendre l'influence de la géométrie sur la réponse en phase et d'améliorer les performances des détecteurs. Ce dernier point constitue l'objet de ce mémoire, à savoir la modélisation de l'influence de la géométrie sur des capteurs plasmoniques à détection de phase. Ce travail a été mené à travers l'étude de deux types de capteurs SPR : les coupleurs plans reposant sur la réflexion totale atténuée et les nanostructures périodiques.

Le présent manuscrit, structuré en cinq chapitres, s'ouvre sur une description générale de la théorie des plasmons de surfaces ainsi qu'une présentation des capteurs SPR à détection de phase.

Les deux chapitres suivants s'articulent autour de l'étude des capteurs à géométrie plane :

- le chapitre 2 présente le cadre théorique considéré pour modéliser un capteur plan. Dans un premier temps, la structure du capteur est définie, puis le modèle théorique retenu dans la description de la réponse du capteur est présenté. Enfin, une analyse préliminaire de cette réponse est effectuée afin de valider le modèle ;
- le troisième chapitre est consacré à l'étude de l'influence des paramètres géométriques du capteur précédemment défini sur sa réponse de phase. Une caractérisation du signal plasmonique est réalisée en fonction de ces paramètres et du mode d'utilisation du capteur. À partir des

résultats obtenus, une application possible de détection est approfondie en fin de chapitre dans un souci d'amélioration de la détection de phase.

Les chapitres suivants se concentrent sur la modélisation de capteurs plasmoniques nano-structurés :

- le chapitre 4 détaille la théorie employée pour modéliser le signal diffracté par un réseau (de diffraction) métallique et présente comment adapter ce résultat à la modélisation d'un capteur plasmonique à détection de phase reposant sur une telle structure. Les limites du modèle développé sont également discutées ;
- le cinquième et dernier chapitre regroupe les résultats de modélisation d'un réseau de diffraction en transmission. L'influence de la géométrie du réseau sur le signal transmis est alors simulée en fonction de différents paramètres.

CHAPITRE 1 RESONANCE PLASMONIQUE DE SURFACE

Ce chapitre débute par une brève description des propriétés optiques des métaux nécessaire à la compréhension de l'origine des plasmons. En s'appuyant sur la théorie des ondes guidées, nous décrivons par la suite la résonance des plasmons de surface ainsi que les méthodes employées pour exciter ces ondes. L'intérêt des plasmons de surface pour la conception de détecteurs chimiques est ensuite mis en évidence à travers une présentation des capteurs SPR avec une attention particulière pour l'objet de notre travail : les capteurs à sensibilité de phase. Ce chapitre se clôture par une mise en lumière de ce qui constitue le sujet principal de ce mémoire à savoir l'intérêt de mener une étude sur la géométrie de ces capteurs.

1.1 Propriétés optiques des métaux et plasmons

On peut, en première approximation, considérer un métal comme un milieu isotrope ayant une constante diélectrique ε , une perméabilité magnétique μ et une conductivité σ .

1.1.1 Fonction diélectrique et modèle de Drude

Soit une onde électromagnétique de fréquence ω interagissant avec un milieu métallique. La fonction diélectrique relie la constante diélectrique et la conductivité du métal qui dépendent toutes les deux de la fréquence de l'onde. Elle est définie par :

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \varepsilon(\omega) + i \frac{\sigma(\omega)}{\omega} = \tilde{\varepsilon}' + i\tilde{\varepsilon}'' \quad (1.1)$$

On remarque que cette fonction est complexe : sa partie réelle $\tilde{\varepsilon}'$ représente le caractère inductif du métal alors que sa partie imaginaire $\tilde{\varepsilon}''$ décrit son caractère dissipatif lié aux pertes par effet Joule.

On définit l'indice de réfraction complexe par :

$$n(\omega) = \sqrt{\tilde{\varepsilon}(\omega)} \quad (1.2)$$

La distribution des électrons dans un métal caractérise ses propriétés optiques, le modèle de Drude permet de décrire la contribution des électrons de conduction à la fonction diélectrique

d'un métal. En 1900, Paul Drude propose de modéliser un métal par l'association d'un réseau ionique et d'un gaz d'électrons libres. Ce modèle permet de déterminer la fonction diélectrique relative effective d'un métal¹ :

$$\varepsilon_D(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{(\omega^2 + i\omega\omega_c)} \quad (1.3)$$

Où ε_∞ désigne la permittivité relative du métal à des fréquences infinies², ω_c un terme d'amortissement inversement proportionnel au temps de relaxation de l'électron et ω_p la pulsation plasma, grandeur qui sera détaillée dans la section suivante. La partie réelle de la fonction diélectrique peut être positive ou négative (selon la fréquence) alors que la partie imaginaire est toujours positive.

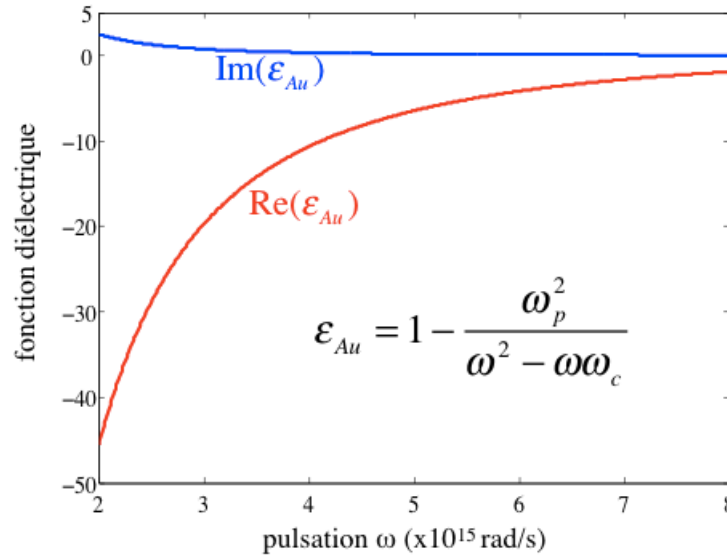


Figure 1.1 Fonctions diélectriques de l'or simulée à partir du modèle de Drude

$\omega_p = 9\text{eV}$; $\omega_c = 70\text{ meV}$; (Sources : Berciaud[10])

¹ Afin d'alléger les notations, la fonction diélectrique relative effective sera simplement notée ε (au lieu de $\tilde{\varepsilon}$)

² Pour les métaux décrits par le modèle de Drude, on fait généralement l'approximation $\varepsilon_\infty \approx 1$

La Figure 1.1 présente la fonction diélectrique relative à un métal (or), la variation spectrale de ε est importante dans le cas des métaux, on remarque par ailleurs que dans le cas de l'or on a $\varepsilon' < 0$. La réponse des métaux à la lumière est très différente de celle des diélectriques qui possèdent des constantes diélectriques positives et faiblement dépendantes de la longueur d'onde.

1.1.2 Plasmons

Plasmons de volume

On peut montrer que la densité de charge liée à ce gaz d'électrons libres peut osciller à travers tout le volume métallique. La pulsation propre (pulsation plasma) du système est alors donnée par :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m \varepsilon_0}} \quad (1.4)$$

avec ε_0 la constante diélectrique du vide, n_e la densité volumique d'électrons libres, e la charge de l'électron et m sa masse.

On appelle alors « plasmon de volume » le quantum d'énergie $\hbar \omega_p$ associé à ces oscillations.

Plasmons de surface

À l'interface entre deux milieux métallique et diélectrique, les lois de l'électromagnétisme prévoient l'existence de modes guidés traduisant la présence d'ondes de surface appelées « plasmons de surface ». Ces ondes résultent d'oscillations quantifiées des électrons à la surface du milieu métallique. Suivant leur longueur d'onde, elles présentent des fréquences propres

comprises entre $\omega = 0$ et $\omega = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \varepsilon_d}}$.

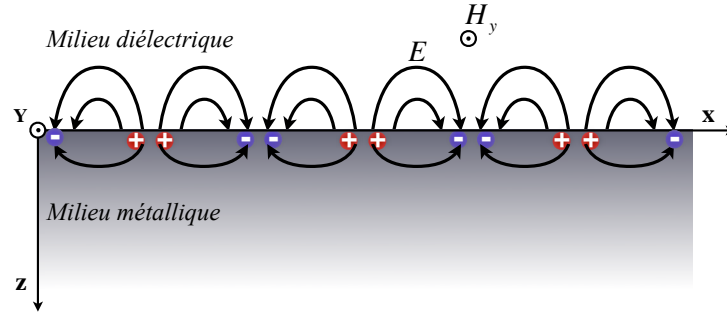


Figure 1.2 Oscillation de charges à l'interface métal/diélectrique

On distingue deux types de plasmons de surface :

- les **plasmons de surface localisés** sont des ondes de surface qui restent confinées localement autour de structures de dimensions nanométriques, on les retrouve par exemple à la surface des nanoparticules métalliques ;
- les **plasmons de surface délocalisés** représentent des ondes se propageant le long des surfaces métalliques.

Ces derniers sont à l'origine du fonctionnement des capteurs à résonance de plasmon de surface, c'est pourquoi ce mémoire se limitera à leur étude. Nous détaillerons plus particulièrement la relation de dispersion ainsi que le phénomène de résonance associés à ces ondes de surface.

1.2 Le phénomène de résonance

Le plasmon de surface a précédemment été défini comme un mode propre de propagation supporté par un système métal-diélectrique. La notion de mode propre renvoie souvent aux phénomènes de résonance que l'on retrouve dans les différents domaines de la physique ondulatoire (optique, mécanique, électronique, etc.).

On peut définir la résonance comme la situation dans laquelle un système soumis à une excitation périodique voit l'amplitude des oscillations d'une grandeur physique qui lui est associée connaître une importante augmentation. La fréquence d'excitation correspondant à ce phénomène est appelée fréquence propre du système. Dans les sections suivantes, nous nous proposons de caractériser la notion de résonance des plasmons de surface.

1.2.1 Un exemple de résonance en physique

Un exemple classique de résonateur en physique est celui d'un ressort de raideur K dont une extrémité est fixe et l'autre accrochée à un objet de masse M reposant sur un plan horizontal.

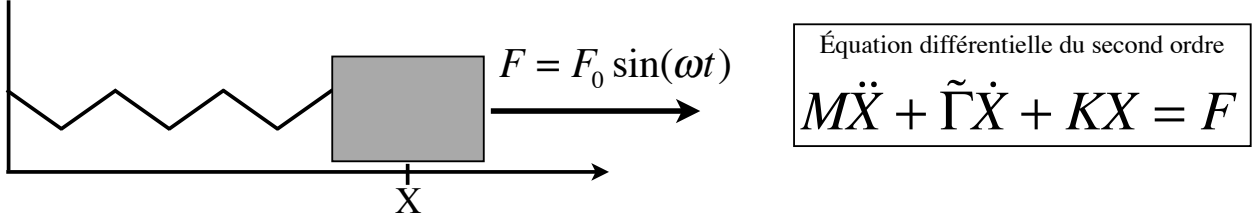


Figure 1.3 Schéma d'un résonateur simple : le système masse-ressort

L'étude de ce système sans forces extérieures (équation homogène) permet la détermination d'une solution à l'équation de mouvement appelée mode propre d'oscillation du système : $\omega_0 = \sqrt{K/M}$.

En régime d'oscillations forcées, la réponse du système en fonction de la fréquence d'excitation est décrite par la fonction de transfert H à travers le gain $|H|$ et déphasage $\arg(H)$ par rapport à l'excitation. On a :

$$|H(\omega)| = \frac{1}{M \sqrt{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + i\omega\omega_c}} \quad (1.5)$$

$$\arg(H) = \arctan\left(\frac{-\omega\omega_c}{\omega^2 - \omega_0^2}\right) \quad (1.6)$$

Où $\tilde{\Gamma}$ traduit les pertes par frottement et $\omega_c = \tilde{\Gamma}/M$

Pour un système non amorti ($\tilde{\Gamma} = 0$), lorsque la fréquence de l'excitation tend vers ω_0 , l'amplitude des oscillations de la masse diverge et le déphasage varie de manière discontinue de -180 degrés. Pour un système non conservatif (plus réaliste) l'amplitude des oscillations atteint une valeur maximale et le déphasage varie de manière importante, la qualité de l'exaltation est alors liée à l'amortissement $\tilde{\Gamma}$ du système (voir Figure 1.4).

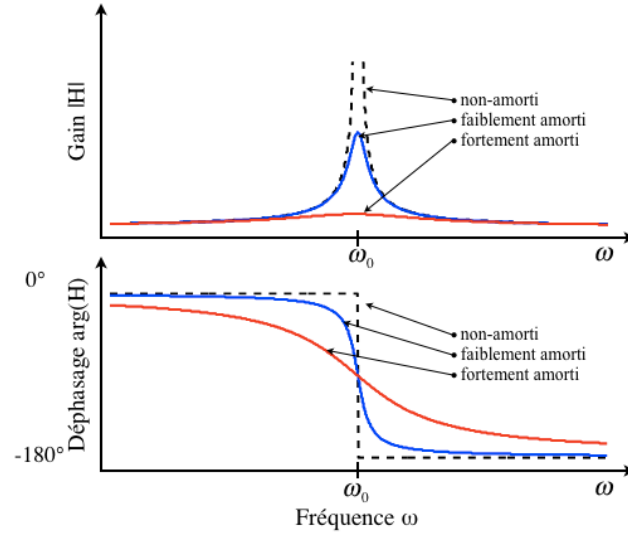


Figure 1.4 Gain et déphasage du système masse-ressort

En optique, l'étude des modes propres d'une structure est toutefois plus compliquée que dans l'exemple précédent car les variations spatiales et temporelles du champ électromagnétique sont couplées au sein des équations de Maxwell. On observera cependant des analogies entre ce système mécanique et le système du guide d'onde plasmonique.

1.2.2 Guide d'onde plasmonique

L'étude des plasmons de surface commence par la résolution des équations de Maxwell pour une onde de surface guidée le long de l'interface plane entre un milieu métallique (m) et diélectrique (d) (Figure 1.5).

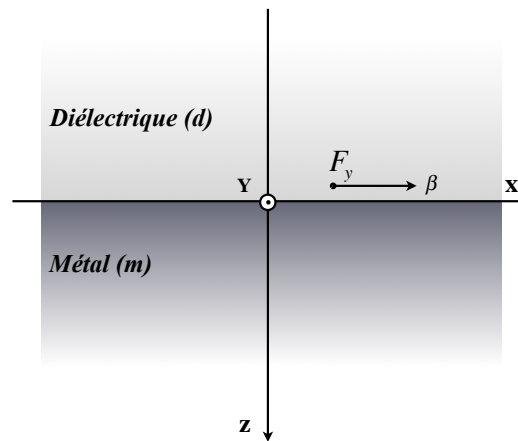


Figure 1.5 Profil de l'interface métal-diélectrique.

F_y représente la composante transverse du champ ; le vecteur de propagation β est également représenté.

Dans la suite du présent manuscrit, on fera l'hypothèse que les milieux considérés sont linéaires, isotropes et homogènes ; on supposera par ailleurs qu'aucun d'eux ne peut canaliser le champ magnétique ($\mu_r = 1$).

La solution recherchée est une onde guidée dans la direction x , le choix des axes permettant de lever la dépendance en y . Notons β son vecteur de propagation. La solution recherchée s'écrit :

$$\begin{aligned}\mathbf{E} &= \mathbf{e}(z)\exp[i(\beta x - \omega t)] \\ \mathbf{H} &= \mathbf{h}(z)\exp[i(\beta x - \omega t)]\end{aligned}\tag{1.7}$$

où $\mathbf{e}$ et $\mathbf{h}$ caractérisent respectivement la distribution des champs électrique et magnétique dans le plan Oyz, cette distribution ne dépend que de z .

Ces champs doivent satisfaire les équations de Maxwell :

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \mathbf{D} &= 0 \quad ; \quad \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \nabla \cdot \mathbf{H} &= 0 \quad ; \quad \nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}\end{aligned}\tag{1.8}$$

où $\mathbf{E}$, $\mathbf{D}$, $\mathbf{B}$ et $\mathbf{H}$ sont respectivement les vecteurs champ électrique (V/m), déplacement électrique (C/m²), induction magnétique (Tesla) et champ magnétique (A/m).

Le vecteur du champ électrique peut se décomposer suivant ses composantes parallèles et perpendiculaires au plan (xOz), on parle respectivement de polarisations³ s et p ou encore de modes transverse électrique (TE) et transverse magnétique (TM), le champ transverse étant ici orienté suivant l'axe y .

Dans chaque milieu les propriétés optiques sont uniformes, on a :

$$\varepsilon(z) = \varepsilon_i \text{ avec } \begin{cases} i = d & \text{si } z \leq 0 \\ i = m & \text{si } z > 0 \end{cases}\tag{1.9}$$

³ De l'allemand *senkrecht* et *parallel* respectivement

En combinant ces résultats avec les équations de Maxwell (1.8) on obtient dans chaque milieu :

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2 e_y(z)}{\partial z^2} + (\omega^2 \varepsilon_i \varepsilon_0 \mu_0 - \beta^2) e_y(z) &= 0 \\ \frac{\partial^2 h_y(z)}{\partial z^2} + (\omega^2 \varepsilon_i \varepsilon_0 \mu_0 - \beta^2) h_y(z) &= 0\end{aligned}\quad (1.10)$$

Ce qui permet d'écrire les composantes du champ électromagnétique pour les deux modes TE et TM :

Mode TE	Mode TM
$e_y(z) = a_i^+ \exp(i\kappa_i z) + a_i^- \exp(-i\kappa_i z)$	$h_y(z) = b_i^+ \exp(i\kappa_i z) + b_i^- \exp(-i\kappa_i z)$
$h_x(z) = \frac{\beta}{\mu_0 \omega} [a_i^+ \exp(i\kappa_i z) + a_i^- \exp(-i\kappa_i z)]$	$e_x(z) = -\frac{\beta}{\varepsilon_i \varepsilon_0 \omega} [b_i^+ \exp(i\kappa_i z) + b_i^- \exp(-i\kappa_i z)]$
$h_z(z) = -\frac{\kappa_i}{\mu_0 \omega} [a_i^+ \exp(i\kappa_i z) - a_i^- \exp(-i\kappa_i z)]$	$e_z(z) = \frac{\kappa_i}{\varepsilon_i \varepsilon_0 \omega} [b_i^+ \exp(i\kappa_i z) - b_i^- \exp(-i\kappa_i z)]$

(1.11)

où $\kappa_i^2 = \omega^2 \varepsilon_i \varepsilon_0 \mu_0 - \beta^2$

Dans chacun des cas, les conditions de continuité aux interfaces des composantes tangentielles des champs électriques et magnétiques permettent d'établir un système d'équations qui n'a de solution que si son déterminant est nul. Ceci se traduit par les deux relations suivantes :

$$\text{Mode TE} \quad \rightarrow \quad \kappa_d + \kappa_m = 0 \quad (1.12)$$

$$\text{Mode TM} \quad \rightarrow \quad \frac{\kappa_d}{\varepsilon_d} + \frac{\kappa_m}{\varepsilon_m} = 0 \quad (1.13)$$

Pour le mode TE, l'équation aux valeurs propres ne supporte pas de solution qui puisse représenter un mode guidé. Pour le mode TM en revanche, il existe une solution d'onde guidée, la constante de propagation de l'onde de surface associée s'écrit alors :

$$\beta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_d \varepsilon_m}{\varepsilon_d + \varepsilon_m}} \quad (1.14)$$

Ce mode guidé, encore appelé mode de Fano [11], caractérise un mode propre de résonance du système, il nécessite en outre l'inégalité $\epsilon'_m < -\epsilon_d$ [12].

1.2.3 Propriétés fondamentales

Extension spatiale du mode

L'étude des équations (1.11) montre la décroissance exponentielle du champ électromagnétique parallèlement et normalement à l'interface (Figure 1.6).

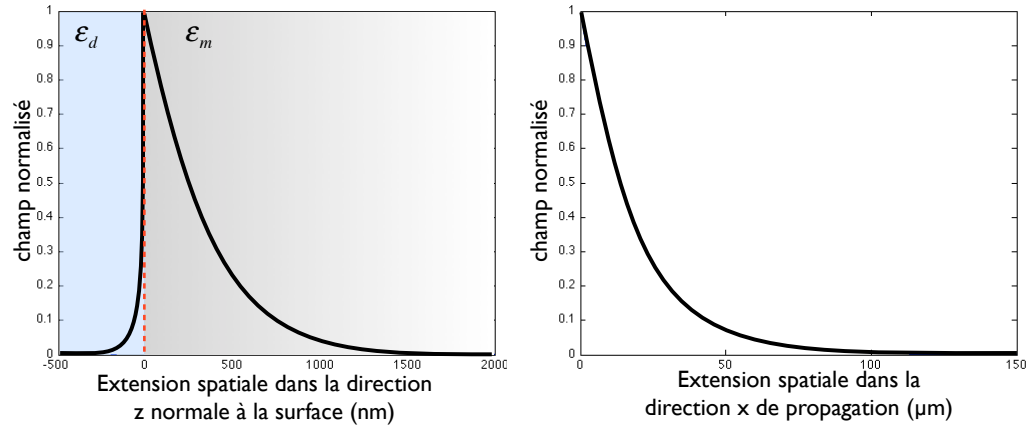


Figure 1.6 Décroissance de la composante du champ électrique e_x suivant l'axe z (à gauche), suivant l'axe x (à droite). La composante e_z présente un comportement similaire avec un changement de signe (discontinuité) du champ à l'interface $d|m$.

Suivant l'axe x , on définit la distance L de propagation du plasmon comme la distance au bout de laquelle l'énergie du mode décroît d'un facteur $1/e$, on a $L = [2 \text{Im}(\beta)]^{-1}$.

Normalement à l'interface, on définit la profondeur $L_{p,i}$ de pénétration du champ électrique dans le milieu i par :

$$L_{p,i} = [2 \text{Re}(\gamma_i)]^{-1} \quad (1.15)$$

avec $\gamma_i = ik \frac{\epsilon_i}{\sqrt{\epsilon_m + \epsilon_d}}$.

Cette dernière longueur est utilisée pour caractériser le champ de détection des capteurs plasmoniques et ainsi quantifier leur capacité à sonder le milieu environnant.

Réponse à une onde plane

Considérons une onde plane incidente sur le système, de pulsation temporelle ω fixée et de pulsation spatiale tangentielle k_x . Supposons que le système supporte, à la pulsation ω , un mode propre $\beta(\omega)$. La relation (1.14) permet de définir la condition de couplage, encore appelée accord de phase $k_x(\omega) = \beta(\omega)$. On utilise usuellement les coefficients de Fresnel⁶ pour relier le champ incident au champ réfléchi ou transmis par le système. À partir des notations introduites aux équations (1.11), on peut définir le coefficient de réflexion : $r_{dm}(k_x, \omega) = b_m^- / b_d^+$ et le coefficient de transmission : $t_{dm}(k_x, \omega) = b_m^+ / b_d^+$. En conséquence, la situation de résonance décrite précédemment (champ diffracté en l'absence de champ incident) est équivalente avec le fait que k_x et ω soient des pôles des coefficients de Fresnel.

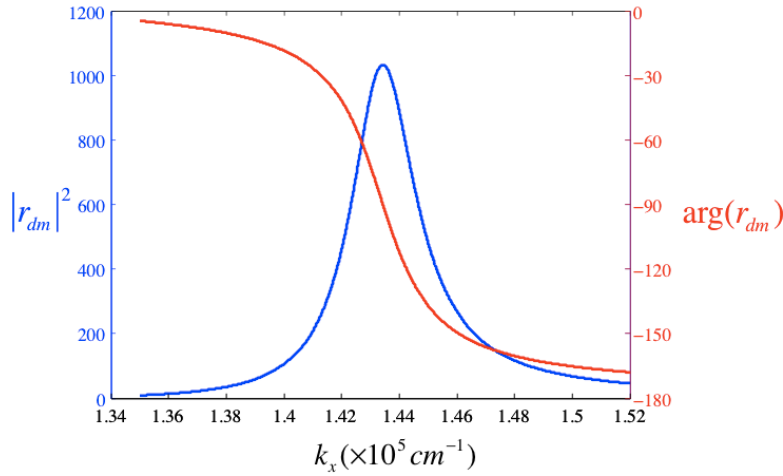


Figure 1.7 Module au carré et argument du coefficient de réflexion entre l'eau et l'or en polarisation p au voisinage de la résonance

$$\hbar\omega = 12.315 \text{ eV} ; n_{\text{eau}} = 1.33 ; \epsilon_{\text{or}} = -11.7173 + 1.2722i$$

On peut établir une analogie entre les coefficients de Fresnel et l'allongement du ressort dans le modèle mécanique, on assiste en particulier à la divergence de ces deux grandeurs dans les

⁶ Nous reviendrons plus en détail sur ces coefficients dans les chapitres suivants.

conditions de résonance. En pratique, les phénomènes dissipatifs dans le métal limitent cette divergence à une valeur maximale (toutefois importante) des coefficients de Fresnel comme le montre la Figure 1.7.

Relation de dispersion

L'étude du graphe de la relation de dispersion (1.14) apporte de nombreuses informations sur les propriétés des plasmons de surface (PS).

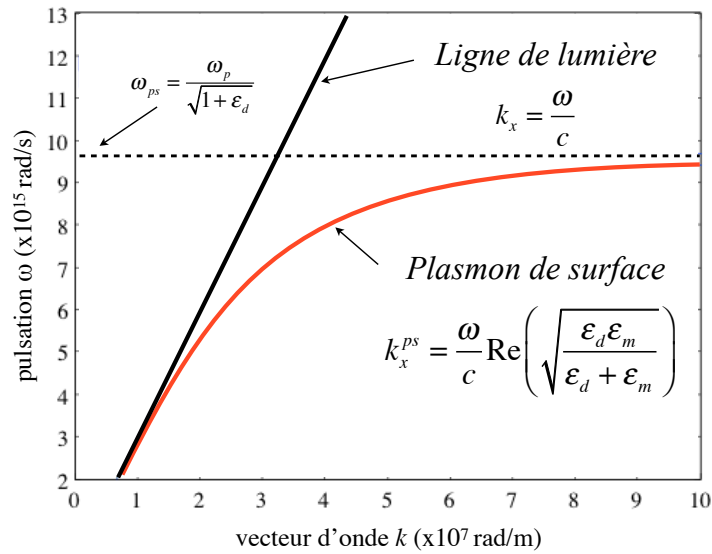


Figure 1.8 Relation de dispersion des plasmons de surface

(Courbes tracées à partir du modèle de Drude : $\omega_p = 13,67 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ ($=9\text{eV}$) ; $\omega_c = 106 \times 10^{12} \text{ rad/s}$ ($=70\text{meV}$))⁷

Sur la Figure 1.8 la «Ligne de lumière» correspond à la relation de dispersion d'une onde progressive parallèlement à l'interface $d|m$. Lorsqu'on considère une onde progressive quelconque, la projection de son vecteur d'onde selon Ox est par définition inférieure ou égale à la valeur repérée par la ligne de lumière, cette droite délimite donc le domaine des ondes radiatives (à gauche de la droite sur le graphe). On remarque alors que la courbe de dispersion

⁷ En réalité la présence de pertes (terme ω_c) empêche le décrochage asymptotique de la relation de dispersion des plasmon de surface, on assiste alors à un « retour en arrière » (*bend back*) de la courbe rouge. Cette propriété a été masquée sur les relations de dispersion considérées afin d'en simplifier la lecture dans la problématique du couplage plasmonique (intervenant pour des énergies inférieures à celles auxquelles est visible le phénomène de *bend back*).

des plasmons de surface se trouve toujours à l'extérieur de ce domaine. L'absence de point d'intersection entre les deux courbes montre qu'il est impossible d'exciter le mode plasmon de surface au moyen d'une onde progressive. Il faut donc trouver un moyen optique d'agrandir le cône de lumière, ce qui requiert l'emploi de systèmes de couplage.

1.3 Couplage lumière-plasmons de surface

Le couplage lumière-plasmon repose sur la modification du vecteur d'onde d'un faisceau lumineux afin de le faire coïncider avec le mode plasmonique. On distingue principalement deux manières de procéder à cette transformation :

- le couplage par réflexion totale atténuée ;
- le couplage par réseau de diffraction.

Ces deux approches seront respectivement décrites dans les sections suivantes.

1.3.1 Réflexion totale atténuée

La réflexion totale atténuée (ou ATR pour *Attenuated Total Reflection*) est aujourd'hui la méthode la plus employée pour exciter les plasmons de surface. Sa mise en œuvre expérimentale remonte à 1968 ; cette même année A. Otto puis E. Kretschmann et H. Raether réalisent les premiers coupleurs ATR (Figure 1.9).

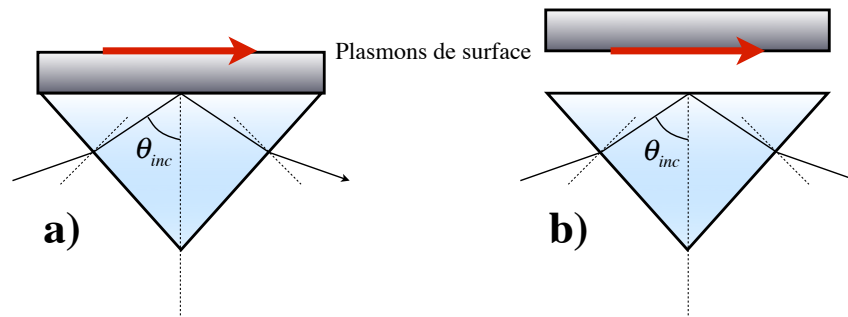


Figure 1.9 Représentation des configurations (a) de Kretschmann-Raether, (b) d'Otto

Dans les deux configurations, la géométrie du guide d'onde est plane et le couplage est assuré au moyen de l'utilisation d'un prisme. La composante tangentielle du faisceau incident est augmentée lorsqu'il se propage dans le prisme, elle vaut alors :

$$k_x = \sqrt{\epsilon_p} \frac{\omega}{c} \sin \theta \quad (1.16)$$

où ϵ_p la constante diélectrique du prisme.

L'excitation des PS s'effectue par le biais de l'onde évanescente résultant d'un phénomène de réflexion totale interne dans le prisme. Lorsque cette onde atteint la surface du métal où l'on souhaite réaliser le couplage plasmonique⁸, elle possède alors la même composante tangentielle que l'onde se propageant dans le prisme : k_x . L'accord de phase permettant le couplage devient :

$$k_x = \sqrt{\epsilon_p} \frac{\omega}{c} \sin \theta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_m \epsilon_d}{\epsilon_m + \epsilon_d}} \quad (1.17)$$

Cette relation est illustrée graphiquement sur la Figure 1.10

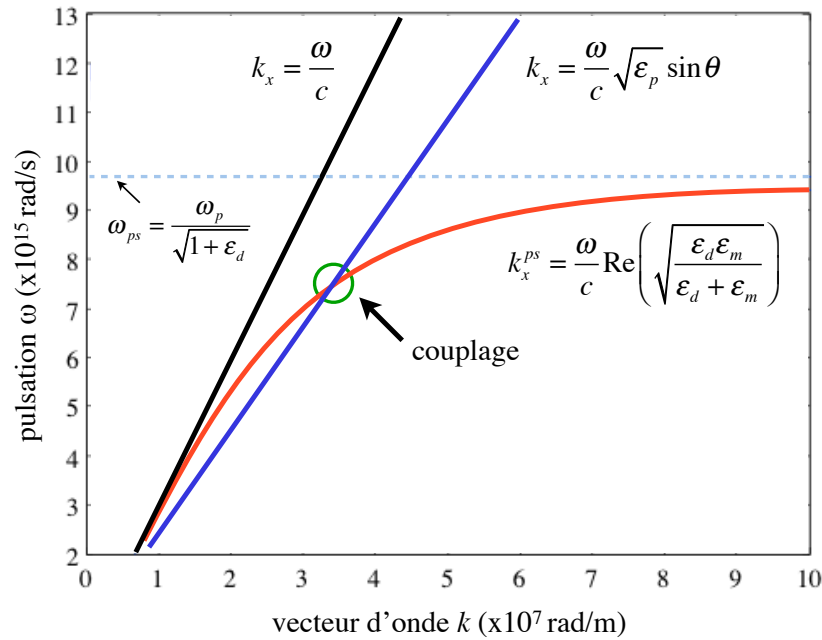


Figure 1.10 Relation de dispersion des plasmons de surface pour un coupleur ATR

(Courbes tracées à partir du modèle de Drude : $\omega_p = 13,67 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ ($=9\text{eV}$) ; $\omega_c = 106 \times 10^{12} \text{ rad/s}$ ($=70\text{meV}$))

⁸ En raison de la décroissance rapide de l'onde évanescente, la distance entre le prisme et la zone de propagation des PS est très petite (quelques dizaines de nanomètres en configuration Kretschmann par exemple).

1.3.2 Réseau de diffraction

Le deuxième type de coupleurs plasmoniques se fonde sur l'utilisation d'un réseau de diffraction. Si l'interface métal-diélectrique présente un profil de déformation périodique (de pas noté Λ) on assiste à un phénomène de diffraction de l'onde incidente selon différents ordres.

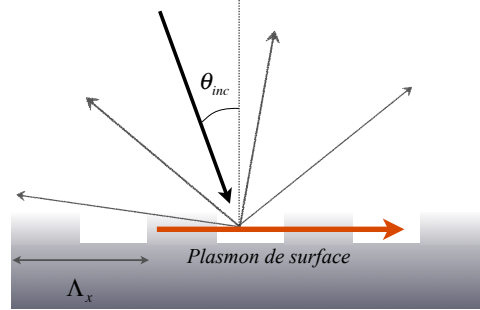


Figure 1.11 Représentation schématique d'un réseau coupleur unidimensionnel

Chaque ordre possède alors la constante de propagation de l'onde incidente «augmentée» d'un multiple du nombre d'onde du réseau : $2\pi/\Lambda$. Soit k_x^p la composante tangentielle de la constante de propagation de l'ordre p , on a alors :

$$k_x^p = k_x^{inx} + p \frac{2\pi}{\Lambda} = \frac{\omega}{c} \sin \theta + p \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (1.18)$$

où p un entier relatif.

Graphiquement on peut représenter les différents ordres en décalant horizontalement la ligne de lumière de multiples de $2\pi/\Lambda$. Le couplage plasmonique devient alors possible pour certains ordres de diffraction.

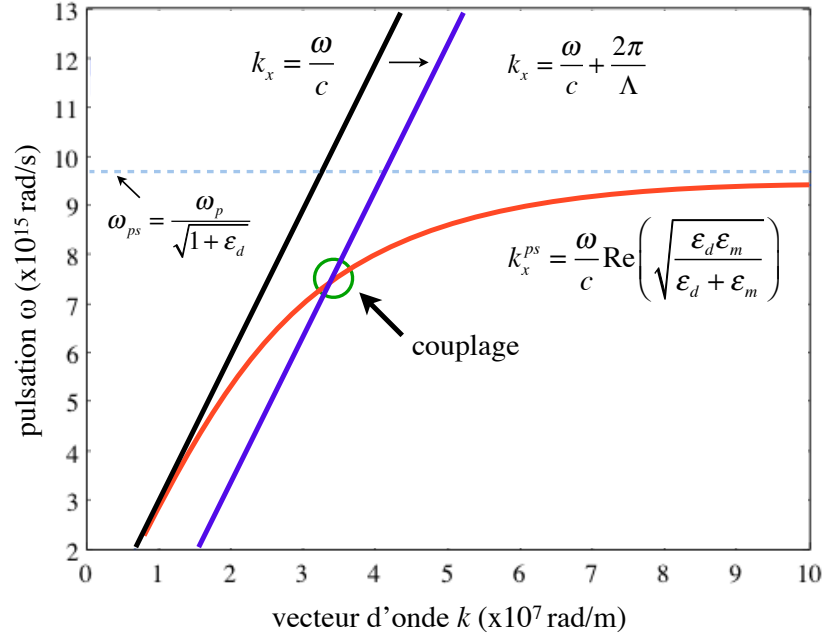


Figure 1.12 Relation de dispersion des plasmons de surface pour couplage par réseau

(Courbes tracées à partir du modèle de Drude : $\omega_p = 13,67 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ ($=9\text{eV}$) ; $\omega_c = 106 \times 10^{12} \text{ rad/s}$ ($=70\text{meV}$))

On voit sur la Figure 1.12 que, dans le cas limite d'une incidence rasante ($\sin \theta = 1$), si l'ordre 0 ne peut pas se coupler au plasmon de surface, l'accord de phase devient possible pour l'ordre 1.

Il est important de noter que si le formalisme de Drude permet de comprendre l'origine des PS le comportement optique des métaux est toutefois plus complexe et peut s'éloigner de ce modèle, en raison par exemple de transitions électroniques inter-bandes non prises en compte. Les fonctions diélectriques considérées dans la suite de ce travail seront déterminées à partir de mesures expérimentales de Johnson et Christie [13].

1.4 Les capteurs à résonance de plasmons de surface

Les plasmons de surface sont présents dans de nombreuses applications dont voici une liste non-exhaustive :

- la détection de PS à l'aide d'un microscope optique à champ proche [14] (SNOM : *Scanning Near-field Optical Microscope*) qui permet d'obtenir une très grande sensibilité dans l'imagerie de nano-objets ;

- les guides d'ondes plasmoniques [15] présentent de nombreux intérêts : confinement du champ, intégration sur des microstructures, etc. ;
- la diffusion Raman exaltée de surface [16] (SERS : *Surface Enhanced Raman Scattering*) où l'excitation de PS localisés permet une amplification du signal Raman de molécules dont on souhaite détecter la présence ;
- la détection d'agents chimiques, au moyen de transducteurs appelés «capteurs SPR» [12].

Ce dernier point, autour duquel s'articule ce mémoire, représente un champ d'application important, particulièrement dans le milieu biomédical où les capteurs SPR permettent de détecter, en temps réel et avec une très grande sensibilité, la présence d'espèces biologiques. Les caractéristiques de ces capteurs sont présentées dans les sous-sections qui suivent.

1.4.1 Principe de fonctionnement

La Figure 1.13 décrit le fonctionnement général d'un capteur SPR : un faisceau lumineux interagit avec un coupleur plasmonique, la génération de PS permet de sonder les propriétés optiques de la zone de détection, le signal à analyser étant fourni par l'onde émergente du coupleur.

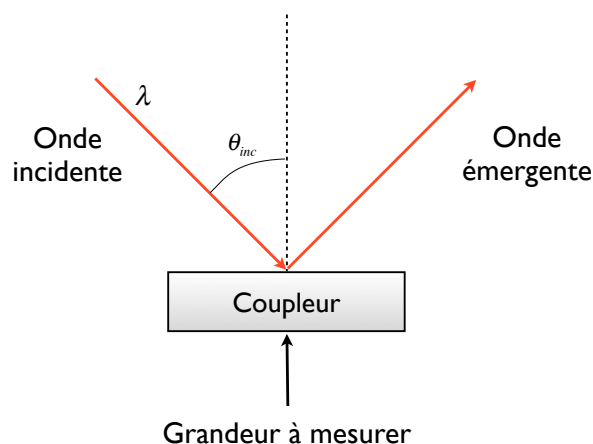


Figure 1.13 Schéma de principe du fonctionnement d'un capteur SPR

Ce principe de fonctionnement est détaillé dans les paragraphes suivants.

Grandeur à mesurer

L'intérêt principal des capteurs SPR réside dans la détection chimique avec des applications dans des secteurs divers tels que pharmaceutique, biomédical, alimentaire, environnemental, etc. Les problématiques liées à l'élaboration de biocapteurs constituent un vaste champ d'étude et ne seront donc pas abordées dans ce mémoire. Il faut cependant retenir que le fonctionnement de ces détecteurs se fonde sur une mesure d'indice de réfraction du milieu diélectrique qui sera considéré par la suite comme étant la grandeur d'intérêt à détecter.

Coupleur

Il existe différentes configurations de capteurs reposant sur l'utilisation de guides d'onde optiques, de réseaux ou encore de prismes. Le couplage par prisme (configuration de *Kretschmann-Raether*) est la technique la plus usuelle. Son intérêt provient de sa simplicité géométrique qui facilite sa mise en œuvre ainsi que sa modélisation. Toutefois, cette méthode présente le désavantage d'être assez encombrante et difficilement miniaturisable. Dans un contexte d'intégration des capteurs sur des microstructures, le couplage par réseau présente l'avantage de pouvoir être réalisé au niveau de structures nanoplasmoniques.

Modes d'interrogation

La relation de dispersion $k_x(\theta, \lambda) = \beta$ montre que la longueur d'onde et l'angle d'incidence sont les deux paramètres sur lesquels on peut jouer pour assurer l'accord de phase.

On distingue donc deux modes d'interrogation :

- angulaire, dans lequel on suit la position angulaire permettant le couplage à longueur d'onde λ fixe ;
- spectral, dans lequel on suit la position spectrale permettant le couplage à l'angle d'incidence θ fixe.

Signal détecté

La résonance plasmonique est généralement accompagnée d'une importante diminution de l'intensité ainsi que d'une importante variation du déphasage de l'onde émergeant du coupleur par rapport à l'onde incidente (Figure 1.14).

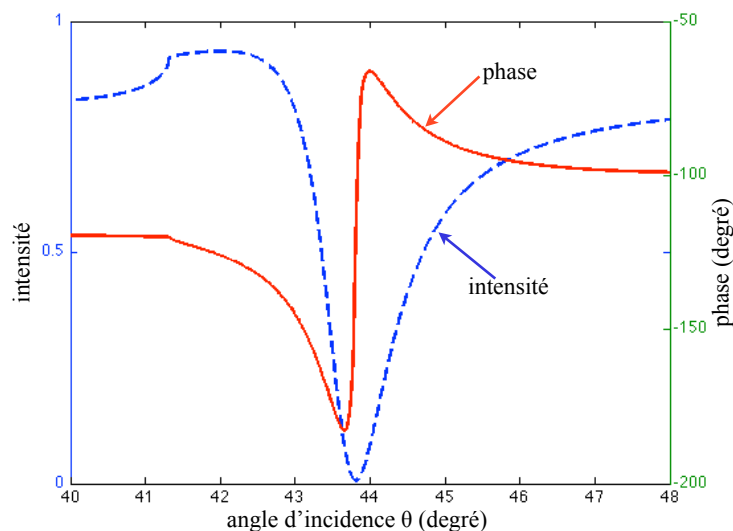


Figure 1.14 Caractérisation du couplage plasmonique en intensité (courbe bleue tiretée), en phase (courbe rouge pleine) pour une interrogation angulaire

L'étude du profil angulaire ou spectral du signal permet de mettre en évidence le minimum d'intensité associé au couplage, la détection peut se faire alors en suivant la position (angulaire ou spectrale) associée à ce minimum. L'étude de la phase de l'onde émergente constitue une autre source d'informations sur le couplage plasmonique. On peut procéder là encore à un suivi angulaire ou spectral du front de phase plasmonique. Une autre possibilité de détection consiste à fixer l'angle (respectivement la longueur d'onde de travail) et à suivre l'évolution du signal. Cette technique est particulièrement pertinente en détection de phase étant donné l'importante variation du signal.

La majorité des capteurs SPR procède à une détection d'intensité et les technologies fondées sur cette méthode sont aujourd'hui bien développées. L'étude de la phase reste cependant très intéressante pour la richesse des informations qu'elle peut apporter sur le couplage plasmonique, en particulier en termes d'amélioration de la sensibilité des mesures. C'est pourquoi, dans ce mémoire, l'intérêt est porté plus particulièrement sur ce mode de détection.

1.4.2 Les capteurs à sensibilité de phase

L'intérêt pour les capteurs SPR à détection de phase remonte à une quinzaine d'année. En 1997, les travaux de A. Kabashin [8] montrent théoriquement que ce type de détection peut

permettre d'obtenir une sensibilité 1000 fois supérieure à la sensibilité des capteurs conventionnels. Dès lors, plusieurs techniques ont été développées pour permettre de mesurer le déphasage provoqué par le couplage plasmonique.

Mesure de la phase

Une première méthode permettant d'analyser la phase se fonde sur l'emploi d'interféromètres de Mach-Zehnder [8] ou de Michelson [17]. Cette approche consiste à diviser le faisceau incident, un des faisceaux vient alors sonder le capteur, l'autre servant de référence. La différence de phase entre les deux faisceaux est alors mesurée par interférométrie.

La polarimétrie [18, 19] est une autre technique d'analyse qui consiste à comparer les polarisations s et p du faisceau émergent du capteur. La polarisation s n'étant pas affectée par le couplage plasmonique est alors utilisée comme référence. Le fait que le signal et la référence soient issus du même front d'onde confère à cette méthode de détection une meilleure sensibilité.

Sensibilité

On définit la sensibilité S du capteur comme le rapport entre les variations de la grandeur considérée pour caractériser la résonance plasmonique (notée f_{res}) et de la variation d'indice de réfraction du milieu diélectrique :

$$S = \frac{\Delta f_{res}}{\Delta n_d} \quad (1.19)$$

Selon le mode d'interrogation la sensibilité est donc donnée en [nm/RIU] ou en [deg/RIU]. Un des avantages des dispositifs à détection de phase est le fait que leur sensibilité peut être très importante lorsqu'on travaille à angle (respectivement longueur d'onde) fixe. Cette amélioration vient du fait que la grandeur caractéristique de la résonance est alors la phase du signal, laquelle peut varier de près de 180° au voisinage de la résonance quand l'angle d'incidence ne varie que de l'ordre du degré (Figure 1.15)

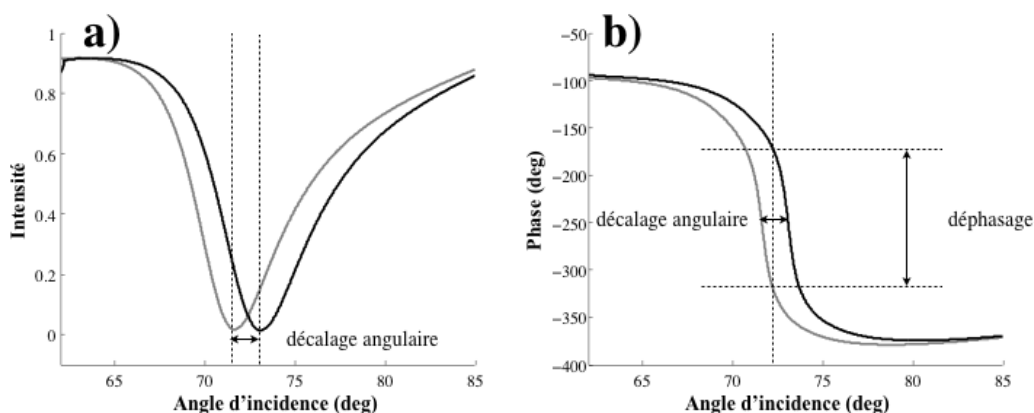


Figure 1.15 Illustration des variations angulaires des profils (a) d'intensité et (b) de phase pour deux valeurs d'indice de réfraction de l'analyte (1,33 trait clair et 1,34 trait sombre)
Simulation de la réponse d'un capteur SPR type Kretschmann. (BK7|Or|analyte, $\lambda=632$).

On utilise la notion de sensibilité pour évaluer les performances d'un capteur en fonction de ces paramètres⁹. Il faut toutefois préciser que la sensibilité ne renseigne pas sur la précision à laquelle on peut mesurer l'angle d'incidence dans le premier cas et la phase dans l'autre. On voit ici la nécessité de prendre en compte la résolution de la mesure expérimentale pour analyser les performances des capteurs.

Résolution

La résolution d'un capteur SPR désigne la variation minimale d'indice de réfraction détectable, elle est liée par le rapport du niveau de bruit sur la sensibilité. Elle est principalement liée à :

- la performance des instruments de mesure (spectromètre pour une mesure spectrale, ou goniomètre pour une mesure angulaire, caméra CCD, etc) ;
- la longueur d'onde (ou l'angle) de travail qui peut rendre une mesure plus ou moins contrastée ;

⁹ Dans ce travail on s'intéresse uniquement à la sensibilité à l'indice de réfraction de l'ensemble de l'analyte, dans la pratique on peut également considérer que cette indice n'est pas homogène, on s'intéresse alors souvent à la sensibilité d'une mince couche d'analyte adsorbée à la surface du métal.

- la qualité de conception du capteur et, en particulier, l'état de surface et la géométrie de la couche métallique.

1.5 Amélioration structurelles

Contrairement à la longueur d'onde ou l'angle d'incidence qui sont toujours ajustables, les paramètres structurels des capteurs plasmoniques nécessitent d'être déterminés préalablement afin d'en optimiser les performances.

1.5.1 Choix du métal

Il est intéressant de noter que tous les métaux ne permettent pas d'exciter des PS ; la possibilité pour un métal de supporter un mode plasmonique dépend de la longueur d'onde de travail. Pour les applications optiques qui nous intéressent il faut choisir des métaux présentant ces propriétés dans un domaine de longueurs d'ondes allant de 500 à 1500 nm. L'or remplit ces conditions et dispose, par ailleurs, d'une sensibilité et d'une stabilité qui en font l'un des métaux les plus utilisés, c'est pourquoi nous modéliserons principalement le milieu métallique par de l'or.

1.5.2 Géométrie du coupleur

Il a été vu précédemment que la forme des capteurs diffère d'un mode de couplage à l'autre (ATR ou réseau). Dans chacun des cas, les paramètres géométriques déterminent non seulement la qualité du couplage mais influent également sur les performances de détection. C'est pourquoi l'amélioration des détecteurs plasmoniques nécessite d'étudier préalablement cette dépendance. Depuis une vingtaine d'années, différentes techniques de modélisation ont été développées dans ce but. Plus récemment, les progrès réalisés sur les plans informatiques et techniques ont permis de mieux comprendre le rôle des paramètres géométriques et, en particulier, d'optimiser les paramètres en jeu dans la conception de capteurs nanostructurés. Toutefois, la majorité des recherches s'attache à optimiser les performances des capteurs à détection d'intensité. Le comportement de la phase reste ainsi mal compris et demeure souvent négligé en dépit de la richesse potentielle de ce mode de détection.

En conséquence, nous avons choisi d'étudier l'influence de la géométrie sur les capteurs SPR à sensibilité de phase. Nous verrons dans la suite de ce mémoire comment améliorer les performances de tels capteurs à travers l'étude de deux types de transducteurs qui sont utilisés au Laboratoire de Plasmonique et Procédés par Laser (LP2L) :

- un coupleur SPR conventionnel, structure plane avec couplage par prisme en configuration dite *Kretschmann-Raether* ;
- un coupleur SPR par réseau de diffraction unidimensionnel en transmission.

CHAPITRE 2 MODELISATION DE CAPTEURS PLANS

La résolution des relations de Maxwell permettant de traduire le mode plasmon de surface fait intervenir des équations dites transcendantes, c'est-à-dire, non solubles analytiquement. Pour cette raison, dans le cas général, on a souvent recours à des méthodes d'approximation numérique comme cela est vu dans l'étude du couplage par réseau au chapitre 4. Dans le cas particulier des structures planes il est toutefois possible de développer un modèle qui permet d'exprimer simplement la phase et l'intensité à partir d'une équation et, par conséquent, de relier facilement l'effet des paramètres géométriques à la réponse du système. Ce dernier point constitue l'objet de ce chapitre.

2.1 Dispositif considéré

Le domaine dans lequel l'intérêt des capteurs SPR demeure le plus grand est sans conteste la bio-détection. Aujourd'hui, de nombreuses entreprises se sont spécialisées dans la fabrication de ce type de détecteurs (Biacore [20], Ibis [21], Genoptics [22], Sensata [23], ...). Parmi les différents systèmes proposés, le système Biacore est actuellement le plus utilisé sur le marché [24] : il repose sur le couplage par prisme en configuration *Kretschmann-Raether* (voir Figure 2.1). Ce dispositif qui constitue dans la littérature le capteur SPR plan standard, sera en conséquence la structure modélisée dans ce chapitre.

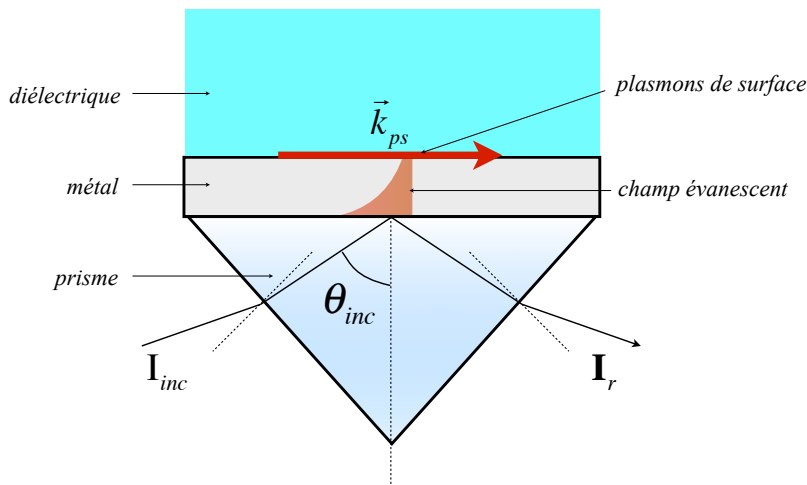


Figure 2.1 Illustration détaillée du couplage par prisme en configuration Kretschmann-Raether

On note en particulier les caractéristiques suivantes :

- **La longueur d'onde d'excitation est fixée** ce qui amène à s'orienter vers une analyse angulaire; ce choix permet de travailler avec des matériaux optiques aux performances optimisées pour la longueur d'onde de travail. Le choix du laser Hélium-Néon (632,8nm) sera retenu dans la suite des calculs, il s'agit du laser utilisé au laboratoire.

- **La couche métallique est constituée d'or.** Dans la littérature, l'or et l'argent sont souvent cités pour leurs performances avec ce type de dispositifs, toutefois, la forte propension de l'argent à s'oxyder peut être problématique pour certaines applications biomédicales.

Dans la suite de ce manuscrit, p désigne le prisme (BK7), m le métal (or) et d le diélectrique dont l'interface avec le métal est le siège de la propagation plasmonique¹⁰ (typiquement de l'eau dont l'indice de réfraction est susceptible de varier).

2.2 Formalisme de Fresnel

Dans le chapitre 1, il a été vu que le couplage plasmonique se traduit par une diminution de l'intensité accompagnée d'une variation importante de la phase du faisceau réfléchi. Cette observation peut être rigoureusement modélisée à partir de l'étude des coefficients de réflexion introduits par Augustin Fresnel au début du XIXème siècle.

2.2.1 Coefficient de réflexion global

Soit un système à trois couches notées $p|m|d$, les milieux p et d étant considérés comme semi-infinis, le milieu m étant d'épaisseur d (voir Figure 2.2). L'approche abordée dans cette section consiste en une description de la propagation de la lumière au moyen de rayons lumineux de vecteur d'onde k et soumis aux lois de Snell-Descartes. Considérons donc un rayon rencontrant l'interface $p|m$ sous un angle d'incidence θ et soumis à de multiples réflexions comme illustré ci-dessous.

¹⁰ Bien que le prisme constitue également un milieu diélectrique, ce terme (diélectrique) sera utilisé exclusivement pour désigner le milieu dont on souhaite effectuer une mesure d'indice de réfraction.

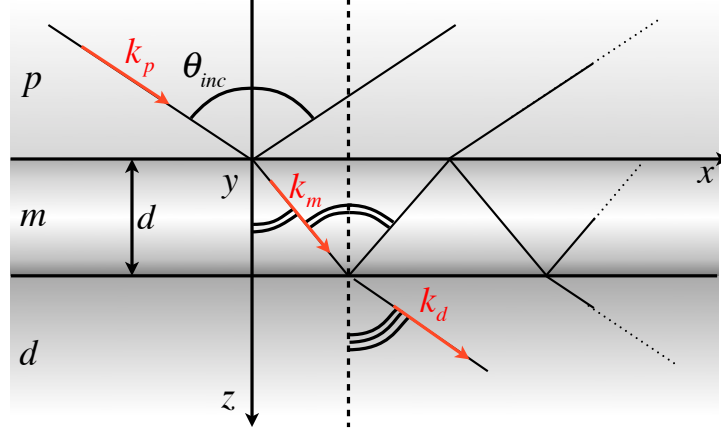


Figure 2.2 Réflexions multiples entre deux interfaces

On relie les champs électriques associés aux ondes incidentes et réfléchies par le système optique respectivement E_i et E_r par la relation (2.1) :

$$E_r = r_{pmd} E_i = |r_{pmd}| e^{i\phi} E_i \quad (2.1)$$

La réflectivité R est alors définie par $R = |r_{pmd}|^2$, elle traduit le rapport entre l'intensité du faisceau réfléchi et celle du faisceau incident sur le système. Les capteurs à détection d'intensité procèdent à une mesure de R ; en détection de phase, c'est le déphasage ϕ entre les champs électriques E_i et E_r qui est considéré.

En sommant l'ensemble des contributions des faisceaux réfléchis et transmis par les différentes interfaces, on détermine le coefficient global de réflexion du système optique r_{pmd} donné par la formule suivante (2.2) :

$$r_{pmd} = \frac{r_{pm} + r_{md} e^{2ik_m d}}{1 + r_{pm} r_{md} e^{2ik_m d}} \quad (2.2)$$

où :

- k_{mz} est la composante perpendiculaire à la surface du vecteur d'onde au sein du milieu métallique. Le retard de phase accumulé lors d'un aller-retour d'une onde lumineuse dans la couche centrale vaut $2k_{mz}d = \frac{4\pi}{\lambda} \sqrt{n_m^2 - n_p^2 \sin^2 \theta}$.
- r_{pm} et r_{md} sont les coefficients de réflexion aux interfaces respectivement entre le prisme et le métal et entre le métal et le diélectrique. Ces coefficients sont définis localement comme les rapports des champs réfléchis et incidents au voisinage de l'interface entre deux milieux (Figure 2.3).

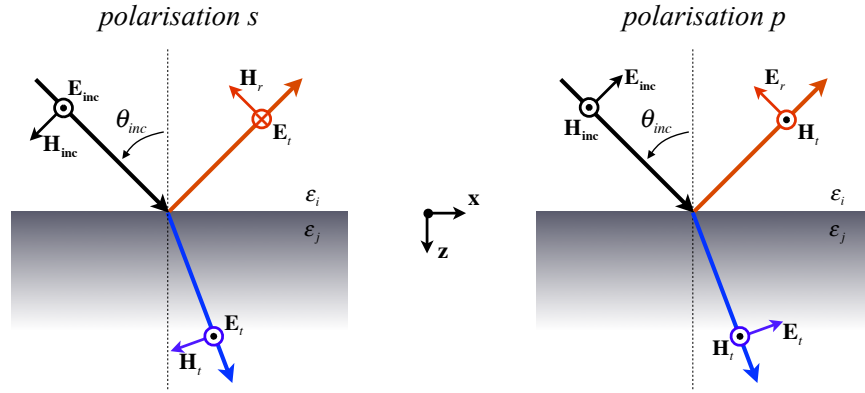


Figure 2.3 Champs électromagnétiques incident, réfléchis et transmis à l'interface $i|j$

L'expression des coefficients de réflexion diffère selon la polarisation de l'onde incidente, on a :

$$\text{Polarisation } s \rightarrow r_{ij} = \frac{k_{iz} - k_{jz}}{k_{iz} + k_{jz}} \quad (2.3)$$

$$\text{Polarisation } p \rightarrow r_{ij} = \frac{k_{iz}\epsilon_j - k_{jz}\epsilon_i}{k_{iz}\epsilon_j + k_{jz}\epsilon_i} \quad (2.4)$$

avec

$$k_{iz} = \sqrt{\left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^2 \epsilon_i - k_x^2} \quad (2.5)$$

Il a été vu que l'excitation du mode PS s'accompagnait de la divergence des coefficients de Fresnel. On retrouve ici cette propriété, la condition d'annulation de r_{pm} étant équivalente aux relations (1.12) et (1.13) d'existence de PS. Notons en particulier le fait que la polarisation s n'excite aucun plasmon on ne considère donc par la suite que la polarisation p .

2.2.2 Généralisation au cas des multicouches

La procédure précédente peut être étendue à un système optique comprenant N milieux d'épaisseur d_n compris entre deux milieux semi-infinis (voir Figure 2.4).

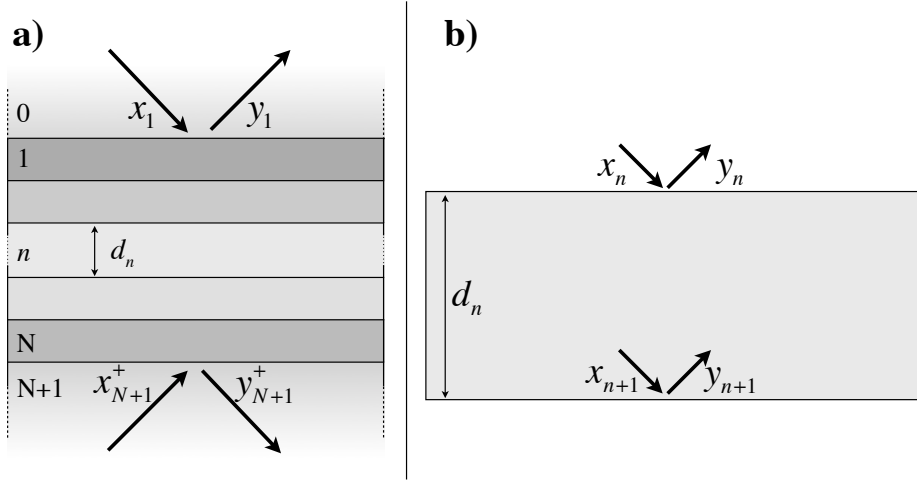


Figure 2.4 (a) schéma d'un dispositif multicouche ; (b) réflexion et transmission aux limites de la $n^{\text{ième}}$ couche

On considère la méthode matricielle développée par Abélès [25] pour exprimer la réflectivité globale d'un système multicouche. Les champs réfléchis et transmis par chaque couche dans les deux sens de propagation $(x_n, y_n)_n$ sont liés par des matrices $(\tilde{\mathbf{M}}_n)$:

$$\begin{pmatrix} x_n \\ y_n \end{pmatrix} = \tilde{\mathbf{M}}_n \begin{pmatrix} x_{n+1} \\ y_{n+1} \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

avec

$$\tilde{\mathbf{M}}_n = \frac{1}{t_{n-1,n}} \begin{pmatrix} e^{-ik_{nc}d_n} & r_{n-1,n}e^{ik_{nc}d_n} \\ r_{n-1,n}e^{-ik_{nc}d_n} & e^{ik_{nc}d_n} \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

La matrice de transfert entre les milieux 0 et $N+1$ s'écrit :

$$\tilde{\mathbf{M}} = \tilde{\mathbf{M}}_1 \cdot \tilde{\mathbf{M}}_2 \cdot \dots \cdot \tilde{\mathbf{M}}_n \cdot \dots \cdot \tilde{\mathbf{M}}_N \cdot \tilde{\mathbf{S}} \quad (2.8)$$

où

$$\tilde{\mathbf{S}} = \frac{1}{t_{N,N+1}} \begin{pmatrix} 1 & r_{N,N+1} \\ r_{N,N+1} & 1 \end{pmatrix} \Rightarrow \begin{pmatrix} x_{N+1}^+ \\ y_{N+1}^+ \end{pmatrix} = \tilde{\mathbf{S}} \begin{pmatrix} x_{N+1} \\ y_{N+1} \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

Le facteur $\tilde{\mathbf{S}}$ permet de tenir compte de l'interface entre les milieux N et $N+1$. On a alors :

$$\begin{pmatrix} x_1 \\ y_1 \end{pmatrix} = \tilde{\mathbf{M}} \begin{pmatrix} x_{N+1}^+ \\ y_{N+1}^+ \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

La condition d'initialisation $y_{N+1}^+ = 0$ permet d'écrire :

$$\begin{aligned} x_1 &= M_{11}x_{N+1}^+ + M_{12}y_{N+1}^+ = M_{11}x_{N+1}^+ \\ y_1 &= M_{21}x_{N+1}^+ + M_{22}y_{N+1}^+ = M_{21}x_{N+1}^+ \end{aligned} \quad (2.11)$$

Finalement le coefficient global du système multicouche est donné par :

$$r = \frac{y_1}{x_1} = \frac{M_{21}}{M_{11}} \quad (2.12)$$

La présente étude porte sur une structure « monocouche » (décrite par la relation (2.2)) néanmoins il est intéressant de considérer un modèle multicouche afin de tenir compte de la rugosité de la surface métallique.

2.2.3 Modélisation de la réponse

La Figure 2.5 représente les courbes de réflectivité et de phase calculées à partir de l'équation (2.2) pour une configuration *Kretschmann-Raether* avec une longueur d'onde de 632,8nm.

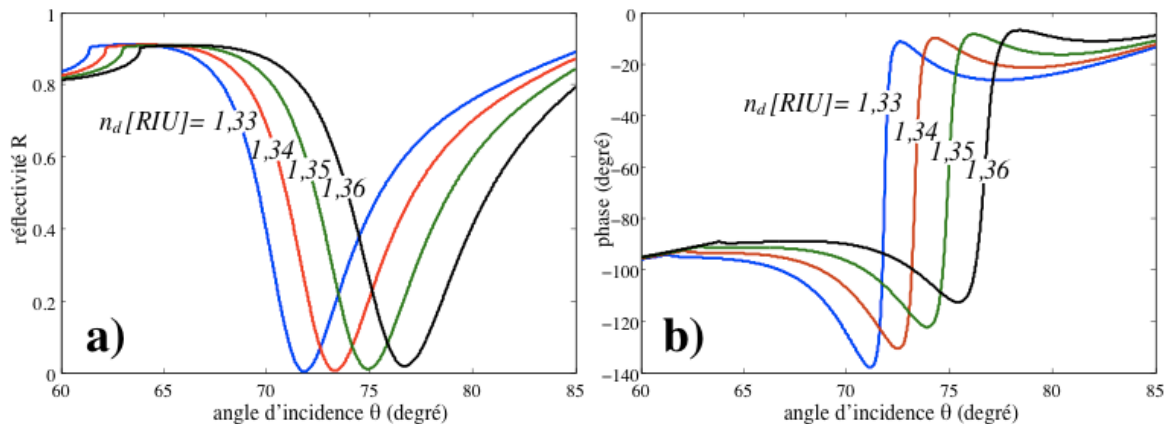


Figure 2.5 Profil angulaire (a) de la réflectivité et (b) de la phase pour plusieurs valeurs d'indice de réfraction du milieu diélectrique.

Courbes tracées à partir de la théorie de Fresnel. ($\lambda=632.8\text{nm}$; $n_p=1.515$; $\epsilon_m=-11.717 + 1.272i$; $d=50\text{nm}$)

On retrouve le phénomène de résonance des plasmons de surface illustré par un minimum de réflectivité (à gauche) et un saut de phase (à droite). La translation angulaire des profils de phase et d'intensité illustre par ailleurs la forte sensibilité de la condition de couplage à l'indice de réfraction du diélectrique.

Ce résultat est approfondi dans la suite de ce manuscrit où nous discutons en particulier de la manière de mesurer cette sensibilité notée S_θ . Remarquons dès à présent la quasi-uniformité de cette dépendance sur l'ensemble de la plage d'indice parcourue Figure 2.5. Pour une configuration BK7|or|eau à 632.8nm on trouve $S_\theta = 160 \text{ deg/RIU}$.

2.3 Approximation de Kretschmann

Aucune approximation n'a été ajoutée au modèle de Fresnel pour obtenir la formule (2.2), cette dernière n'est toutefois pas commode à interpréter sur le plan physique. Pour combler ce manque E. Kretschmann [26] a proposé une simplification du modèle de Fresnel permettant de

mieux comprendre le lien existant entre l'épaisseur de la couche métallique et le signal détecté. La condition d'annulation du dénominateur de l'équation (2.2) peut se réécrire sous la forme :

$$\left(\frac{k_{pz}}{\varepsilon_p} + \frac{k_{mz}}{\varepsilon_m}\right)\left(\frac{k_{mz}}{\varepsilon_m} + \frac{k_{dz}}{\varepsilon_d}\right) + \left(\frac{k_{pz}}{\varepsilon_p} - \frac{k_{dz}}{\varepsilon_d}\right)\left(\frac{k_{mz}}{\varepsilon_m} + \frac{k_{dz}}{\varepsilon_d}\right)\exp(2ik_{mz}d) = 0 \quad (2.13)$$

Lorsque l'épaisseur du métal d tend vers l'infini on a : $\exp(2ik_{mz}d) \rightarrow 0$, la formule précédente tend alors vers la relation de dispersion du mode PS à l'interface entre deux milieux semi-infinis (1.13). La présence du prisme peut donc être considérée comme une perturbation au mode plasmon de surface, introduit au premier chapitre, dont le vecteur de propagation k_{ps}^0 s'écrit :

$$k_{ps}^0 = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d}} \quad (2.14)$$

Le vecteur d'onde permettant d'exciter le PS prend la forme :

$$k_{ps} = k_{ps}^0 + \delta k \quad (2.15)$$

Où δk traduit le caractère perturbatif du prisme :

$$\delta k = -\frac{\omega}{c} \left[r_{pm} \right]_{k_x=k_x^0} \left(\frac{2}{\varepsilon_m - \varepsilon_d} \right) \left(\frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d} \right)^{3/2} \exp \left[i \frac{4\pi d}{\lambda} \frac{\varepsilon_m}{(\varepsilon_m + \varepsilon_d)^{1/2}} \right] \quad (2.16)$$

La qualité de l'approximation réside dans le fait qu'à la résonance on a : $\delta k \ll k_0$. La condition de couplage plasmonique devient alors :

$$\frac{2\pi}{\lambda} n_p \sin(\theta_{inc}) = k_{ps} = k_{ps}^0 + \delta k \quad (2.17)$$

Cette expression est très intéressante car elle préfigure l'influence de l'épaisseur d du milieu métallique sur le couplage, δk étant fonction de d .

Après une série d'approximations [27] il devient possible d'approcher l'équation (2.2) au voisinage de la résonance par une Lorentzienne de type :

$$R = 1 - \frac{4 \operatorname{Im}\{k_{ps}^0\} \operatorname{Im}\{\delta k\}}{\left(k_x - \operatorname{Re}\{k_{ps}\}\right)^2 + \left(\operatorname{Im}\{k_{ps}^0\} + \operatorname{Im}\{\delta k\}\right)^2} \quad (2.18)$$

avec $k_x = n_p \sin(\theta)$

La relation (2.18) présente l'avantage d'introduire explicitement la condition d'accord de phase avec le terme $k_x - \operatorname{Re}\{k_{ps}\}$ au niveau du dénominateur dont l'annulation correspond au minimum de réflectivité.

Par ailleurs, à travers le terme δk , il est possible de donner une interprétation physique pour justifier la qualité du couplage. En effet, le terme $\operatorname{Im}\{k_{ps}^0\}$ traduit les pertes par absorption du plasmon lors de sa propagation. Le terme $\operatorname{Im}\{\delta k\}$ permet de tenir compte des pertes radiatives rayonnées par le plasmon et découplées à travers le prisme. La baisse d'intensité peut donc être interprétée en termes de pertes énergétiques dues à la génération de PS.

Les pertes radiatives diminuant à mesure que l'épaisseur de la couche métallique augmente, il existe une épaisseur permettant de satisfaire $\operatorname{Im}\{k_{ps}^0\} = \operatorname{Im}\{\delta k\}$; l'analyse de l'équation (2.18) montre que le couplage plasmonique est alors associé à une annulation de la réflectivité. Cette épaisseur, dite optimale, est notée d_{opt} .

Les profils de réflectivité et de phase associés sont tracés sur la figure suivante pour une épaisseur d'or arbitraire ($d=50nm$).

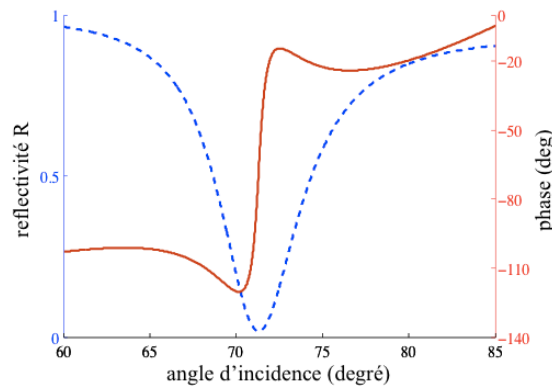


Figure 2.6 Profil angulaire de la réflectivité (trait discontinu) et de la phase (trait plein).

Courbes tracées à partir de l'approximation de Kretschmann.

($\lambda=632,8nm$; $n_p=1,515$; $\epsilon_m=-11,717 + 1,272i$; $d=50nm$; $n_d=1,33$)

Si cette seconde méthode est plus simple à implémenter elle n'est valable que dans le voisinage proche de la résonance plasmonique, et souffre de plusieurs approximations par rapport au modèle de Fresnel. Pour cette raison la relation (2.2) est retenue, dans la suite de cette étude, comme base des calculs permettant de modéliser la structure ; le formalisme de Kretschmann demeure toutefois grandement utile à la compréhension et à l'interprétation du phénomène, il permet en outre d'introduire la notion d'épaisseur optimale qui est approfondie au cours du chapitre suivant.

CHAPITRE 3 INFLUENCE DE LA GEOMETRIE SUR DES CAPTEURS PLANS

Ce chapitre présente, à partir de la modélisation introduite précédemment, une étude du comportement de phase d'un capteur plan reposant sur un couplage par prisme en configuration Kretschmann. Nous avons développé un code sous le logiciel MATLAB permettant de réaliser la modélisation définie à partir du formalisme de Fresnel (2.2). Dans un premier temps la notion d'épaisseur optimale est développée dans un contexte de détection de phase. Le rôle de l'état de surface de l'échantillon est également présenté. Par la suite, nous étudions les différentes influences de l'épaisseur de la couche métallique sur la réponse de phase. Une application permettant d'améliorer les performances de détection de phase est finalement proposée.

3.1 Épaisseur "optimale" de la couche métallique

L'épaisseur optimale, introduite précédemment, qui permet d'annuler le minimum de réflectivité est très appréciable en détection d'intensité. En effet, le contraste (rapport entre la réflectivité mesurée hors résonance et le minimum de réflectivité) influe sur la résolution du capteur [28]. Se placer à l'épaisseur annulant la réflectivité permet d'obtenir un contraste théorique infini. Cette section s'intéresse à l'importance du rôle que cette épaisseur optimale joue dans l'étude de la réponse en phase.

3.1.1 Lien entre minimum de réflectivité et déphasage

La représentation complexe du coefficient de réflexion globale r_{pmd} permet de comprendre le lien existant entre le déphasage et le minimum de réflectivité (Figure 3.1).

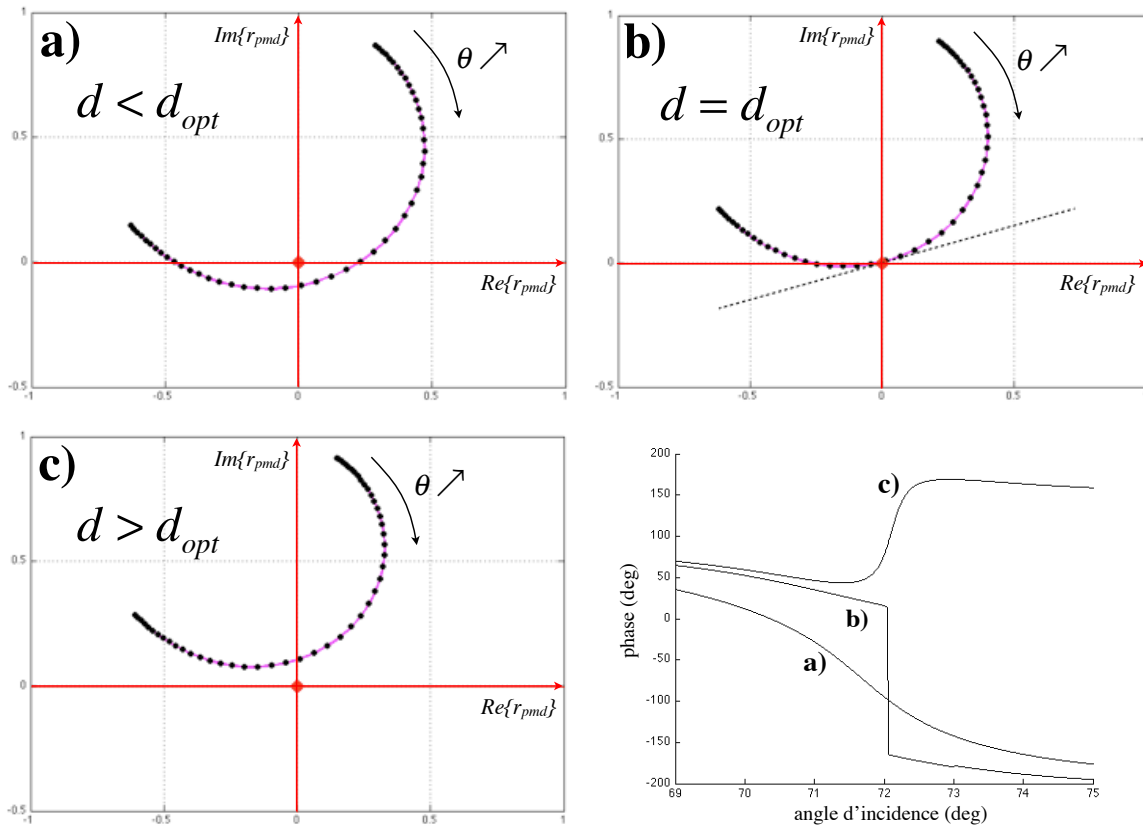


Figure 3.1 Représentation complexe du coefficient de réflexion global r_{pmd} pour différentes épaisseurs (inférieure, supérieure, égale à d_{opt}) sur une plage de variation angulaire de 3 degrés autour de l'angle de résonance.

Sur la figure précédente, chaque point de la courbe correspond à la valeur de r_{pmd} pour un angle d'incidence, sa norme au carré est la réflectivité R et son argument correspond au déphasage ϕ ; l'origine du plan complexe est représentée par un point rouge.

On constate que la variation de l'épaisseur du milieu métallique modifie la position de la courbe dans le plan complexe par rapport à l'origine. Ainsi, pour une certaine épaisseur (d_{opt}), la courbe passe par zéro (graphe b). Ceci entraîne, pour un angle d'incidence (noté θ_{opt}), l'annulation de la réflectivité R ainsi qu'une discontinuité de la phase (saut de phase de 180 degrés). Par ailleurs, cette épaisseur optimale délimite les courbes qui « passent » en dessous et au dessus de l'origine du plan complexe. Dans le cas a) on a $d < d_{opt}$, on assiste à un déphasage décroissant (on parcourt la courbe en se déplaçant dans le sens horaire par rapport à l'origine) et dans le cas c) où $d > d_{opt}$ le déphasage devient croissant pour les raisons inverses.

Une approximation d'ordre 2 permet de modéliser la courbe au voisinage de la résonance par l'équation de son cercle tangent (de centre C et de rayon ρ)

$$r_{pmd} \approx C + \rho \exp[i \cdot (u\theta + v)] \quad (3.1)$$

avec $\rho, u, v \in \mathbb{R}$.

À partir de cette relation il est possible de démontrer (voir Annexe 1) qu'à l'angle où la réflectivité est minimale (angle noté par la suite θ_I), la variation de phase passe par une valeur maximale qui traduit le déphasage. La variation maximale de phase (notée G_ϕ) s'approxime alors :

$$G_\phi(d) = \frac{\partial \phi}{\partial \theta}(\theta_I, d) \propto \frac{\rho}{\rho - |C|} \quad (3.2)$$

où ϕ est la phase.

Ainsi, à mesure que le minimum de réflectivité tend vers zéro (ce qui équivaut au fait que ρ tende vers C) on assiste à la divergence de la pente de phase. De façon corollaire, si l'épaisseur est trop éloignée de d_{opt} la variation du déphasage devient négligeable.

3.1.2 Dimensionnement du système

Il apparait nécessaire de travailler au voisinage de l'épaisseur optimale pour garantir une réponse de phase exploitable. Il est pour cela intéressant d'évaluer cette épaisseur avec différents métaux en fonction de la longueur d'onde. Ceci a été rendu possible (Figure 3.2) en procédant à une résolution numérique de la condition d'annulation de l'équation (2.2) par une méthode itérative.

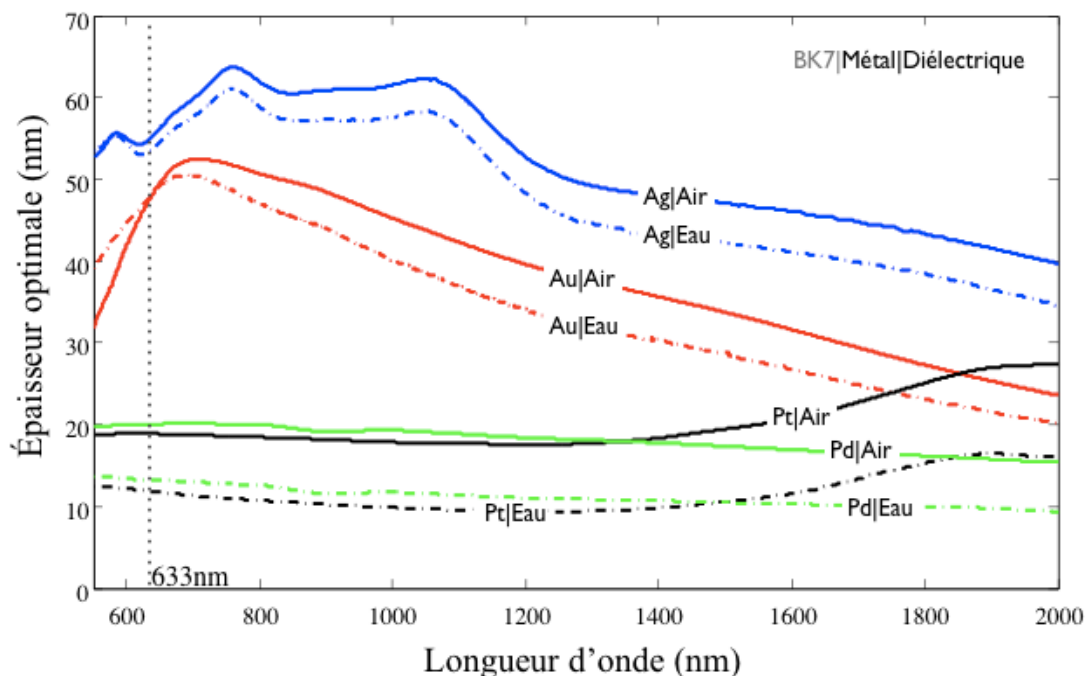


Figure 3.2 Profil spectral d'épaisseur optimale de différents métaux
 (Dispositif BK7|Métal|Diélectrique=air (trait discontinu) ; eau (trait plein))
 (paramètres des métaux : Johnson et Christie [13])

L'épaisseur optimale a été mesurée pour l'argent, l'or, le platine et le palladium (métaux supportant le mode PS). Au niveau de la conception du coupleur, il est plus avantageux de travailler avec une couche métallique relativement épaisse. En effet, en dessous d'une trentaine de nanomètres il peut parfois être plus difficile d'obtenir des couches continues et homogènes en raison de problématiques de germination lors du dépôt métallique.

Dans ce contexte, la pertinence de l'utilisation de l'or associée au choix d'un laser He-Ne (632.8nm) se trouve donc validée¹¹. À l'inverse, il sera plus problématique de travailler dans l'infrarouge au voisinage de l'épaisseur optimale.

¹¹ L'argent est également intéressant en dépit des problèmes d'oxydation mentionnés précédemment.

3.2 Influence de la rugosité de la couche métallique

Dans la pratique, la planéité de l'interface entre le métal et l'analyte n'est jamais parfaite ; d'une manière générale, il est compliqué de produire des dépôts métalliques à la fois minces et lisses. Si aujourd'hui les couches minces d'or les plus lisses présentent des variations de profil de l'ordre de 2nm (société Platypus [29]), les procédés de fabrication utilisés restent coûteux et complexes. À titre d'exemple, les couches d'or produites au laboratoire présentent une rugosité de surface allant de 5 à 10 nm d'épaisseur. L'épaisseur des couches métalliques étant de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres, il peut être important d'évaluer l'influence de leur rugosité sur la réponse du capteur plasmonique.

Intuitivement on comprend que les irrégularités du profil contribuent à diminuer la réflexion spéculaire au profit d'une réflexion diffuse. Ceci a pour conséquence de réduire le signal détecté. Par ailleurs, chaque défaut de surface est une source potentielle de découplage pour le mode guidé "idéal" [6].

3.2.1 Théorie du milieu effectif

Afin de caractériser l'influence de la rugosité de surface sur la réponse plasmonique, on propose de modéliser la zone d'irrégularité du profil d'or (interface $m|d$) par une couche homogène de constante diélectrique effective ϵ_{eff} (voir Figure 3.3).

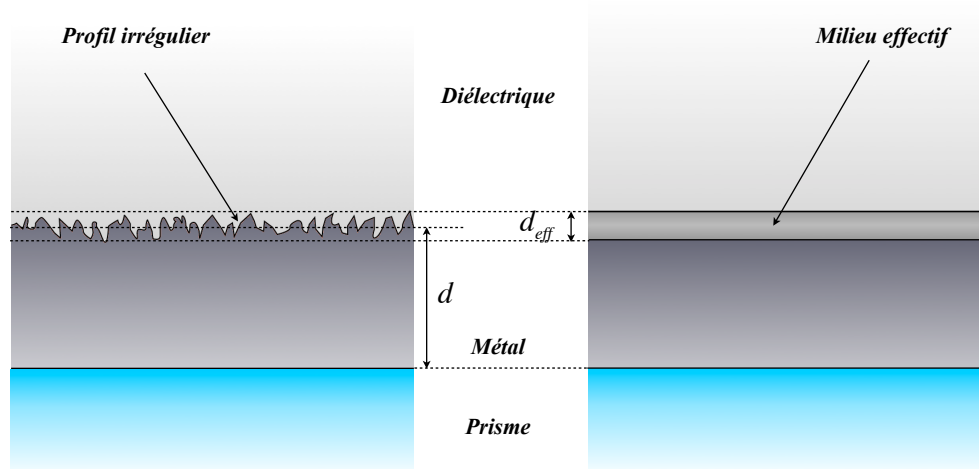


Figure 3.3 Modélisation de la rugosité par une couche effective de constante diélectrique ϵ_{eff}

Différents modèles de milieux effectifs permettent de déterminer la constante diélectrique effective ε_{eff} . On distingue en particulier la théorie de Maxwell Garnett et celle de Bruggemann. Initiée dès 1904, la théorie de Maxwell Garnett [30] permet de décrire un milieu 1 siège d'inclusions sphériques d'un milieu 2. Elle est ainsi dite dissymétrique car son cadre de validité suppose que l'un des deux milieux soit prépondérant par rapport à l'autre.

On a :

$$\varepsilon_{eff, MG} = \varepsilon_1 \frac{(3 - 2f_1)\varepsilon_2 + 2f_1\varepsilon_1}{f_1\varepsilon_2 + (3 - f_1)\varepsilon_1} \quad (3.3)$$

Où f_l désigne la fraction volumique du milieu hôte (f_l est proche de 1).

Le modèle de Bruggeman [31], développé trente ans plus tard, confère à l'inverse un rôle symétrique aux différents milieux ce qui permet de déterminer un indice effectif lorsque les fractions volumiques des deux milieux sont proches.

On a alors la relation :

$$f_1 \left(\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_{eff}}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon_{eff}} \right) = f_2 \left(\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_{eff}}{\varepsilon_2 + 2\varepsilon_{eff}} \right) \quad (3.4)$$

Dont on déduit la fonction diélectrique effective par résolution d'un polynôme du second degré.

Dans le cadre de la modélisation de la rugosité de surface, la couche effective est caractérisée par son épaisseur d_{eff} et la fraction $f_m = 1 - f_d$. Une étude approfondie des surfaces [32] peut alors permettre de déterminer ces paramètres. Dans la présente étude, il est supposé que l'épaisseur de la couche d'or est décrite en chaque point du plan Oxy par une variable aléatoire suivant une loi normale d'espérance d_{moy} et d'écart type d_{eff} . Cette hypothèse permet de modéliser la zone de rugosité par une pseudo couche, d'épaisseur d_{eff} , au sein de laquelle le métal et le diélectrique sont distribués symétriquement. Ceci conduit à exprimer ε_{eff} à partir du modèle de Bruggeman. On supposera en outre dans les calculs : $f_m = f_d = 0,5$.

Sous ces hypothèses nous avons tracé (Figure 3.4) les profils de phase et d'intensité en fonction de d_{eff} . La première observation est un décalage angulaire interprétable comme l'ajout d'un terme Δk_{rug} au vecteur d'onde du mode plasmonique tenant compte de la rugosité de surface.

$$k_{PS,rug} = k_{PS} + \Delta k_{rug} \quad (3.5)$$

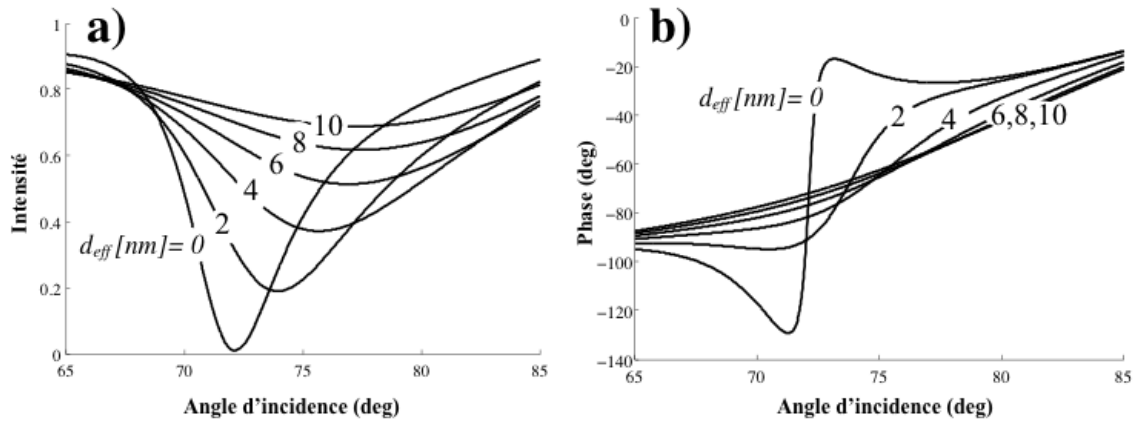


Figure 3.4 Profils angulaires (a) d'intensité et (b) de phase pour différentes rugosités

(Dispositif BK7|or|eau ; $\lambda=632,8$; $d_{moy}=50nm$)

En ajustant l'épaisseur moyenne de la couche métallique, on peut toutefois retrouver l'annulation du minimum de réflectivité accompagnée du saut de phase de 180 degrés. Ceci nous amène à caractériser l'influence de la rugosité sur le système dans une configuration "optimale". Pour ce faire l'évolution de d_{opt} en fonction de d_{eff} a été simulée (Figure 3.5). On observe une diminution de l'épaisseur optimale de couplage avec l'augmentation de la rugosité de surface.

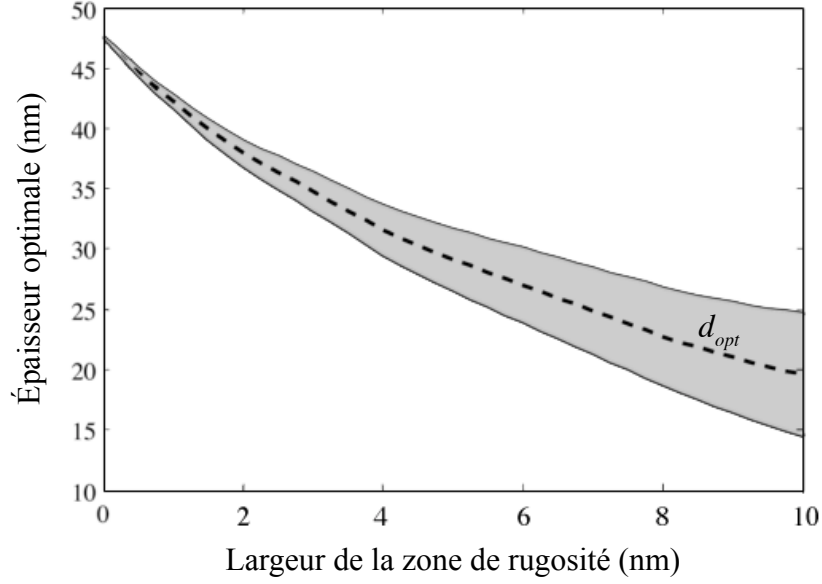


Figure 3.5 Évolution de l'épaisseur optimale en fonction de la rugosité de la surface

Dispositif BK7|or|eau ; $\lambda=632,8 \text{ nm}$

Ce comportement est prévisible à partir de l'approximation lorentzienne de Kretschmann (chapitre 2 section 2.3). En effet, en ajoutant le terme de rugosité au vecteur d'onde plasmonique, l'optimalité du couplage nécessite :

$$\text{Im}(\delta k(d_{opt})) = \text{Im}(k_{PS}^0 + \Delta k_{rug}) \quad (3.6)$$

où $d \mapsto \text{Im}(\delta k(d))$ est une fonction décroissante (la perturbation due au prisme sur la propagation du plasmon diminue avec l'épaisseur de la couche métallique). On voit ainsi que pour conserver l'égalité (3.6) une augmentation de la rugosité (augmentation de $\text{Im}(\Delta k_{rug})$) s'accompagne d'une diminution de l'épaisseur d_{opt} .

Les profils angulaires d'intensité et de phase sont présentés (Figure 3.6) pour différentes valeurs de d_{eff} à l'épaisseur optimale correspondante :

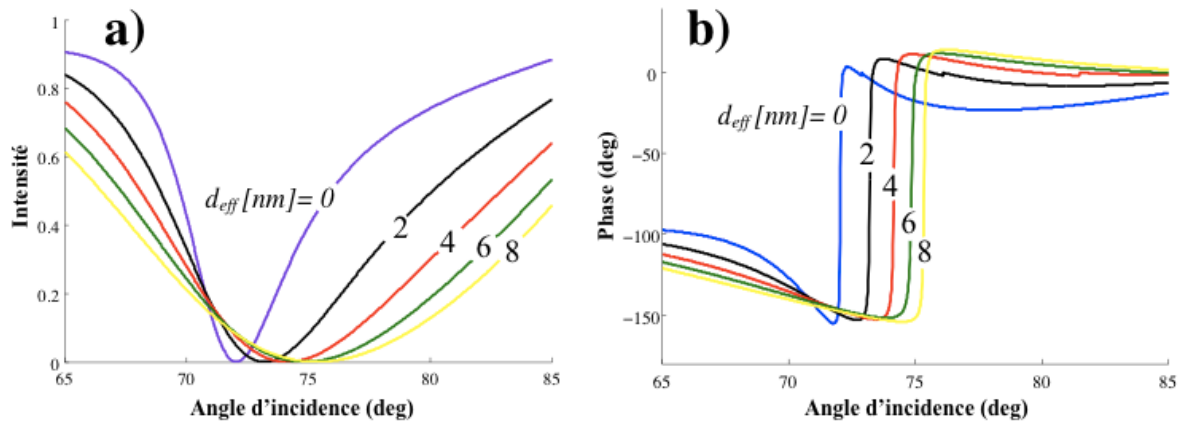


Figure 3.6 Profils angulaires (a) d'intensité et (b) de phase pour différentes rugosités, à l'épaisseur optimale correspondante.

(Dispositif BK7|or|eau ; $\lambda = 632,8$ nm)

La largeur du pic d'intensité reliée est fortement augmentée par la rugosité d'où l'importance de considérer Δk_{rug} lors d'une analyse du profil d'intensité. En revanche, au niveau du profil de phase on ne constate que la translation (sans déformation notable de la courbe) de l'angle θ_{opt} liée à la partie réelle de Δk_{rug} par la relation de couplage plasmonique. Ainsi, si on ajuste adéquatement le couple $(\theta_{\text{opt}}, d_{\text{opt}})$, on peut ne pas tenir compte de la rugosité dans l'analyse du profil angulaire de phase. Ce choix a été fait dans la section suivante. Il permet en outre de simplifier les calculs employés dans la modélisation de phase.

3.3 Analyse du profil angulaire de phase

Le cadre de modélisation à présent défini et la notion d'épaisseur optimale ayant été introduite, il est désormais possible de procéder à une analyse des propriétés du profil angulaire de phase.

Il existe deux possibilités pour effectuer le suivi des conditions de couplage plasmonique en fonction de l'indice de l'analyte, à longueur d'onde fixée :

- en mesurant la variation de la phase à angle fixé ;
- en mesurant l'évolution de l'angle de couplage.

Voyons à présent comment l'épaisseur de la couche métallique intervient dans ces deux types de suivis.

3.3.1 Suivi de la phase à angle d'incidence fixe

Il a été vu précédemment que la variation d'indice de réfraction se manifestait par une translation angulaire des profils d'intensité et de phase. Une manière de caractériser ce phénomène consiste à fixer l'angle d'incidence dans le voisinage de la résonance plasmonique et à observer l'évolution du signal détecté.

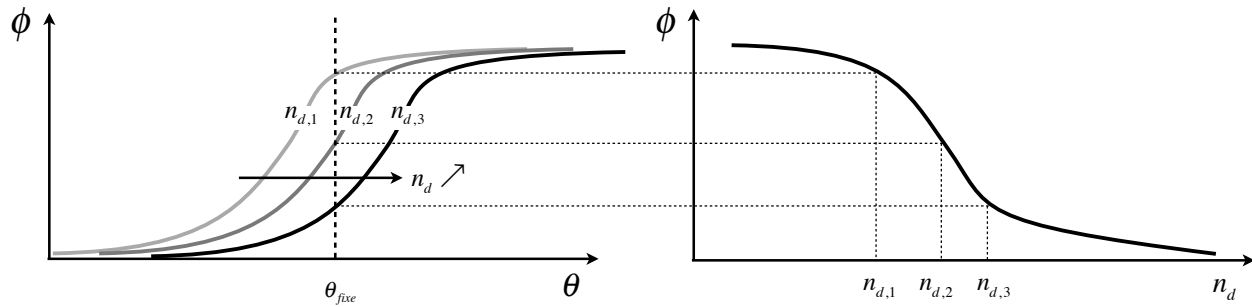


Figure 3.7 Illustration du principe de mesure de phase à angle d'incidence fixé.

Au déphasage angulaire est associé une variation de la phase par rapport à n_d

Cette méthode est principalement développée en détection de phase (voir Figure 3.7). Contrairement à l'intensité, la phase connaît en effet une variation particulièrement importante au voisinage de l'angle de résonance ; pour cette raison, dans la littérature, cette approche constitue la principale manière d'exploiter la détection de phase, on parle de sensibilité de phase [33-35].

À angle fixé, la phase est directement mesurée en fonction de l'indice de réfraction du diélectrique, on peut toutefois lier cette mesure à la représentation angulaire de la phase (Figure 3.7). Dans l'étude de cette méthode de détection, les grandeurs caractéristiques du déphasage plasmonique seront définies à partir de son profil angulaire (Figure 3.8 a).

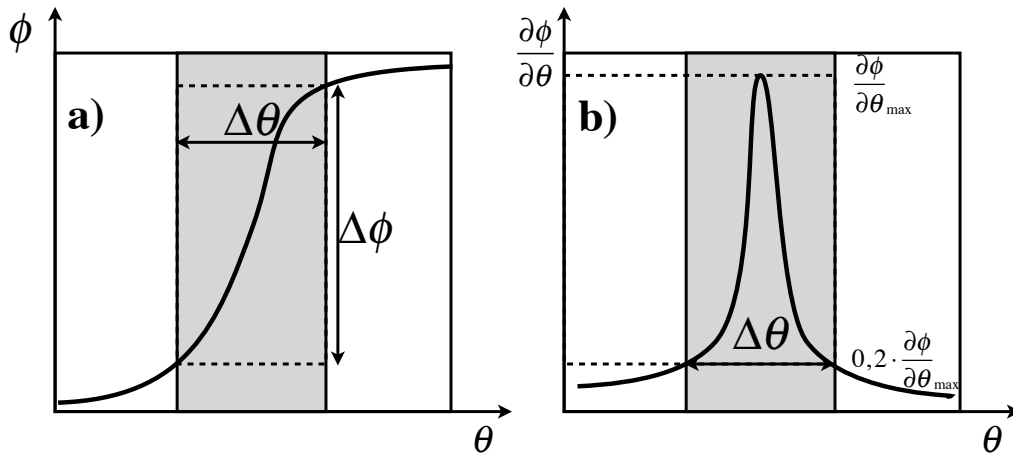


Figure 3.8 Zones de variation (gris) et de saturation (blanc) de phase (a), définies à partir de la pente de phase (b)

Sur la Figure 3.8 on peut distinguer deux régimes :

- **un régime dynamique** (zone grise) où a lieu la majeure partie de la variation de phase ;
- **un régime de saturation** (zones blanches) dans lequel la variation de la phase est très faible et non nécessairement imputable au couplage plasmonique.

Le critère retenu ici pour délimiter ces domaines, consiste à définir le régime dynamique comme la zone dans laquelle la variation angulaire de phase est supérieure à 20% de la variation angulaire maximale¹² (voir Figure 3.8 b). Les grandeurs caractéristiques de la zone dynamique sont alors l'amplitude du déphasage $\Delta\phi$ et la plage angulaire $\Delta\theta$ dans laquelle s'effectue ce déphasage.

La Figure 3.9 montre l'évolution de ces deux grandeurs en fonction de l'épaisseur de la couche d'or.

¹² Ce critère, s'il peut sembler arbitraire, permet dans la pratique de repérer confortablement les régimes dynamiques et linéaires.

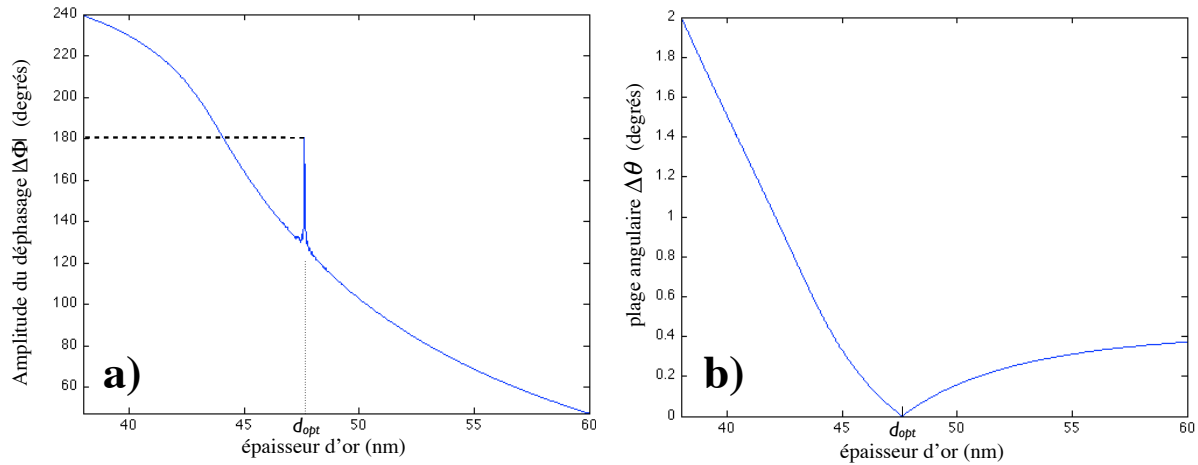


Figure 3.9 Évolution (a) de l'amplitude du déphasage $|\Delta\phi|$ et (b) de $\Delta\theta$ en fonction de l'épaisseur d'or
(Dispositif BK7|or|eau ; $\lambda=632.8\text{nm}$; $n_p=1,515$; $\epsilon_m=-11.717 + 1.272i$; $n_d=1,33$)

L'amplitude $|\Delta\phi|$ (Fig. 3.9a) diminue avec l'augmentation de l'épaisseur d'or. Ceci est relié à une diminution de l'excitation du plasmon de surface. Cependant, on constate un maximum local d'amplitude correspondant au saut de phase de 180 degrés à l'épaisseur d_{opt} . Dans la pratique, ce maximum d'amplitude n'est jamais observable (la largeur du pic étant bien inférieure niveau de bruit d'imprécision sur l'épaisseur de l'or ($>2\text{nm}$)). Le comportement général de $\Delta\phi$ montre que l'exploitation de l'amplitude du déphasage à des fins de détection est globalement améliorée dans la zone de déphasage décroissant ($d < d_{opt}$).

La plage angulaire $\Delta\theta$ (Fig. 3.9b) tend vers zéro lorsque l'épaisseur de la couche métallique se rapproche de d_{opt} , la zone dynamique (Figure 3.8) devient alors négligeable et la phase sature très rapidement.

Cette dernière situation se révèle intéressante pour la réalisation de capteurs logiques permettant de détecter si l'indice du diélectrique est supérieur ou inférieur à une valeur n_d^{ref} . La mesure de phase ne requiert alors pas une grande résolution étant donné l'amplitude du déphasage. La résolution au voisinage de n_d^{ref} est d'autant meilleure que la plage $\Delta\theta$ est réduite (Figure 3.10).

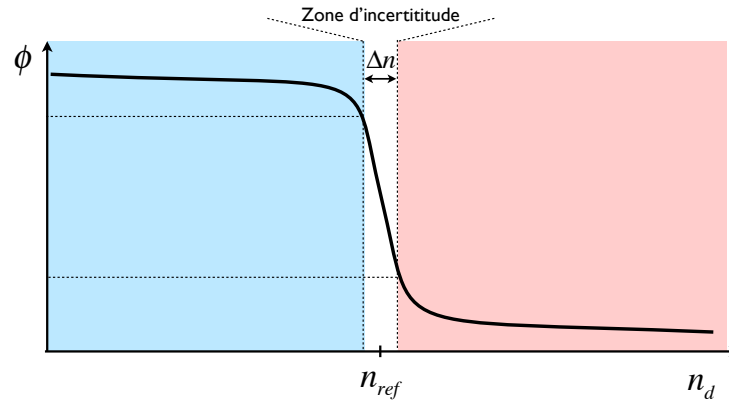


Figure 3.10 Principe de test logique d'indice de réfraction
La qualité du test s'accroît avec la pente de phase

La détection logique (vrai/faux) de n_d peut avoir de nombreuses applications dans le domaine biomédical où il est souvent question de dépister la simple présence d'agents chimiques ou biologiques sans besoin de quantifier leur concentration.

En biologie expérimentale ainsi que dans le domaine pharmaceutique, la majorité des problématiques demandent de pouvoir considérer de très légères variations d'indice, ceci conduit à une détection dynamique du couplage SPR (suivi de l'évolution de protéines sur des surfaces, culture cellulaire, mesure de concentration d'agents biologiques). Dans la pratique, il est important de travailler sur une plage d'indice où la sensibilité du détecteur reste constante, ceci exige que la réponse du capteur soit linéaire, soit en d'autres termes proportionnelle à la variation d'indice de réfraction. On définit ainsi la **plage dynamique linéaire** (PDL) comme étant le domaine d'indice de réfraction du diélectrique dans lequel on peut considérer la sensibilité uniforme.

En sensibilité de phase, la PDL (voir Figure 3.11) est liée à la plage angulaire $\Delta\theta_{\text{linéaire}}$ au sein de laquelle il est possible d'approximer la courbe de phase par sa tangente au point de pente maximale (voir Figure 3.11).

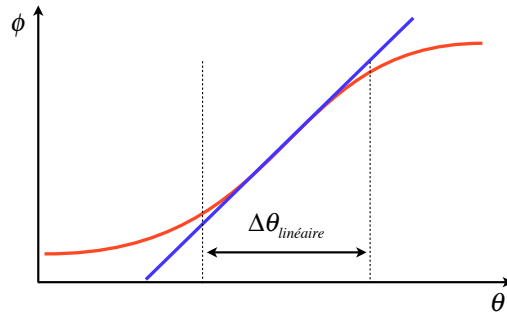


Figure 3.11 Approximation de la courbe de phase par sa tangente

Le critère retenu pour calculer $\Delta\theta_{linéaire}$ (et par conséquent $\Delta n_{linéaire}$) consiste à avoir une erreur entre le profil angulaire et sa tangente, inférieure au seuil de résolution en phase. Pour un ellipsomètre ce seuil est typiquement de 0,01 degré.

Dans ce régime linéaire on peut alors définir la sensibilité de phase S_ϕ par

$$S_\phi = \frac{\partial \phi}{\partial \theta} \frac{\partial \theta}{\partial n_d} = G_\phi S_\theta \quad (3.7)$$

Le facteur G_ϕ (introduit à la section 3.1.1 du présent chapitre) agit comme un gain de la sensibilité de phase par rapport à la sensibilité angulaire. La figure suivante présente la dépendance de S_ϕ ainsi que de la PDL à l'épaisseur de la couche métallique.

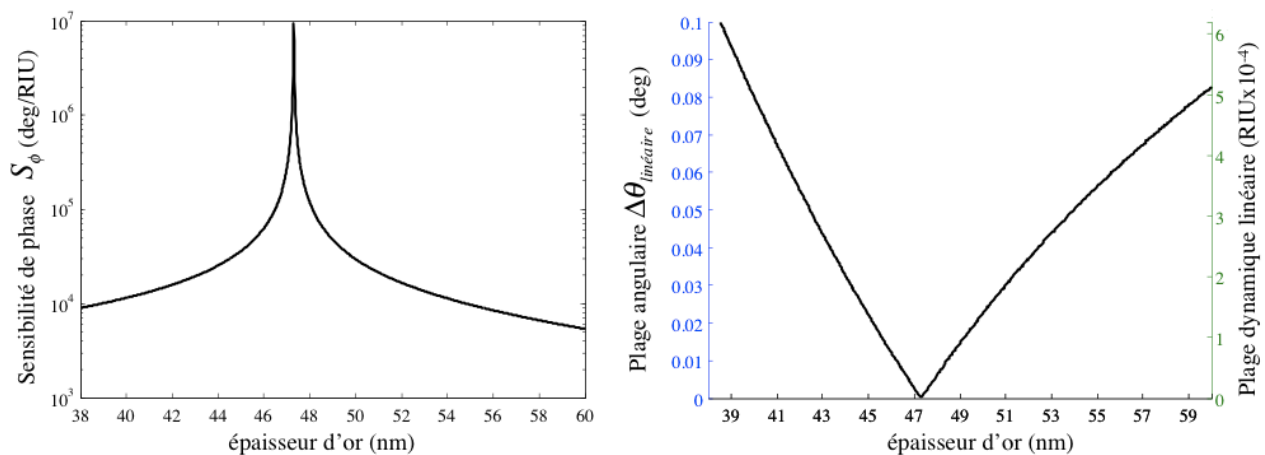


Figure 3.12 Évolutions théoriques de la sensibilité de phase (à gauche) et de la plage dynamique linéaire (à droite) en fonction de l'épaisseur d'or.

(Dispositif BK7|or|eau ; $\lambda=632.8\text{nm}$; $n_p=1,515$; $\epsilon_m=-11.717 + 1.272i$; $n_d=1,33$)

L'intérêt majeur du suivi de phase à angle d'incidence fixe réside dans le fait que la sensibilité de phase devient théoriquement infinie à l'épaisseur optimale (voir Figure 3.12). Il est toutefois important de noter un certain nombre de limitations accompagnant ce pic de sensibilité.

On peut voir, en effet, que ce mode de détection est associé à une PDL relativement réduite (inférieure à $5 \cdot 10^{-4}$ RIU). Dans un voisinage proche de d_{opt} , lorsque la sensibilité diverge, la PDL tend alors vers zéro. Dans la pratique, il est important de disposer d'une PDL la plus large possible lors d'une détection dynamique, les variations d'indices pouvant atteindre 10^{-2} RIU. Le choix de l'épaisseur d doit donc résulter d'un compromis entre une sensibilité la plus grande possible et une largeur de PDL pas trop petite.

3.3.2 Suivi de l'angle de couplage

Une autre manière de déterminer la variation d'indice du diélectrique consiste à suivre l'angle de couplage plasmonique. Ce procédé est très largement développé en détection d'intensité, l'angle de couplage étant repéré par le minimum d'intensité réfléchi.

Il a été vu précédemment qu'à cet angle noté θ_I , la variation de phase est maximale. En conséquence, le suivi peut être effectué à partir d'une détection de phase en procédant à un traitement analytique (ajustement de courbe) des résultats expérimentaux pour retrouver le point de pente maximale sur le profil angulaire.

Par ailleurs, au sein des plages d'indice considérées expérimentalement (de l'ordre de 10^{-2} RIU), la variation de θ_I en fonction de n_d reste linéaire. Le suivi angulaire ne pose donc aucun problème au niveau de la PDL.

Les limites de ce type de détection proviennent de la résolution avec laquelle est mesuré l'angle θ_I . Expérimentalement, cette résolution est limitée principalement par les performances des moteurs orientant le coupleur par rapport au laser ou par la largeur des pixels lorsqu'une technique de faisceau focalisé est utilisée. Cette dernière technique consiste à envoyer un faisceau focalisé sur la couche d'or, ce qui est équivalent à une mesure simultanée de plusieurs angles. Le signal est collecté par une caméra CCD ou CMOS. L'ordre de grandeur typique de résolution angulaire des moteurs sur les ellipsomètres standards est de 0,01 degré. Dans le cas des mesures angulaires directes (par caméra) il est de 0,001 degré.

La lecture de θ_I à partir de la pente de phase est par ailleurs limitée par la largeur de la plage angulaire linéaire $\Delta\theta_{linéaire}$ au sein de laquelle il n'est plus possible de détecter une variation de pente. Ce type de lecture est ainsi amélioré au voisinage proche de d_{opt} , à mesure que $\Delta\theta_{linéaire}$ tend vers zéro.

3.3.3 Discussions

Le tableau suivant récapitule le comportement des différents paramètres discutés précédemment en fonction de l'épaisseur de la couche métallique dans le cadre d'une détection de phase.

Tableau 3.1 Récapitulatif du comportement des principales grandeurs caractérisant la détection de phase en fonction de l'épaisseur de la couche métallique

	Phase (angle fixe) <i>Section 3.3.1</i>	Angle de couplage SPR <i>Section 3.3.2</i>
Sensibilité	- $10^4 \sim 10^5$ deg/RIU - théoriquement infinie à d_{opt}	- 160deg/RIU - dépend peu de l'épaisseur
PDL	- très réduite ($< 5 \cdot 10^{-4}$) - théoriquement nulle à d_{opt}	- régime toujours linéaire
Résolution théorique	- indépendante de l'épaisseur	- limitée par $\Delta\theta_{linéaire}$ - meilleure à d_{opt}
Seuil de détection (éllipsomètre)	~ 0.01 deg (phase)	- de 0.01 à 0.001deg (angle)

L'étude des deux types de suivi (phase et angle de couplage) montre que si l'épaisseur optimale permet d'améliorer en théorie les performances des capteurs (respectivement la sensibilité de phase et la résolution angulaire) elle est toutefois liée à certaines limitations : réduction de la plage dynamique et de l'intensité.

Pour terminer cette discussion il est nécessaire d'évoquer l'intensité du signal : ce dernier paramètre ne doit pas être négligé en détection de phase car si le signal reçu est trop faible, les différentes sources de bruits détectées expérimentalement augmentent l'incertitude sur une mesure de phase. En conséquence la qualité de toute mesure de phase se trouve fortement limitée à d_{opt} . Le fait que les conditions géométriques (ici d_{opt}) optimisant les performances du système soient liées à une forte diminution du signal constitue l'une des principales problématiques inhérentes à la détection de phase. Ceci nous incite à chercher de nouvelles applications de détection de phase permettant de contourner cette contrainte.

3.3.4 Zone de convergence des courbes de phase

Lorsqu'on trace les profils angulaires de phase de plusieurs épaisseurs métalliques, on peut remarquer la convergence des courbes au voisinage de θ_{opt} . Ce phénomène, également observé expérimentalement [36], soulève la question d'une quasi-disparition de la dépendance de la phase du signal en fonction de l'épaisseur d contrairement aux différentes grandeurs discutées jusqu'à présent.

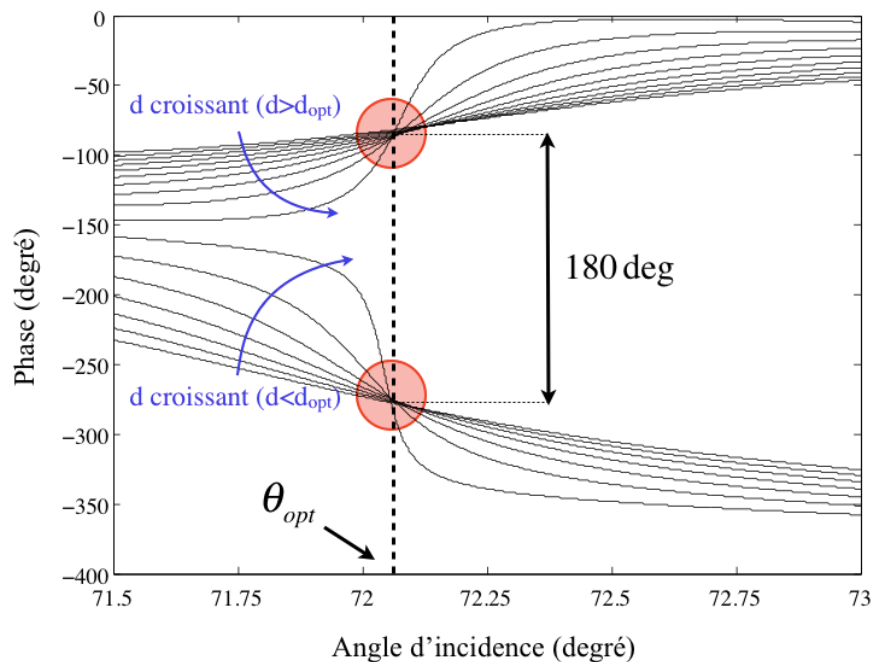


Figure 3.13 Zone de convergence des courbes angulaires de phase formée par les profils relatifs à des épaisseurs d'or allant de $d=40\text{nm}$ à $d=55\text{nm}$ par pas de 1nm

On distingue deux zones décalées en phase de 180 degrés suivant que le déphasage est croissant ou décroissant. Une analyse plus précise des profils de phase montre qu'il n'y a pas une convergence parfaite des courbes de phase mais bien une zone dans le voisinage de θ_{opt} dans laquelle la phase du signal dépend relativement peu de l'épaisseur de la couche métallique.

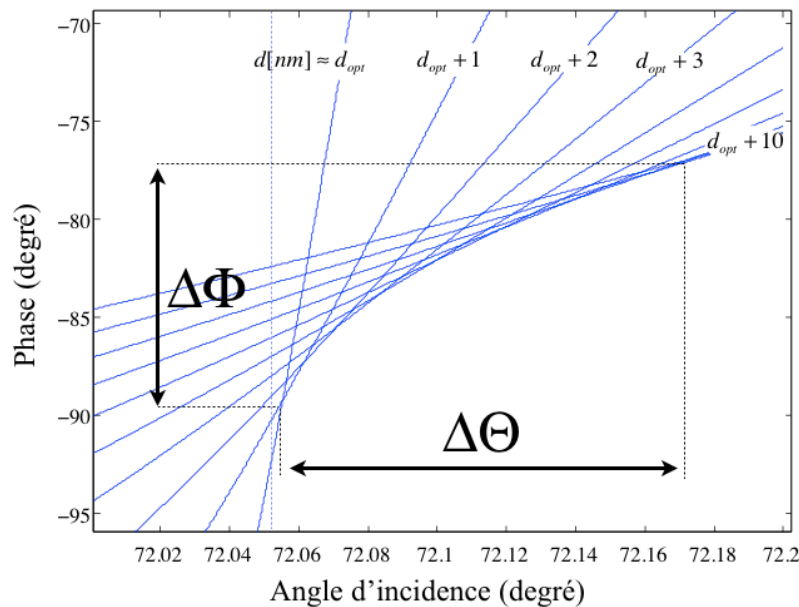


Figure 3.14 Zone de convergence des courbes de phase formée par les profils relatifs à des épaisseurs d'or allant de $d=d_{opt}$ à $d_{opt}+10nm$

(Dispositif BK7|or|eau ; $d_{opt}=47.8nm$; $\lambda=632.8nm$; $n_p=1,515$; $\epsilon_m=-11.717 + 1.272i$; $n_d=1,33$)

Graphiquement, si l'on considère une famille de courbes de phase subissant un déphasage croissant¹³ ($d > d_{opt}$), on peut caractériser la zone de convergence des courbes de phase (ZCCP) par son extension en phase $\Delta\Phi$ et angulaire $\Delta\Theta$ ¹⁴. Ces différents profils correspondent à des épaisseurs d'or comprises dans l'intervalle $I_{\Delta d} = [d_{opt} ; d_{opt} + \Delta d]$, ici $\Delta d = 10nm$.

À partir de la Figure 3.14 on déduit graphiquement la relation :

¹³ Le raisonnement sera exactement le même pour $d < d_{opt}$ à 180 degrés près

¹⁴ Pour éviter toute confusion avec les notations définies précédemment, on réservera l'emploi des majuscules Φ et Θ aux intervalles caractérisant les dimensions de la ZCCP

$$\Delta\Theta < \frac{\Delta\Phi}{G_{\phi}(d_{opt} + \Delta d)} \quad (3.8)$$

Où $G_{\phi}(d_{opt} + \Delta d)$ désigne la pente maximale de phase avec une couche métallique d'épaisseur $d_{opt} + \Delta d$. Il a été vu que cette pente était relativement importante ce qui conduit à un intervalle $\Delta\Theta$ relativement réduit (pour $\Delta d = 10nm$ on a $\Delta\Phi \approx 15deg$ et $\Delta\Theta \approx 0,1deg$). La qualité de la convergence des courbes de phase est ainsi liée à la possibilité de garder $\Delta\Phi$ (et par conséquent $\Delta\Theta$) relativement petit sur un intervalle $I_{\Delta d}$ assez large (typiquement de l'ordre de la dizaine de nanomètres).

La convergence des courbes de phase possède l'intérêt de permettre l'évaluation de propriétés relatives à l'épaisseur optimale (angle de couplage, phase correspondante) sans qu'il soit nécessaire de se placer à cette épaisseur pour réaliser la mesure (il suffit de comparer le signal obtenu avec deux épaisseurs de métal). Ceci permet ainsi d'éviter les inconvénients liés à d_{opt} (extinction du signal, plage angulaire réduite) discutés précédemment.

Un exemple d'application consiste à repérer cette convergence pour calibrer un système en sensibilité de phase. En effet, il est important de fixer rigoureusement l'angle θ_{opt} au sein de la zone dynamique, cette opération n'est pas facile dans le voisinage de d_{opt} en raison de l'étroitesse de cette zone. La convergence des courbes de phase peut alors être un moyen de retrouver θ_{opt} à partir d'un échantillon présentant différentes épaisseurs [36].

Dans le cadre d'un suivi angulaire des conditions de couplage plasmonique, il peut être particulièrement intéressant de considérer cette convergence de phase pour retrouver l'angle de couplage plasmonique. Cette application sera développée dans la section suivante dans laquelle une étude plus approfondie de la ZCCP sera menée.

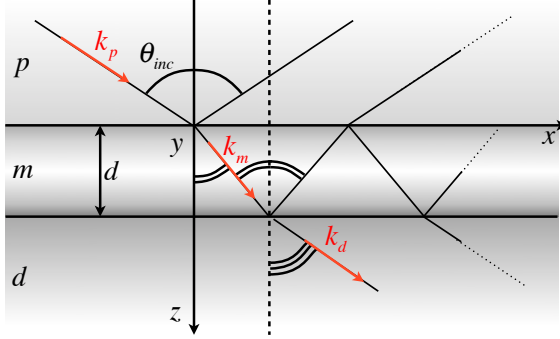
3.4 Application : la convergence des courbes de phase

Cette section a pour but à montrer l'intérêt de considérer le phénomène de convergence de phase dans le cadre du suivi de l'angle de couplage. À partir d'une description s'appuyant sur la modélisation de Fresnel, une approche permettant de comprendre les mécanismes à l'origine de cette convergence est développée. Puis, nous cherchons à quantifier cette convergence dans le but

de l'optimiser en jouant sur les différents paramètres à notre disposition. Enfin, la mise en place et les performances d'un dispositif permettant d'observer ce phénomène sont discutées.

3.4.1 Interprétations

Considérons la modélisation de Fresnel introduite précédemment pour déterminer le coefficient de réflexion global r_{pmd} .



$$r_{pmd} = \frac{r_a}{r_b} = \frac{r_{pm} + r_{md} \exp(2ik_{mz}d)}{1 + r_{pm}r_{md} \exp(2ik_{mz}d)}$$

$$\phi = \arg(r_{pmd})$$

Figure 3.15 Modélisation de Fresnel

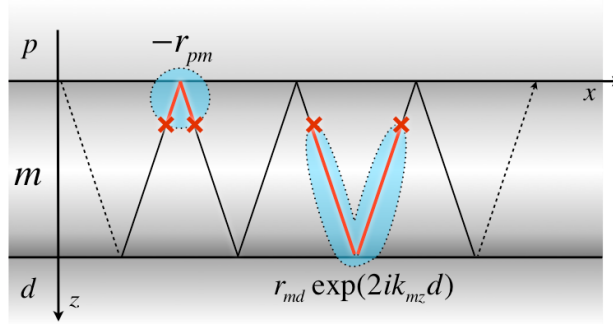
D'un point de vue formel on peut décomposer la phase ϕ comme suit :

$$\phi = \phi_a - \phi_b = \arg(r_{pm} + r_{md} \exp(2ik_{mz}d)) - \arg(1 + r_{pm}r_{md} \exp(2ik_{mz}d)) \quad (3.9)$$

où ϕ_a et ϕ_b sont respectivement les arguments du numérateur r_a et du dénominateur r_b dans l'expression de r_{pmd} ; on rappelle que $k_{mz} = k'_{mz} + ik''_{mz}$.

Il est possible d'associer à ces deux termes une interprétation physique.

- **Le numérateur** correspond à la différence des gains complexes reçu par l'onde après réflexion sur l'interface $m|p$ et $m|d$ (en tenant compte du chemin optique de l'aller-retour (Figure 3.16)). Lorsque ces gains sont égaux, les rayons réfléchis dans le prisme interfèrent destructivement. La lumière est « piégée » et absorbée dans la couche métallique et cela se traduit par l'annulation de la réflectivité du système.



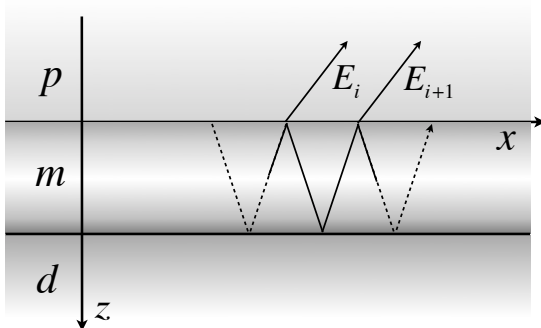
$$r_a = r_{pm} + r_{md} \exp(2ik_{mz}d)$$

$$\phi_a = \arg(r_a)$$

$$r_{mp} = -r_{pm}$$

Figure 3.16 Interprétation du rôle du numérateur r_a

- **Le dénominateur** rend davantage compte d'une comparaison des réflexions successives dans le métal. Ainsi, si on considère deux faisceaux transmis dans le prisme après i et $i+1$ réflexions (Figure 3.17) la variation relative d'amplitude complexe des champs vaut $1 + r_{pm} r_{md} \exp(2ik_{mz}d)$.



$$r_b = \frac{E_i - E_{i+1}}{E_i} = 1 + r_{pm} r_{md} \exp(2ik_{mz}d)$$

$$\phi_b = \arg(r_b)$$

Figure 3.17 Interprétation du rôle du dénominateur r_b

Lors de son parcours dans le métal la phase de l'onde lumineuse est affectée en raison :

- des réflexions aux interfaces (déphasage contenu dans les coefficients r_{pm} et r_{md}) ;
- du caractère propagatif de l'onde, la phase accumulée au cours d'un aller-retour de l'onde vaut alors $\delta\phi_{AR} = 2k'_{mz}d$.

Dans les sections suivantes nous allons voir sous quelles conditions on peut minimiser la dépendance de chaque terme ϕ_a et ϕ_b à l'épaisseur d .

3.4.2 Approche simplifiée

On peut dans un premier temps négliger le terme $\delta\phi_{AR}$, ($\delta\phi_{AR} = 0$). Ce choix repose sur le fait que la partie imaginaire de la constante diélectrique du milieu métallique est très faible devant la partie réelle, au voisinage du couplage plasmonique, ceci engendre [37] : $k'_{mz} \ll k''_{mz}$.

Dans ces conditions k_{mz} peut être considéré comme indépendant de l'angle d'incidence.

En factorisant le numérateur par r_{md} , l'annulation de la réflectivité $r_a(\theta_{opt}, d_{opt}) = 0$ équivaut à :

$$\frac{r_{pm}(\theta_{opt})}{r_{md}(\theta_{opt})} = -\exp(-2k''_{mz} d_{opt}) \in \Re \quad (3.10)$$

Ceci implique la relation suivante :

$$\arg(r_{md}(\theta_{opt})) = \arg(r_{pm}(\theta_{opt})) - \pi \quad (3.11)$$

$$\text{car } \arg(-\exp(-2k''_{mz} d_{opt})) = -\pi$$

À l'angle θ_{opt} on a alors $\phi_a(d) = \pm \arg(r_{md}(\theta_{opt})) = Cste$, la dépendance à l'épaisseur disparaît totalement du terme ϕ_a .

La variation résiduelle de la phase du signal réfléchi $\Delta\Phi$ au sein d'une plage d'épaisseur Δd provient donc du terme ϕ_b .

On remarque que ce terme peut également devenir indépendant de d lorsque l'angle θ vérifie :

$$r_{pm}(\theta) \cdot r_{md}(\theta) \in \Re \quad (3.12)$$

Cette condition correspond au cas où les ondes E_i et E_{i+1} sont en phase. Notons θ_0 l'angle vérifiant cette égalité, on a alors la relation :

$$\arg(r_{md}(\theta_0)) = -\arg(r_{pm}(\theta_0)) \quad (3.13)$$

La Figure 3.18 représente les profils angulaires ϕ_a et ϕ_b pour différentes épaisseurs de métal.

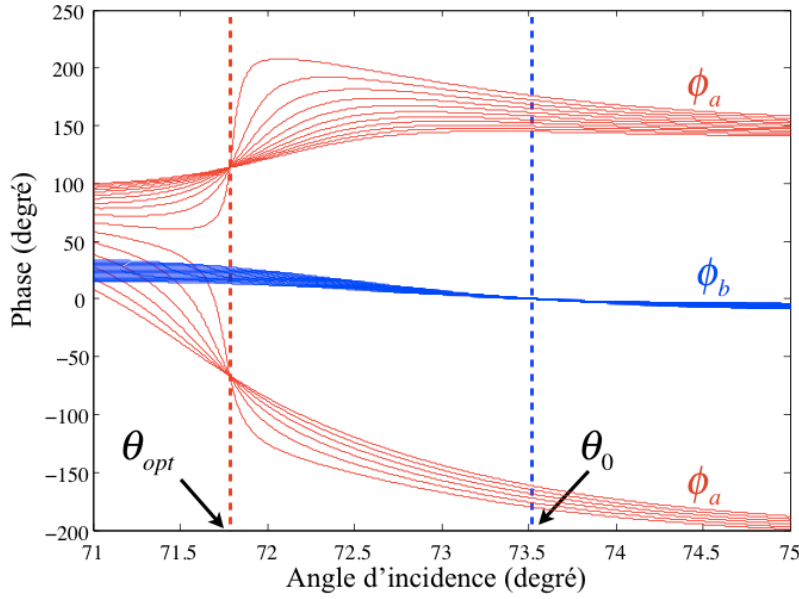


Figure 3.18 Profils de ϕ_a (rouge) et ϕ_b (bleu) en fonction de θ pour différentes épaisseurs d d'or

Le profil angulaire de ϕ_a (en rouge) est très similaire à celui de ϕ , on retrouve en particulier l'inversion du déphasage lié à l'annulation du numérateur. On remarque par ailleurs, la convergence des familles de courbes ϕ_a et ϕ_b aux angles θ_{opt} et θ_0 respectivement.

S'il n'existe, a priori, aucune relation liant θ_0 et θ_{opt} on remarque toutefois une certaine proximité entre ces deux angles (écart de 1,7 degrés avec un système BK7|or|eau à 632.8nm). Ce faible écart angulaire justifie pourquoi, à l'angle optimal, la phase reste peu dépendante de l'épaisseur (l'indépendance serait totale si on avait $\theta_{opt} = \theta_0$).

Pour expliquer cette proximité, revenons sur le comportement du coefficient r_{md} . Dans le voisinage de θ_{SPR} la fonction $\arg(r_{md}(\theta))$ prend un nombre important de valeurs rendant possible alors les relations (3.11) et (3.13) (voir Figure 3.19); les angles correspondant (θ_{opt} et θ_0 respectivement) sont pour cette raison relativement proches.

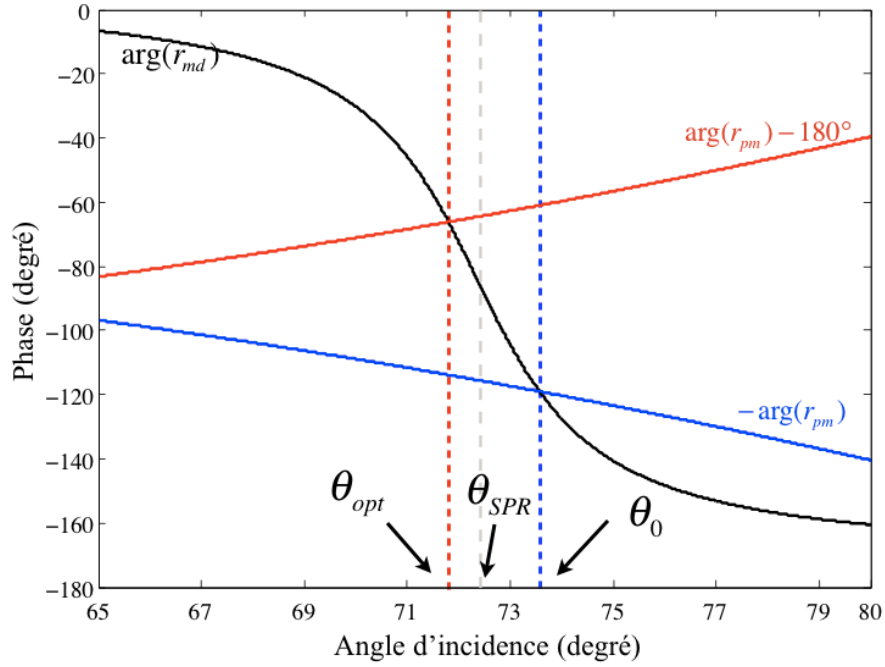


Figure 3.19 Importante variation du déphasage associé à r_{md} permettant les relations (3.11) et (3.13)

L'analyse de la Figure 3.19 permet de fournir une interprétation au décalage angulaire entre θ_i et θ_{SPR} évoqué au début de ce chapitre : le système plan modélisé admet un minimum de réflexion et un saut de phase sous la condition (3.11). Cette dernière condition est, à son tour, rendue possible, de manière indirecte, par l'importante variation de phase induite dans le voisinage du couplage plasmonique.

Les mécanismes à l'origine de la convergence de phase survenant à θ_{opt} ont été décrits en proposant une interprétation physique des composantes du coefficient de réflexion global. Il a toutefois été nécessaire de procéder à certaines approximations qui mènent à penser que cette convergence est liée aux propriétés optiques du métal considéré.

3.4.3 Prise en compte des pertes

Voyons à présent comment caractériser rigoureusement la dépendance de phase à l'épaisseur du milieu métallique à partir d'un développement analytique des termes ϕ_a et ϕ_b sans avoir à négliger le terme k'_{mz} .

Analyse du terme ϕ_a :

Sur la Figure 3.20 est représenté le comportement de ϕ_a en fonction de l'épaisseur de la couche métallique pour $\theta = \theta_{opt}$.

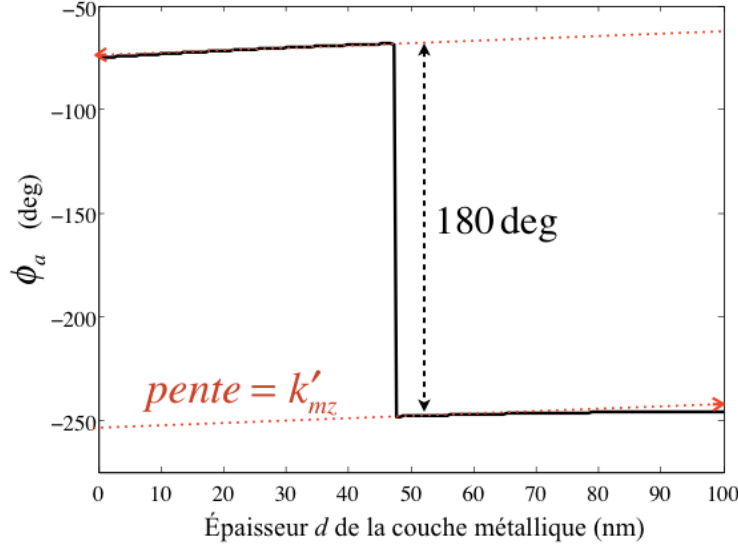


Figure 3.20 Variation de ϕ_a en fonction de l'épaisseur d à incidence θ_{opt}

Outre le saut de phase à d_{opt} on remarque une légère variation de ϕ_a en fonction de l'épaisseur contrairement à ce qu'on avait avec l'approximation précédente.

Un développement analytique d'ordre 2 de ϕ_a dans le voisinage de d_{opt} permet de quantifier cette faible dépendance :

$$\phi_a(\Delta d) = \tilde{H}(\Delta d) + k'_{mz} \cdot \Delta d - \frac{1}{3} k'_{mz} k''_{mz} \cdot (\Delta d)^2 \quad (3.14)$$

avec $\Delta d = d - d_{opt}$; $\tilde{H}(d) = Cte - Heaviside(d) \cdot 180$ et $Cte = \arg(r_{md}) + 2k'_m d_{opt} - \arctan\left(\frac{k'_m}{k''_m}\right)$

L'équation (3.14) permet de voir que la dépendance de ϕ_a avec l'épaisseur de la couche métallique est contenue dans le terme k'_{mz} , précédemment négligé. L'erreur faite reste négligeable pour $k'_{mz} \cdot \Delta d \ll 2\pi$, dans le cas étudié ceci est toujours vérifié au sein d'une plage Δd de l'ordre de 10nm (voir Figure 3.20).

Analyse du terme ϕ_b :

Pour ce même angle θ_{opt} , en se souvenant que $r_{md} \cdot r_{pm} \exp(2ik_{mz}d_{opt}) = -r_{pm}^2$, un développement analytique de r_b permet de déterminer la dépendance de l'argument du dénominateur ϕ_b à l'épaisseur, dans le voisinage de d_{opt} :

$$\frac{\partial \phi_b}{\partial d}(d_{opt}) = k'_{mz} - \frac{k'_{mz} \cdot \text{Re}(1 - r_{pm}^2) + k''_{mz} \cdot \text{Im}(1 - r_{pm}^2)}{|1 - r_{pm}^2|^2} \quad (3.15)$$

Lorsqu'on néglige k'_{mz} on retrouve bien la condition (3.12) à savoir :

$$\frac{\partial \phi_b}{\partial d}(d_{opt}) = 0 \Leftrightarrow \text{Im}(1 - r_{pm}^2) = 0 \Leftrightarrow r_{md}(\theta_{opt}) \cdot r_{pm}(\theta_{opt}) \in \Re \quad (3.16)$$

3.4.4 Optimisation de la convergence de phase

L'objectif est ici de minimiser $\Delta\Phi$ (et par conséquent $\Delta\Theta$ d'après l'inégalité (3.8)) de manière à pouvoir déterminer l'angle θ_{opt} avec la meilleure précision possible.

Les relations suivantes ont précédemment été établies ((3.14) et (3.15) respectivement) :

$$\begin{cases} \frac{\partial \phi_a}{\partial d}(d_{opt}) = k'_{mz} \\ \frac{\partial \phi_b}{\partial d}(d_{opt}) = k'_{mz} - \frac{k'_{mz} \cdot \text{Re}(1 - r_{pm}^2) + k''_{mz} \cdot \text{Im}(1 - r_{pm}^2)}{|1 - r_{pm}^2|^2} \end{cases} \quad (3.17)$$

En faisant la différence de ces deux égalités il vient :

$$\frac{\partial \phi}{\partial d}(d_{opt}) = \frac{k'_{mz} \cdot \text{Re}(1 - r_{pm}^2) + k''_{mz} \cdot \text{Im}(1 - r_{pm}^2)}{|1 - r_{pm}^2|^2} \quad (3.18)$$

Minimiser la taille de la ZCCP revient alors à résoudre l'équation

$$\frac{\partial \phi}{\partial d}(d_{opt}) = 0 \quad (3.19)$$

On montre en Annexe 2 que, après certaines simplifications, cette équation peut se réduire au système suivant :

$$\begin{cases} \sin^2(\theta_{opt}) = \frac{\epsilon'_m \epsilon_p + \epsilon_m'^2 + \epsilon_p \epsilon_m''}{\epsilon_p^2 + \epsilon_m'^2} \\ \sin^2(\theta_{opt}) \approx \sin^2(\theta_{SPR}) = \frac{\epsilon'_m \epsilon_d}{\epsilon_p (\epsilon'_m + \epsilon_d)} \end{cases} \quad (3.20)$$

Optimisation spectrale :

Le système obtenu présente l'avantage de ne faire intervenir que les fonctions diélectriques des différents milieux dont le comportement spectral est connu [13, 38]. Le seul paramètre restant étant la longueur d'onde peut procéder à une optimisation spectrale. Pour une configuration BK7|or|eau on trouve une solution au système (3.20) pour $\lambda_{or} = 712 \text{ nm}$ on a alors $d_{opt} = 52,4 \text{ nm}$.

Le tableau suivant présente les dimensions $\Delta\Phi$ et $\Delta\Theta$ pour différents intervalles d'épaisseurs.

Tableau 3.2 Dimensions optimales de la ZCCP pour différents intervalles d'épaisseurs

Configuration Bk7|Or|eau; $\lambda = 712 \text{ nm}$; $d_{opt} = 52,4 \text{ nm}$

Intervalles d'épaisseurs		$\Delta\Phi$ (deg)	$\Delta\Theta$ (deg)
$\Delta d = 5 \text{ nm}$	$[d_{opt}; d_{opt} + \Delta d]$	$4 \cdot 10^{-1}$	$5 \cdot 10^{-4}$
	$[d_{opt} - \Delta d; d_{opt}]$	$3 \cdot 10^{-1}$	$5 \cdot 10^{-4}$
$\Delta d = 10 \text{ nm}$	$[d_{opt}; d_{opt} + \Delta d]$	1,2	$4 \cdot 10^{-3}$
	$[d_{opt} - \Delta d; d_{opt}]$	$7 \cdot 10^{-1}$	$1,6 \cdot 10^{-3}$

Les résultats précédents montrent que la convergence des courbes de phase permet de repérer θ_{opt} avec une très bonne précision angulaire (inférieure ou égale au seuil de détection pour un suivi angulaire) à partir d'échantillons métalliques d'épaisseurs sensiblement différentes ($\pm 10 \text{ nm}$).

Optimisation des matériaux :

Le système (3.20) a également été résolu avec configuration BK7|argent|eau, la longueur d'onde permettant l'optimisation vaut alors $\lambda_{argent} = 623 \text{ nm}$ avec des résultats comparables à ceux présentés au Tableau 3.2

Plutôt que d'agir sur la longueur d'onde comme paramètre d'optimisation une solution peut résider dans le choix des matériaux utilisés. La longueur d'onde du laser He-Ne à laquelle on souhaite travailler est comprise entre λ_{argent} et λ_{or} d'où l'idée d'envisager un alliage or-argent permettant la résolution de (3.20) à 632.8nm. Les propriétés optiques de cet alliage sont déterminées à partir d'une combinaison linéaire des constantes diélectriques de l'or et de l'argent [39] :

$$\epsilon_{alliage} = x_{Au}\epsilon_{Au} + (1 - x_{Au})\epsilon_{Ag} \quad (3.21)$$

Où x_{Au} représente la fraction molaire d'or au sein de l'alliage.

Après calcul on trouve finalement qu'un alliage or-argent à 10% d'or permet d'obtenir une convergence maximale des courbes de phase pour une longueur d'onde de 633nm.

3.4.5 Application pratique

Intéressons-nous à présent à l'utilisation pratique de la convergence de phase dans le cadre d'une détection par suivi angulaire. Pour exploiter cette convergence, il suffit d'effectuer une mesure de phase simultanément à partir de deux épaisseurs d'or.

Une structure envisageable est une couche d'or avec un profil d'épaisseur en « forme de marche » (voir Figure 3.21). En procédant à un scan angulaire au moyen d'un faisceau convergent sur la zone de discontinuité du profil on peut réaliser une étude polarimétrique pour chaque épaisseur au moyen d'une caméra possédant deux rangées de pixels. L'angle θ_{opt} est alors déterminé à partir du point de convergence (PDC) des deux courbes de phases.

La Figure 3.21 schématise un dispositif permettant de réaliser une telle mesure.

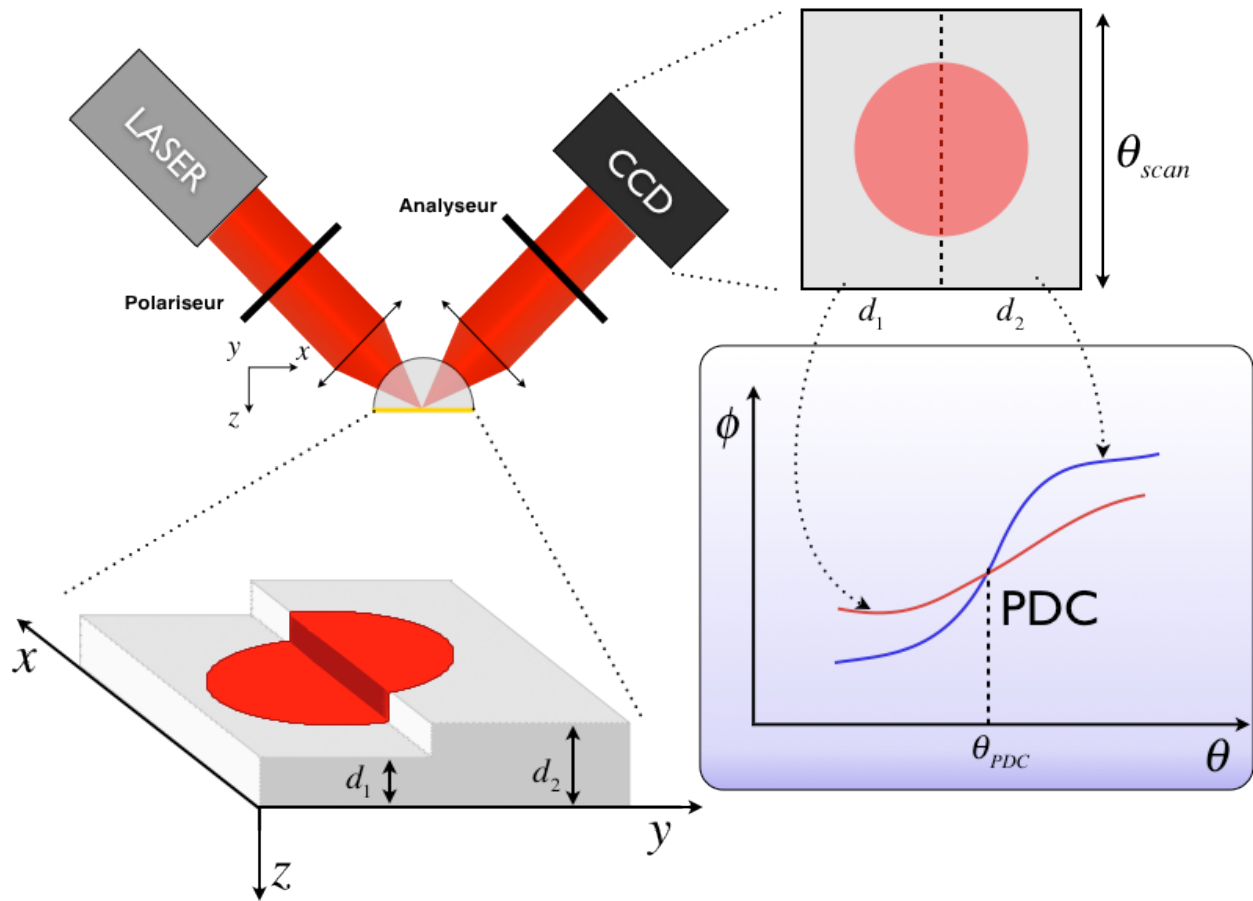


Figure 3.21 Schéma de principe d'une détection de point de convergence de phase

Plusieurs types de marches (valeurs de d_1 et d_2) sont envisageables, toutefois, par définition, la réponse reste peu dépendante de la structure choisie. Cette propriété est très intéressante dans une problématique de reproductibilité des résultats expérimentaux; la détection du PDC requiert peu de contraintes sur la géométrie de l'échantillon.

Performances :

On se propose en dernier lieu de comparer les performances d'un tel système avec une détection d'intensité SPR standard reposant sur un suivi angulaire.

- Sensibilité

La convergence de phase permettant de déterminer θ_{opt} , la sensibilité du PDC à une variation d'indice de réfraction du milieu diélectrique et la même que celle qu'on peut avoir lors du suivi de l'angle de couplage à l'épaisseur optimale.

- Résolution intrinsèque

La forme du profil (de phase ou d'intensité) mesuré détermine une résolution qu'on peut qualifier d'intrinsèque à la mesure. En détection d'intensité la largeur à mi-hauteur du pic d'absorption plasmonique caractérise la précision de la mesure. En détection de phase, c'est davantage $\Delta\theta_{linéaire}$ qui limite la résolution intrinsèque. La comparaison des réponses de phases relatives à deux épaisseurs permet de caractériser l'angle θ_I par un minimum, à l'instar de la détection d'intensité. Ce pic, (dont la largeur dépend alors de $\Delta\theta_{linéaire}$) présente l'avantage d'être plus étroit que le pic d'intensité et possède donc une meilleure résolution intrinsèque (voir Figure 3.22). Il a été vu en outre comment la rugosité de surface nuisait à la résolution en intensité (élargissement du pic), la mesure du PDC permet théoriquement de limiter ce type de bruit.

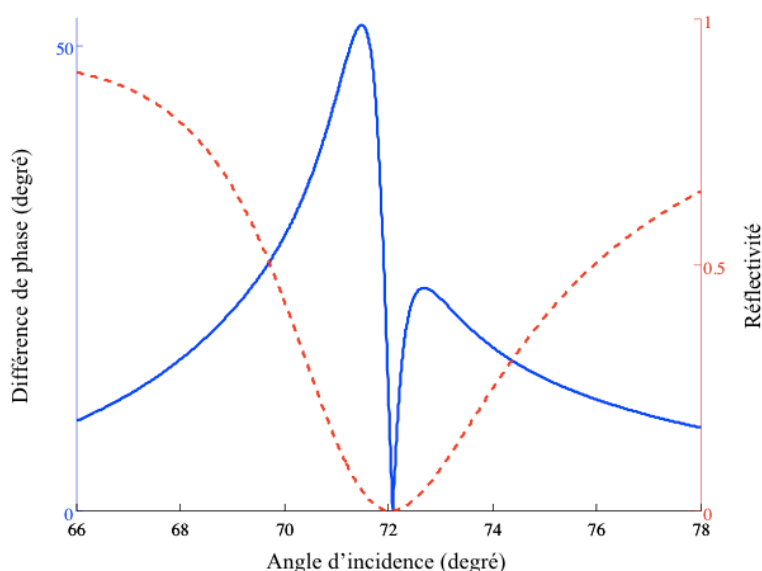


Figure 3.22 Comparaison de la largeur des pics relatifs à l'intensité (trait discontinu) et de la valeur absolue de la différence de phase pour deux épaisseurs d'or (trait plein)

- Invariance et reproductibilité de la mesure

L'angle θ_I mesuré à partir du minimum d'intensité ou du point de pente maximale de phase peut varier d'un échantillon à l'autre en fonction de l'épaisseur de la couche métallique. Cette variation peut être relativement importante comme l'illustre la Figure 3.23 :

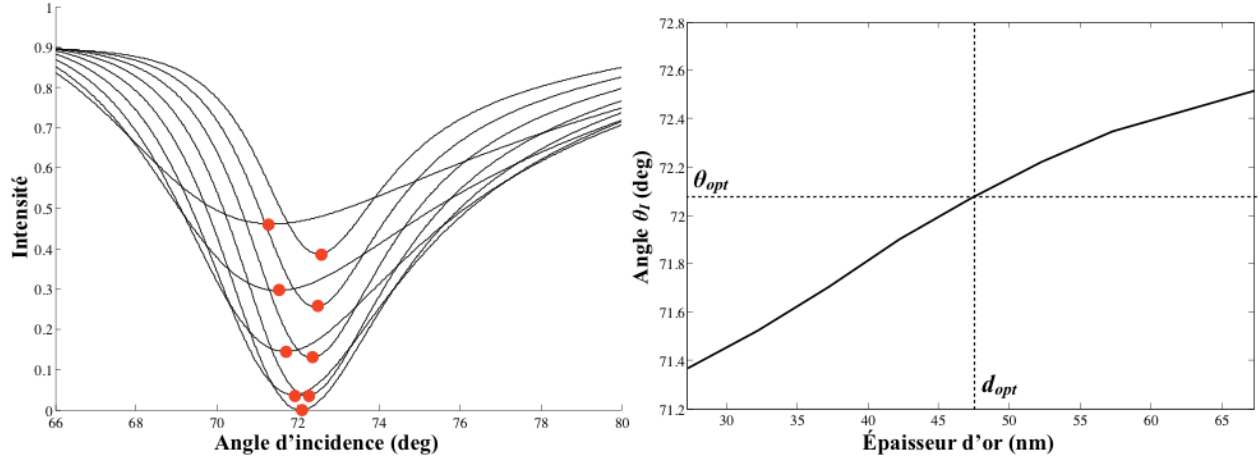


Figure 3.23 Réflectivité angulaire pour plusieurs épaisseurs d'or (figure de gauche $d \in [d_{opt} \pm 20nm]$) ; la dépendance angulaire des minima de réflexion (point rouges) à l'épaisseur d'or est représentée sur la figure de droite.

Configuration Bk7|Or|eau; $\lambda = 632,8nm$; $d_{opt} = 47.26nm$

L'objectif de la détection du point de convergence de phase est de mesurer θ_{opt} quelle que soit la géométrie de l'échantillon, on a $\theta_{PDC} = \theta_{opt}$ à $\Delta\Theta$ près.

Nous avons simulé la variation maximale sur la détection de l'angle déterminé par le PDC pour une « marche » de 10nm ($d_2 - d_1 = 5nm$) lorsque l'épaisseur moyenne $d_{moy} = \frac{d_2 + d_1}{2}$ appartient à l'intervalle $I_{\pm 10nm} = [d_{opt} - 10nm ; d_{opt} + 10nm]$. Le résultat est comparé (Figure 3.24) avec l'écart maximal des différentes valeurs de $\theta_I(d)$ pour d appartenant à $I_{\pm 10nm}$.

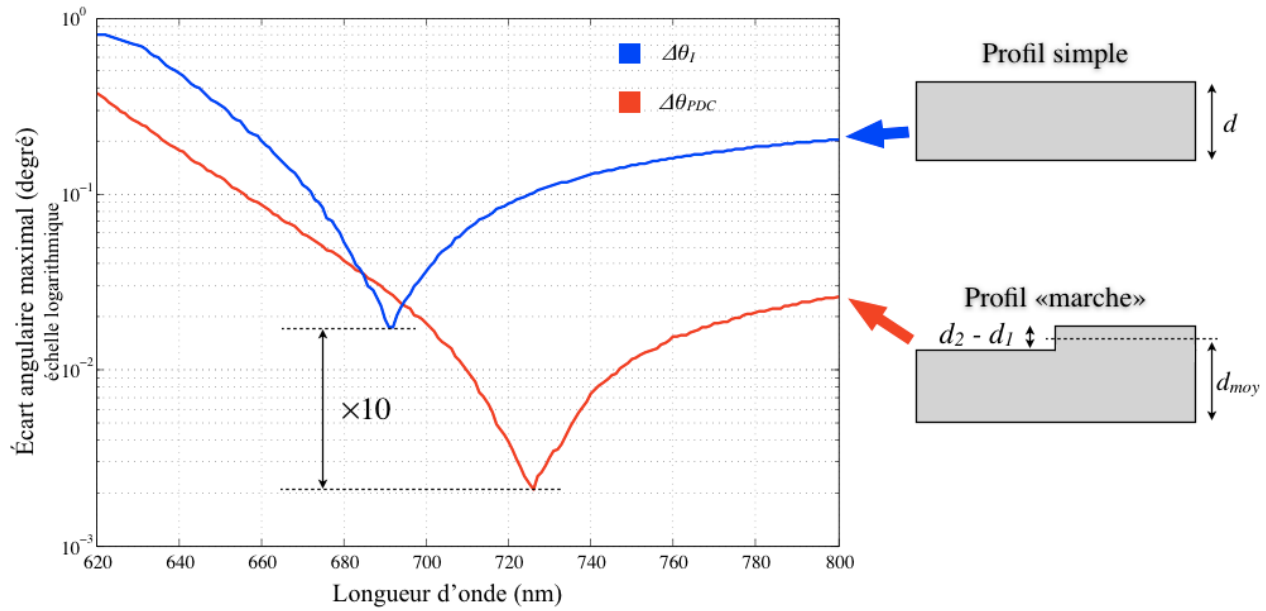


Figure 3.24 Simulations de l'écart angulaire maximal de θ_I et θ_{PDC} pour d (resp. d_{moy}) appartenant à $I_{\pm 10nm}$ en fonction de la longueur d'onde.

On distingue pour chaque type de mesure une longueur d'onde permettant de minimiser cette variation, toutefois, la mesure de θ_{PDC} est toujours moins dépendante de l'épaisseur du métal que celle de θ_I . Pour $\lambda=726$ nm on optimise la stabilité de θ_{PDC} avec une variation de 0,002 degré, ce résultat est 10 fois plus précis que le minimum de l'écart angulaire maximal de θ_I .

En conséquence, nous avons présenté l'intérêt d'un capteur mettant à profit la faible dépendance de la phase avec l'épaisseur lors du couplage plasmonique. L'exploitation de la convergence du profil de phase apparaît ainsi comme étant une voie intéressante de développement des capteurs à détection de phase. Elle permet d'améliorer leur résolution tout en assouplissant les contraintes sur l'épaisseur de la couche métallique moyennant toutefois des précautions d'élaboration du capteur (profil à deux épaisseurs, double détection (une pour chaque épaisseur)). Ce type de détection permet en outre de répondre au problème lié à l'extinction du signal puisqu'il n'est pas nécessaire de se placer à l'épaisseur optimale. L'analyse de la géométrie, a priori simple, d'un dispositif plan permet donc de proposer des solutions d'amélioration pour la détection.

Nous allons voir, dans les deux chapitres suivants, comment ces questions se posent pour des structures plus complexes à travers l'étude du couplage plasmonique par réseau.

CHAPITRE 4 MODELISATION DE STRUCTURES NANOPLASMONIQUES

Le développement des procédés de microfabrication a rendu possible la fabrication de structures mettant en jeu plusieurs paramètres géométriques allant de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres. L'utilisation de telles structures sous forme de réseaux périodiques permet l'excitation de plasmons de surface. Cependant, leur modélisation est plus complexe que dans le cas d'une couche métallique plane et requiert l'emploi de méthodes d'approximations numériques. Si plusieurs techniques permettent à ce jour de modéliser l'intensité diffractée par de telles structures, la réponse de phase est rarement considérée. À travers ce chapitre les problématiques de modélisation sont abordées à travers la présentation d'une méthode permettant de modéliser la phase.

4.1 Cadre de modélisation d'un réseau de diffraction

Dans cette section, sont introduits les paramètres de modélisation d'un réseau de diffraction unidimensionnel. Ceci permet de comprendre l'influence de la périodicité sur le champ électromagnétique. Voyons dans un premier temps une brève présentation des techniques existantes pour modéliser ce type de structures.

4.1.1 Bref aperçu des techniques de modélisation existantes

Différentes techniques ont été développées pour prédire le comportement des structures nanoplasmoniques.

Dans la littérature on retrouve fréquemment l'emploi de méthodes de différences finies dans le domaine temporel FDTD (*Finite Difference Time Domain*). Ces méthodes, qui nécessitent une discrétisation de l'espace, fournissent une solution globale mais ne permettent pas d'établir un lien entre la solution calculée et les paramètres employés.

Afin de simplifier les structures en jeu, les théories de milieux effectifs peuvent parfois être utilisées, avec l'avantage de requérir un très faible temps de calcul. Cette approche, abordée précédemment pour modéliser la rugosité des surfaces, n'est toutefois pas adaptée dans le cas des réseaux métalliques de période voisine de la longueur d'onde, or ces réseaux constituent l'objet de notre étude.

Plusieurs techniques numériques ont ainsi été développées pour permettre l'étude de ce type de structures comme les méthodes différentielles [40], intégrales [41] et la méthode des ondes couplées [42].

Elles dérivent d'un cadre formel qui exploite la périodicité de la structure. Notons toutefois que leur mise en œuvre est parfois complexe et peut requérir d'importants temps de calculs.

4.1.2 Géométrie du réseau

Il a été vu précédemment que le couplage plasmonique au moyen d'un réseau de diffraction requiert l'excitation d'ordres de diffraction évanescents. Cette excitation est favorisée par l'emploi de structures périodiques dont le pas est inférieur à la longueur d'onde considérée, ces réseaux sont dits « sub-lambda ».

D'un point de vue expérimental, les structures unidimensionnelles présentent l'intérêt d'une réponse fortement contrastée selon la polarisation de l'onde incidente. Cette propriété est particulièrement intéressante en détection de phase car elle permet d'améliorer la qualité de l'analyse polarimétrique. Dans la suite de ce travail, on considère un réseau à périodicité unidimensionnelle, le raisonnement peut toutefois être généralisé pour des structures bidimensionnelles.

Le cadre de modélisation employé consiste en une superposition selon l'axe z de trois domaines : Superstrat | Réseau | Substrat (Figure 4.1). Dans la suite des calculs, le superstrat et le substrat seront repérés par les indices I et II respectivement.

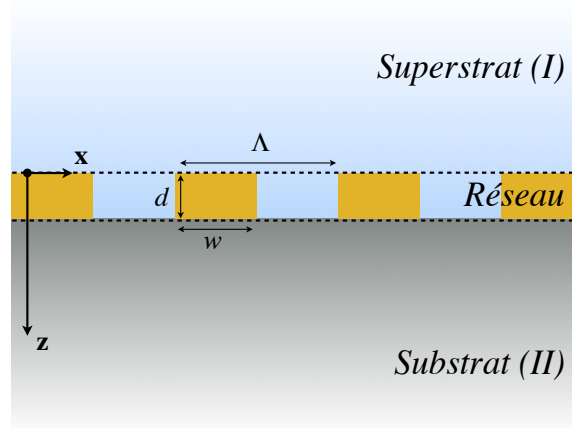


Figure 4.1 Configuration géométrique d'un réseau binaire.

On peut décrire les trois domaines comme suit :

Le superstrat désigne le milieu de propagation de l'onde incidente sur la structure (typiquement de l'air ou de l'eau).

Le substrat sert, quant à lui, de support au réseau (on emploie généralement du verre BK7 dans la gamme de fréquences optiques).

Substrat et superstrat sont considérés comme des milieux homogènes, isotropes, non magnétiques et d'absorbance nulle. On suppose en outre ces deux domaines comme semi infinis. L'analyse du signal SPR peut se faire tant dans le superstrat (réflexion) que dans le substrat (transmission).

Un réseau binaire constitue le domaine central : au sein de cette structure les propriétés optiques sont périodiques suivant l'axe Ox et invariantes suivant les autres directions. Dans cette étude, le réseau consiste en une alternance de bandes métalliques et diélectriques (même milieu que le superstrat). La géométrie du système est entièrement caractérisée par trois paramètres (Figure 4.1) : Λ le pas du réseau, d son épaisseur et f le rapport entre la largeur des bandes métalliques et diélectriques.

La fonction $\varepsilon(x, z)$ décrit les propriétés optiques de la structure, on a :

$$\varepsilon(x, z) = \begin{cases} \varepsilon_I & \text{si } z < 0 \\ \varepsilon_{res}(x) & \text{si } 0 \leq z \leq d \\ \varepsilon_{II} & \text{si } d < z \end{cases} \quad (4.1)$$

Avec ε_I et ε_{II} les constantes diélectriques du superstrat et du substrat et $\varepsilon_{res}(x)$ ¹⁵ une fonction Λ -périodique décrivant le réseau de diffraction.

4.1.3 Structure du champ électromagnétique

Désignons par Ξ le champ électrique ou magnétique selon que la polarisation est respectivement TE ou TM. Afin de traiter les structures périodiques en optique, il est utile de

¹⁵ par la suite simplement noté $\varepsilon(x)$

s'appuyer sur le formalisme employé en physique du solide pour décrire les réseaux cristallins. On retrouve ainsi le fait que la périodicité du réseau confère au champ une structure d'onde de Bloch vérifiant une relation de pseudo-périodicité du type $\Xi(x + \Lambda, z) = \Xi(x, z) \cdot \exp(i\beta\Lambda)$

On a ainsi :

$$\Xi(x, z) = \xi(x, z) \exp(i\beta x) \quad (4.2)$$

avec ξ , une fonction Λ -périodique selon x

À partir de la décomposition de Fourier de ξ on peut réécrire le champ Ξ sous la forme suivante, encore appelée série de Fourier généralisée :

$$\Xi(x, z) = \sum_p \xi_p(z) \exp(i\beta_p x) \quad (4.3)$$

avec $p \in \mathbb{Z}$, $\beta_p = \beta + \frac{2\pi p}{\Lambda}$ et $\xi_p(z)$ la $p^{\text{ième}}$ harmonique dans la décomposition de $x \mapsto \xi(x, z)$.

Ce résultat préliminaire est à l'origine des méthodes présentées précédemment pour modéliser le signal diffracté.

4.2 Principe et implémentation d'une méthode d'analyse d'ondes couplées

Nous avons développé un programme sous le logiciel MATLAB en s'inspirant d'une analyse rigoureuse des ondes couplées : la méthode RCWA (*Rigorous Coupled Wave Analysis*) développée par M.G. Moharam [43]. Ce code (voir source en Annexe 3), permet de modéliser la phase d'une onde (sous polarisation TE ou TM), diffractée en transmission et en réflexion par un réseau binaire unidimensionnel, dans le cadre d'une interrogation angulaire ou spectrale.

La méthode développée consiste à projeter la solution recherchée au problème de diffraction sur une base tronquée d'harmoniques spatiales. La mise en équation, pour chaque harmonique, à partir des relations de Maxwell, aboutit à un système de modes couplés. Après résolution, on obtient une série de modes propres qui converge vers la solution globale du système. Cette

section présente les grandes lignes menant à l'implémentation d'une telle méthode en polarisation TM.

4.2.1 Étape 1 : Onde dans les substrats et superstrats

En premier lieu on modélise les champs incident, réfléchi et transmis par une série d'ondes planes progressives ; ce développement est compatible avec la structure d'onde précédemment introduite.

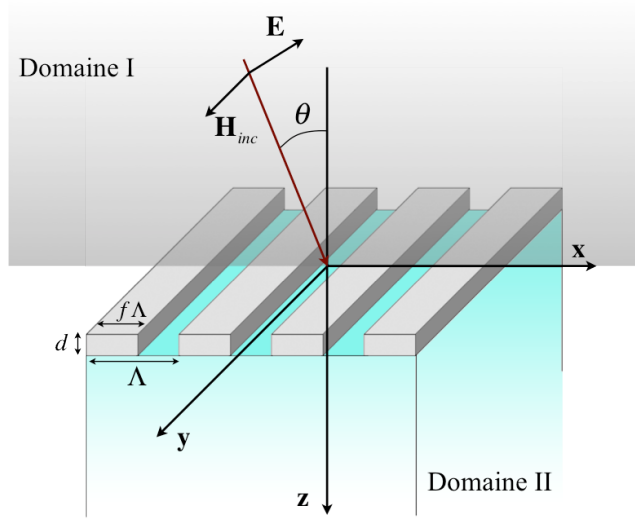


Figure 4.2 Représentation du champ incident sur le réseau en polarisation TM

Considérons une onde en polarisation TM et sous incidence θ dans le plan Oxz (voir Figure 4.2). L'expression du champ magnétique dans les domaines I et II (resp. H_I et H_{II}) est ainsi donnée par :

$$\begin{aligned}
 H_{inc,y} &= \exp[-ik_0 n_I (\sin \theta x + \cos \theta z)] \\
 H_{I,y} &= H_{inc,y} + \sum_p R_p \exp[-i(k_{xp} x - k_{I,zp} z)] \\
 H_{II,y} &= \sum_p T_p \exp[-i(k_{xp} x + k_{II,zp} (z - d))]
 \end{aligned} \tag{4.4}$$

R_p et T_p sont les amplitudes normalisées des champs-magnétiques des $p^{ièmes}$ ordres de diffraction respectivement réfléchis et transmis.

Les conditions de Floquet-Bloch donnent l'expression des composantes k_{xp} et $k_{m,zp}$ relatives au p^{ieme} ordre de diffraction dans les substrats et superstrats ($m=I,II$ suivant le domaine):

$$\begin{aligned} k_{xp} &= k_0 \left(n_I \sin \theta - p \frac{\lambda}{\Lambda} \right) \text{ avec } p \in \mathbb{Z} \\ k_{m,zp} &= k_0 \sqrt{\epsilon_m - \left(\frac{k_{xp}}{k_0} \right)^2} \text{ avec } \text{Im}(k_{m,zp}) < 0 \end{aligned} \quad (4.5)$$

avec $k_0 = 2\pi/\lambda$, le nombre d'onde dans le vide.

4.2.2 Étape 2 : Décomposition de Fourier du champ et du réseau

Au sein du réseau, la résolution des équations de Maxwell nécessite d'effectuer une décomposition de Fourier non seulement du champ mais aussi de la fonction diélectrique $\epsilon(x)$.

Pour un réseau carré le profil d'indice est décrit par une fonction créneau (Figure 4.3)

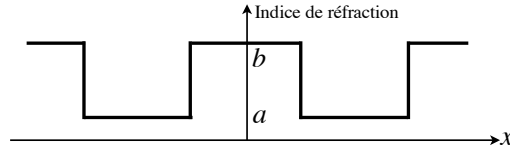


Figure 4.3 Profil de la partie réelle de l'indice du réseau

on a ainsi :

$$\epsilon(x) = \sum_{-N}^N \epsilon_p \exp\left(ip \frac{2\pi}{\Lambda} x\right) \quad (4.6)$$

$$\text{avec } \epsilon_p = \delta_{p,0} \epsilon_a + (\epsilon_a - \epsilon_b) \frac{\sin(\pi p f)}{\pi p}$$

L'entier $n=2N+1$ est le nombre d'harmoniques retenues dans la décomposition de Fourier. La figure suivante présente la convergence de la décomposition de Fourier selon la valeur de N

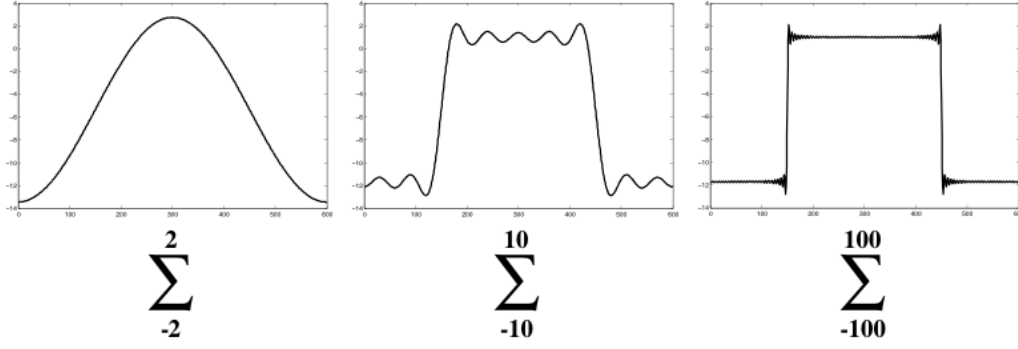


Figure 4.4 Sommes des $2N$ premiers termes de la série de Fourier décrivant le profil d'indice dans le réseau. Pour $N=2$; $N=10$; $N=100$

Au sein du réseau on procède également à un développement en série de Fourier généralisé des champs E et H suivant les harmoniques spatiales.

$$\begin{aligned}
 H_y &= \sum_p U_{yp}(z) \exp(-ik_{xp}x) \\
 E_x &= i \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \sum_p S_{xp}(z) \exp(-ik_{xp}x)
 \end{aligned} \tag{4.7}$$

U_{yp} et S_{yp} sont les amplitudes normalisées des $p^{\text{ièmes}}$ harmoniques spatiales des champs H_y et E_y respectivement.

À partir de ces deux développements (du champ et du réseau) il est possible de résoudre les équations de Maxwell dans le réseau :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial H_{gy}}{\partial z} &= -i\omega\epsilon_0\epsilon(x)E_{gx} \\
 \frac{\partial E_{gx}}{\partial z} &= -i\omega\mu_0 H_{gy} + \frac{\partial E_{gz}}{\partial x}
 \end{aligned} \tag{4.8}$$

L'injection des expressions (4.6) et (4.7) dans le système d'équations (4.8) conduit à établir une équation matricielle [44] (dite équation aux ondes couplées).

Ce système matriciel regroupe les relations de Maxwell pour chaque harmonique :

$$\left[\partial^2 \mathbf{U}_y / \partial \tilde{z}^2 \right] = \mathbf{M} \left[\mathbf{U}_y \right] \quad (4.9)$$

Où $\mathbf{M}$ est une matrice carrée de taille n et $\mathbf{U}_y = (U_{yp})$ et $\tilde{z} = k_0 z$.

4.2.3 Étape 3 : Résolution sous forme matricielle

La résolution de l'équation aux ondes couplées nécessite de diagonaliser la matrice $\mathbf{M}$. Notons $\mathbf{W}=(w_{p,m})$ la matrice de vecteur propre de $\mathbf{M}$ et $\mathbf{Q}=(q_m)$ les racines carrées des valeurs propres respectivement associées et enfin $\mathbf{V}=\mathbf{WQ}$.

Cette étape de diagonalisation peut être particulièrement coûteuse en temps de calcul si le nombre N (et donc $n=2N+1$) devient important.

Les harmoniques spatiales des champs tangentiels électriques et magnétiques sont des combinaisons linéaires des éléments propres de $\mathbf{M}$. Une résolution de l'équation différentielle du deuxième ordre (4.9) sur cette base permet d'exprimer ces harmoniques :

$$\begin{cases} U_{y,p}(z) = \sum_{m=1}^n w_{p,m} \left\{ c_m^+ \exp(-k_0 q_m z) + c_m^- \exp(k_0 q_m (z-d)) \right\} \\ S_{x,p}(z) = \sum_{m=1}^n v_{p,m} \left\{ -c_m^+ \exp(-k_0 q_m z) + c_m^- \exp(k_0 q_m (z-d)) \right\} \end{cases} \quad (4.10)$$

Il reste alors $2n$ inconnues (c_m^+ et c_m^-) à déterminer à partir des conditions aux frontières entre le réseau et les domaines I et II .

4.2.4 Étape 4 : Raccordement des solutions

La dernière étape consiste à raccorder les solutions déterminées dans les différents domaines. Pour cela, on dispose des conditions de continuité des champs tangentiels, électriques et magnétiques.

Ces conditions s'expriment sous forme matricielle :

- à l'interface superstrat | réseau (z=0)

$$\begin{bmatrix} I & I \\ i\left(\frac{\cos\theta}{n_I}\right)I & -iZ_I \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \delta_{p0} \\ R \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} W & WX \\ V & -VX \end{bmatrix} \begin{bmatrix} c^+ \\ c^- \end{bmatrix} \quad (4.11)$$

- à l'interface réseau | substrat (z=d)

$$\begin{bmatrix} I & I \\ iZ_{II} & -iZ_{II} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} WX & W \\ VX & -V \end{bmatrix} \begin{bmatrix} c^+ \\ c^- \end{bmatrix} \quad (4.12)$$

Notations :

X, Z_I et Z_{II} : matrices diagonales ayant pour éléments respectivement : $\exp(-k_0 q_m d), (k_{I,sp} / k_0 n_I^2)$ et $(k_{II,sp} / k_0 n_{II}^2)$

$\delta_{p,0}$: vecteur de Kronecker dont l'élément correspondant à l'ordre 0 est égal à l'unité

L'élimination des termes (c_m^+ et c_m^-) dans les formules (4.11) et (4.12) permet finalement d'exprimer les coefficients de réflexion et de transmission. Cette dernière étape nécessite une réorganisation des éléments matriciels afin de diminuer le temps de calcul et d'éviter de recourir à des inversions de matrices risquant de dégrader les solutions.

On obtient finalement pour chaque ordre p de diffraction les coefficients de réflexion et de transmission R_p et T_p .

À partir de ces coefficients sont déterminés :

- **le déphasage** acquis par l'onde diffractée à l'ordre p

$$\phi_{rp} = \arg(R_p) \quad \phi_{tp} = \arg(T_p) \quad (4.13)$$

- **l'efficacité de diffraction** à l'ordre p

$$DE_{rp} = |R_p|^2 \operatorname{Re}\left(\frac{k_{I,sp}}{k_0 n_I \cos\theta}\right) \quad DE_{tp} = |T_p|^2 \operatorname{Re}\left(\frac{k_{II,sp}}{k_0 n_I \cos\theta} \cdot \frac{n_I^2}{n_{II}^2}\right) \quad (4.14)$$

À partir de cette méthode il est donc possible de modéliser non seulement l'intensité du signal diffracté par le réseau (via l'efficacité de diffraction) mais également le déphasage associé.

4.3 Discussions

Avant d'analyser les résultats de modélisation, il est utile de discuter certains critères de performance de la méthode RCWA.

4.3.1 Vitesse de convergence

La seule approximation faite dans le modèle est de tronquer la série de Fourier décrivant les champs. La qualité de l'approximation réalisée est ainsi contrôlée par le nombre n d'harmoniques retenues pour le calcul. Les Figure 4.5 et 4.6 permettent de caractériser la vitesse de convergence des solutions pour les modes TE et TM. Les critères observés sont l'efficacité de diffraction du mode fondamental : DE_0 (en transmission et en réflexion) ainsi que le déphasage subi par ce même mode.

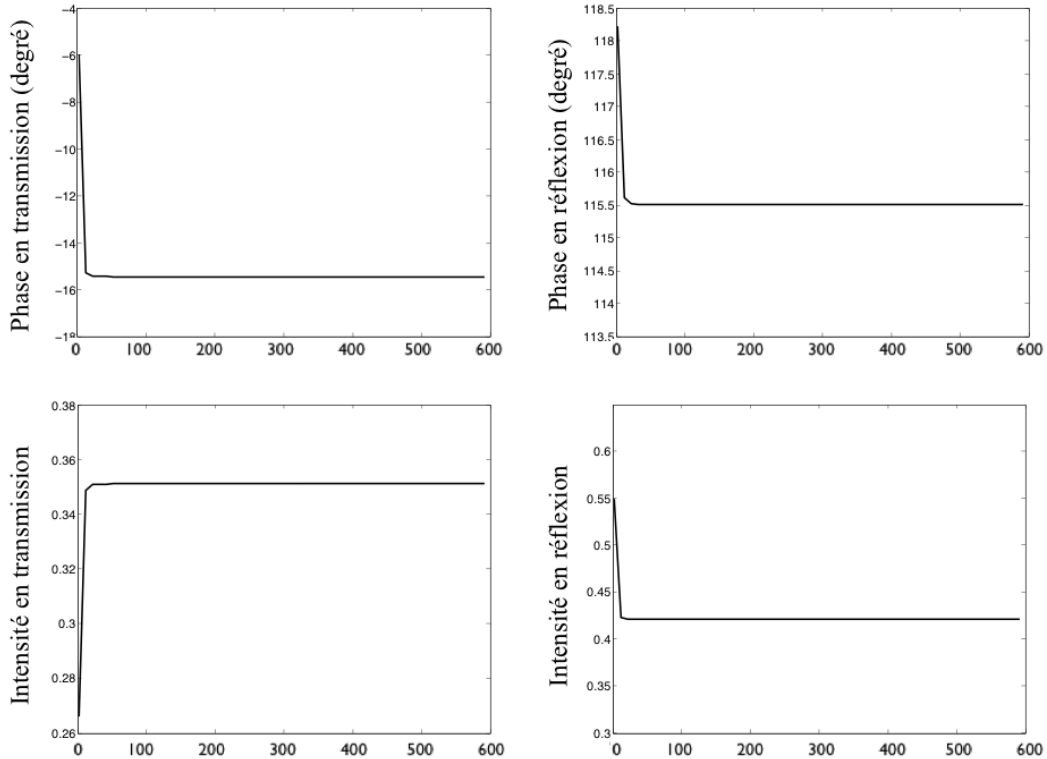


Figure 4.5 Modélisation du déphasage et de l'efficacité de diffraction de l'ordre fondamental (transmission et réflexion) en fonction du nombre d'harmoniques retenues dans la décomposition de Fourier. **Polarisation TE**

$\lambda=700\text{nm}$; $\theta=0\text{deg}$; $A=600\text{nm}$; $d=100\text{nm}$; $f=0,5$; superstrat :air ; réseau :Au|air ; substrat :BK7

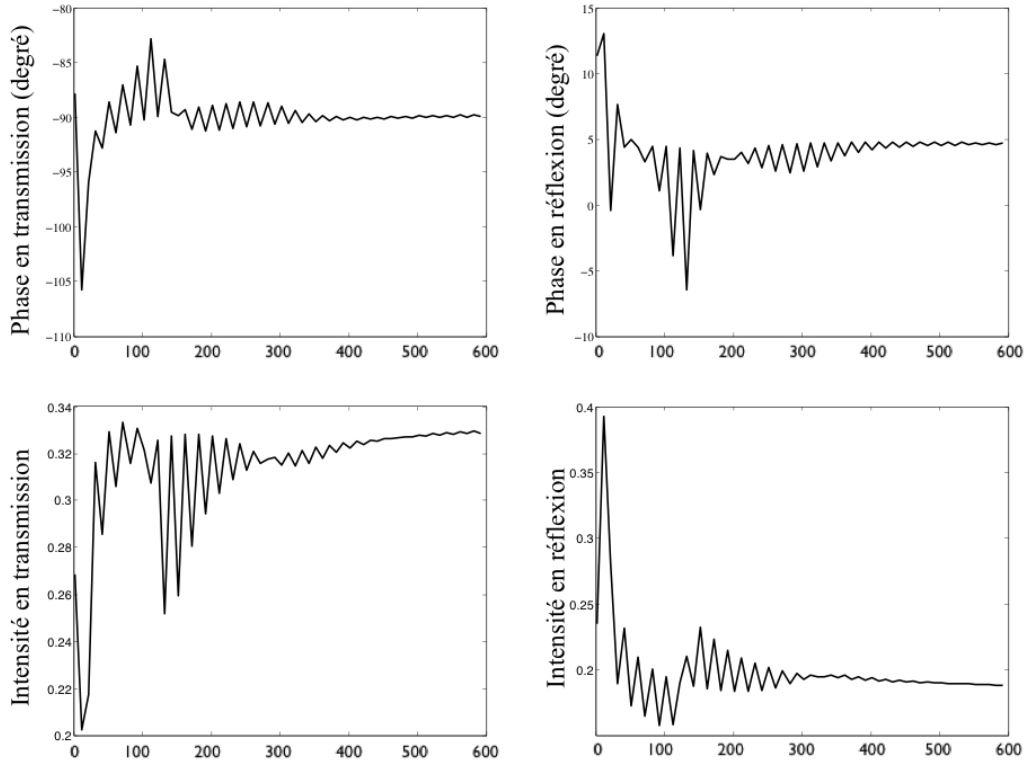


Figure 4.6 Modélisation du déphasage et de l'efficacité de diffraction de l'ordre fondamental (transmission et réflexion) en fonction du nombre d'harmoniques retenues dans la décomposition de Fourier. **Polarisation TM**

$\lambda=700\text{nm}$; $\theta=0\text{deg}$; $A=600\text{nm}$; $d=100\text{nm}$; $f=0,5$; superstrat : air ; réseau : Au|air ; substrat : BK7

Si la convergence des résultats est très rapide en polarisation TE (Figure 4.5), dans le cas de la polarisation TM (Figure 4.6), il est nécessaire de retenir un nombre important d'harmoniques pour que la réponse de phase et d'intensité converge correctement. À partir de $n=400$, les fluctuations des résultats en phase sont inférieures à 0,2 degrés ce qui est suffisamment petit devant l'ordre de grandeur typique du saut de phase plasmonique ($\sim 10^2$ degrés).

4.3.2 Temps de calcul

Le temps de calcul requis pour un appel de la méthode RCWA a été évalué en fonction de n , on remarque une augmentation de ce temps en n^3 (Figure 4.7). Ceci correspond au nombre d'opération nécessaires à la diagonalisation de la matrice $\mathbf{M}$ (typiquement en $O(n^3)$).

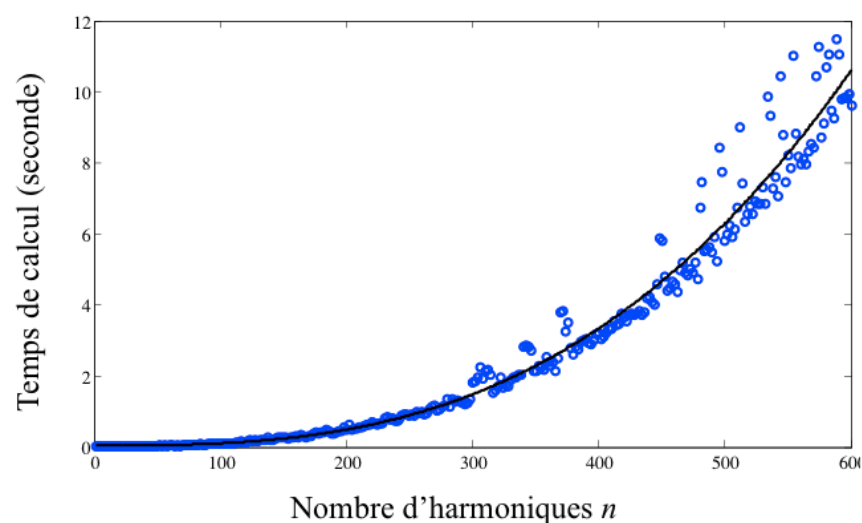


Figure 4.7 Évolution du temps de calcul d'un appel de la méthode RCWA en fonction de n .

Cette évolution est ajustée par une fonction de type $y=ax^b+c$ avec $b=2.87$ et $c=0$

En considérant la condition $n > 400$ nécessaire à une bonne convergence du signal modélisé, on dispose sur l'ordinateur utilisé au laboratoire¹⁶ d'un temps d'exécution d'environ 3 secondes, ce qui engendre un temps de calcul déraisonnable (supérieur à plusieurs mois) si l'on souhaite observer simultanément l'influence des divers paramètres géométriques sur la réponse du système.

Ceci conduit donc à procéder à une analyse découplée des paramètres géométriques. Une analyse combinée de ces paramètres sera toutefois proposée, au détriment du nombre d'harmoniques conservées, afin de pouvoir mener une discussion qualitative de la réponse du capteur.

¹⁶ 2 processeurs Intel Xeon quad core X5482 à 3.2GHz. 32 Go de RAM. (DDR2). Performances évaluées à 133 gigaFLOPS pour les 8 cœurs.

CHAPITRE 5 INFLUENCE DES PARAMETRES GEOMETRIQUES SUR LA PHASE TRANSMISE PAR UN RESEAU PERIODIQUE UNIDIMENSIONNEL

Ce chapitre est consacré à l'étude de la réponse de phase d'un réseau périodique unidimensionnel en transmission en fonction de ses paramètres géométriques. La méthode développée dans le chapitre précédent (méthode RCWA) est à l'origine de l'ensemble des simulations présentées ici. L'objectif de ce travail est d'établir des liens entre les paramètres géométriques et la réponse du système dans le but d'améliorer les performances de détection.

5.1 Dispositif considéré

5.1.1 Structure du montage

Le couplage par réseau de diffraction offre la possibilité d'exciter des plasmons à angle d'incidence nul : cette particularité est avantageuse dans une logique de miniaturisation car elle permet de réduire l'encombrement du système. Dans ce contexte, il est également profitable de rester à angle d'incidence fixe. Ces considérations justifient le choix de travailler à incidence normale, ce qui est d'ailleurs plus simple à mettre en œuvre expérimentalement. L'analyse du signal diffracté se fait suite à une détection de l'ordre fondamental transmis ou réfléchi par le réseau. Le dispositif modélisé dans cette étude a été réalisé expérimentalement au laboratoire LP2L par mon collègue doctorant, Mathieu Maisonneuve :

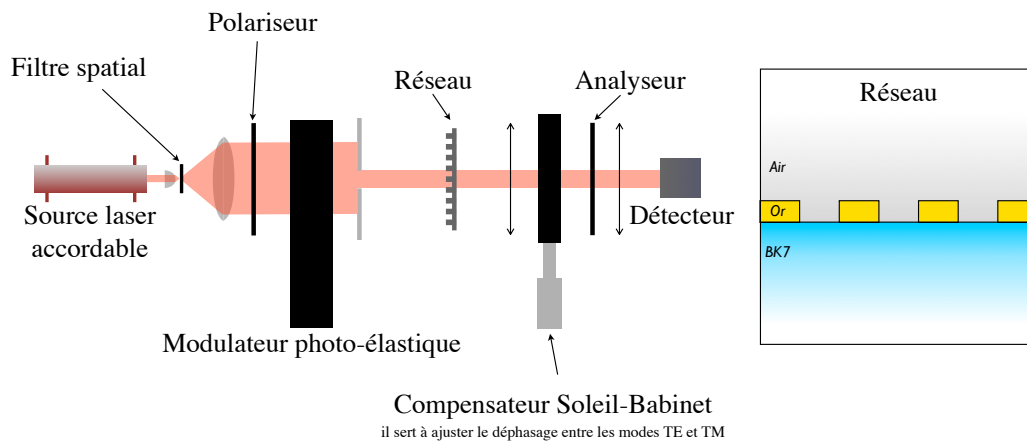


Figure 5.1 Schéma du dispositif expérimental permettant de mesurer le déphasage en transmission par un réseau de diffraction métallique

Le substrat est composé de verre BK7, le réseau métallique est constitué de lames d'or, la partie diélectrique et le superstrat forment un même milieu dont on souhaite détecter la variation d'indice de diffraction (typiquement de l'air ou de l'eau¹⁷). Le réseau considéré est périodique selon Ox et présente une invariance selon Oy . Dans ces conditions, les rayons diffractés par le réseau appartiennent au plan Oxz . Il a été vu précédemment que le mode plasmon de surface était un mode transverse magnétique, cette étude porte donc dans ce qui suit sur les rayons p -polarisés (susceptibles d'exciter ce mode). Dans la pratique, le déphasage induit par le système est analysé en transmission au moyen d'un dispositif polarimétrique, la grandeur considérée est alors la différence de phase entre les polarisations s et p .

5.1.2 Modélisation de la réponse

Une comparaison des profils spectraux expérimentaux et théoriques est présentée (Figure 5.2) en phase et en intensité ($\Lambda=720\text{nm}$) :

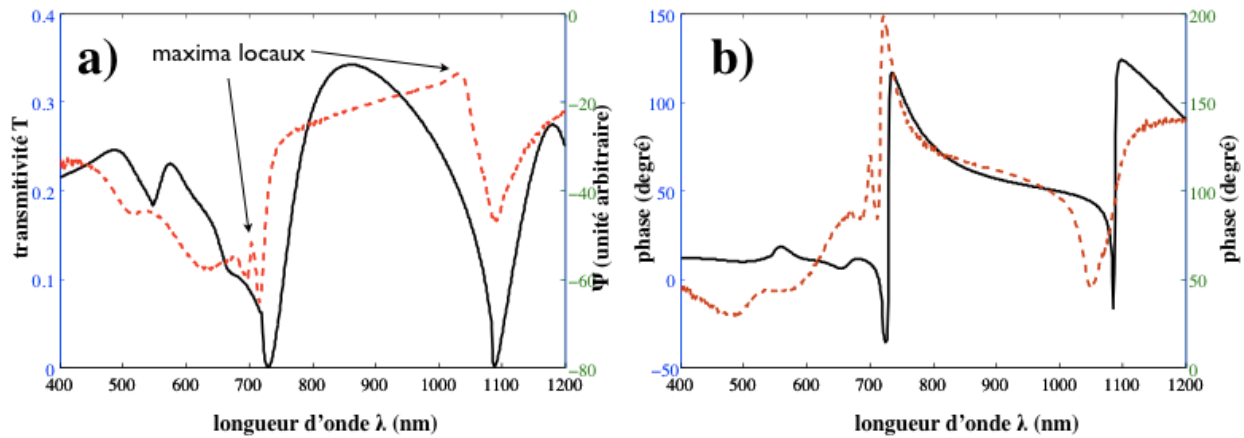


Figure 5.2 Profil spectral (a) de la transmittivité et (b) de la phase

Courbes tracées à partir de la théorie d'une modélisation RCWA (trait continu) et des relevés expérimentaux (trait discontinu), ($\theta_{inc}=0^\circ$; $n_s=n_{BK7}(\lambda)$; $\epsilon_m=\epsilon_{Au}(\lambda)$; $d=100\text{nm}$; $\Lambda=720\text{nm}$; $w=360\text{nm}$; $n_d=n_{air}(\lambda)$)

L'excitation des modes PS aux interfaces m|d et m|s se caractérise en transmission par un minimum d'intensité et une importante variation de la phase. On peut voir sur la figure précédente ce phénomène pour les longueurs d'ondes d'excitation de chaque mode PS. On

¹⁷ Expérimentalement les tests ont été fait avec de l'air, l'eau à également été considérée pour la modélisation.

constate également deux maximums qui n'apparaissent pas dans la simulation RCWA, ces discontinuités sont liées à l'émergence d'ordres diffractés par le réseau. Ces deux phénomènes feront l'objet d'une étude plus détaillée dans la section suivante.

Les différences observées entre les profils théoriques et expérimentaux peuvent provenir :

- de la troncature de la série de Fourier utilisée au sein du modèle RCWA ;
- des valeurs employées servant à décrire les propriétés optiques des différents milieux ;
- des nombreuses irrégularités du profil réel comparé au réseau carré « parfait » considéré dans nos calculs.

On retiendra en particulier que le procédé de fabrication du réseau métallique qui est utilisé au laboratoire consiste à creuser des nano-fentes dans une couche mince d'or à partir d'un faisceau d'ions focalisés (FIB : *Focused Ion Beam*). Dans la pratique, les lames d'or ainsi fabriquées présentent un profil légèrement arrondi qui diffère du modèle considéré.

Par analogie avec les coupleurs plans nous avons simulé la réponse du capteur pour une variation de l'indice de l'analyte à présent supposé en milieu aqueux. Les profils spectraux de la phase et de l'intensité transmise en incidence normale sont ainsi présentés sur la Figure 5.3 pour plusieurs valeurs d'indice de réfraction du milieu diélectrique.

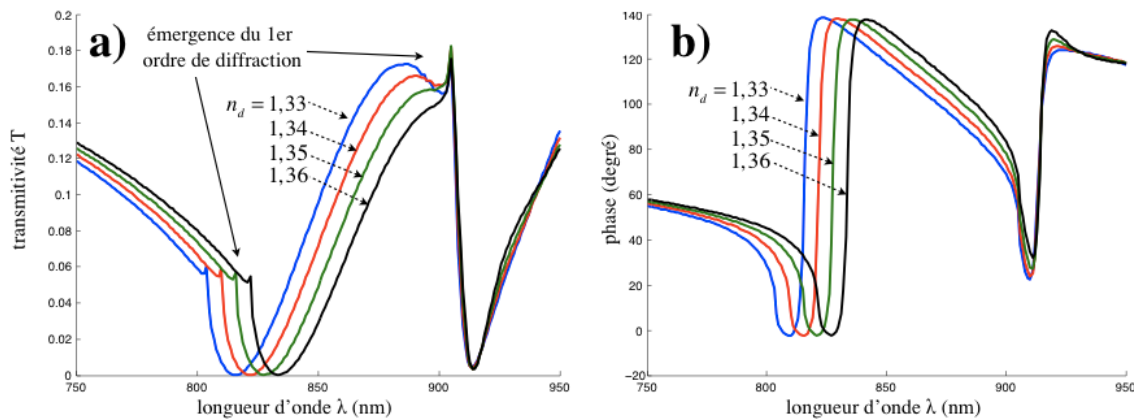


Figure 5.3 Profil spectral (a) de la transmittivité et (b) de la phase pour plusieurs valeurs d'indice de réfraction du milieu diélectrique.

Courbes tracées à partir de la théorie d'une modélisation RCWA. ($\theta_{inc}=0^\circ$; $n_s=1,515$; $\epsilon_m=\epsilon_{Au}(\lambda)$; $d=100\text{nm}$; $A=600\text{nm}$; $w=300\text{nm}$)

On retrouve les minima de transmission et saut de phase décrits précédemment. On peut remarquer en outre que dans le présent cas (milieu aqueux) la simulation laisse apparaître les caractéristiques du phénomène d'émergence du premier ordre de diffraction discuté précédemment.

Cette figure montre également qu'un mode plasmonique (celui relatif à l'interface or|analyte (entre 800 et 850 nm sur la Figure 5.3) est particulièrement sensible à la variation d'indice de l'analyte. Dans une problématique de détection d'indice on s'intéressera donc uniquement à ce mode. Dans la suite de ce travail cette étude se concentrera sur le profil spectral de phase, on notera λ_I la longueur d'onde correspondant au point de pente maximale de phase.

5.2 Analyse et interprétation du profil spectral de phase

Cette section revient sur les deux phénomènes observés à partir des profils d'intensité et de phase transmis par le réseau : l'émergence du premier ordre de diffraction et la résonance des plasmons de surface, on rappelle que l'on travaille à incidence normale.

5.2.1 Émergence du premier ordre de diffraction

Les discontinuités apparaissant dans le spectre d'un réseau métallique ont initialement été remarquées par Wood au début du siècle dernier. Rayleigh apporte par la suite une explication à ce phénomène en le reliant à l'émergence des ordres diffractés par le réseau. La modélisation que nous avons réalisée porte sur l'observation de l'ordre 0 mais celui-ci est affecté par les ordres successifs lorsqu'ils sont radiatifs ou lorsqu'ils sont évanescents et couplés à un PS. On s'intéresse ici à l'effet de l'ordre 1 sur la réponse du capteur.

Une étude élémentaire des réseaux de diffraction permet de déterminer la condition de passage du premier ordre de diffraction du régime propagatif à évanescent. Soit $k_{\perp}$ et $k_{\parallel}$ respectivement les composantes orthogonales et parallèles au plan Oxy du vecteur d'onde k_d associé à l'ordre 1 de diffraction dans le milieu diélectrique, on a :

$$k_{\perp} = \sqrt{k_d^2 - k_{\parallel}^2} = |k_d| \sqrt{1 - \frac{\lambda}{n_d \Lambda}} \quad (5.1)$$

Ainsi, lorsque $\lambda > n_d \Lambda$ l'ordre 1 est évanescent ($k_{\perp}$ imaginaire), il peut alors, sous condition d'accord de phase, se coupler avec un mode PS. Lorsque $\lambda < n_d \Lambda$ l'ordre 1 est réfléchi par la structure, il peut alors ne pas y avoir d'excitation de plasmon. La discontinuité du profil de phase correspond à la condition $\lambda = n_d \Lambda$, l'ordre de diffraction est alors sous incidence rasante. Ce changement de régime est difficilement modélisable, ceci explique pourquoi à cette longueur d'onde les résultats théoriques peuvent être assez éloignés des résultats expérimentaux.

Lorsque le diélectrique est constitué d'air ($n_d=1$) le phénomène d'émergence du premier ordre se produit pour $\lambda = \Lambda$ ce qui correspond bien aux discontinuités observées (Figure 5.2).

5.2.2 Longueur d'onde de couplage plasmonique

Les ondes évanescentes diffractées par le réseau ont la possibilité de se coupler à un mode PS sur chacune des interfaces m|d et m|s. Ce couplage, associé à la longueur d'onde λ_{res} , se traduit en transmission par une importante diminution du signal transmis et une variation de phase analogue à ce qu'on a décrit pour une configuration plane. La formule (5.2), introduite dans le premier chapitre, est fréquemment utilisée dans la littérature afin de décrire la relation de couplage entre le $p^{ième}$ ordre de diffraction et le mode PS :

$$n_{PS} = \text{Re} \left\{ \sqrt{\frac{\epsilon_m \cdot n_i^2}{\epsilon_m + n_i^2}} \right\} = p \frac{\lambda_{res}^p}{\Lambda} \quad (5.2)$$

Où $i=d$ ou s selon qu'on considère le mode plasmonique à l'interface métal|diélectrique ou métal|substrat alors insensible à l'indice du diélectrique.

Il est important de souligner le caractère a priori approximatif de cette formule. En effet, elle présuppose que la relation de dispersion liée aux plasmons supportés par le réseau ne dépend pas de sa géométrie et ne tient pas compte du couplage possible entre les modes excités sur chacune des interfaces. Elle néglige également les couplages entre les différentes harmoniques du champ, ignore l'influence du substrat et approxime l'indice effectif des plasmons de surfaces excités sur le réseau à celui du modèle du guide d'onde plan.

Sous ces hypothèses il est possible de déterminer la longueur d'onde de couplage λ_{res} qui dépend à la fois du pas du réseau et de l'indice du diélectrique.

Rôle du pas du réseau

On déduit de l'équation (5.2) une relation linéaire¹⁸ entre λ_{res} et le pas Λ . Cette tendance a été comparée à la longueur d'onde λ_l déterminée à partir de la simulation numérique. On retrouve un comportement similaire avec les deux approches.

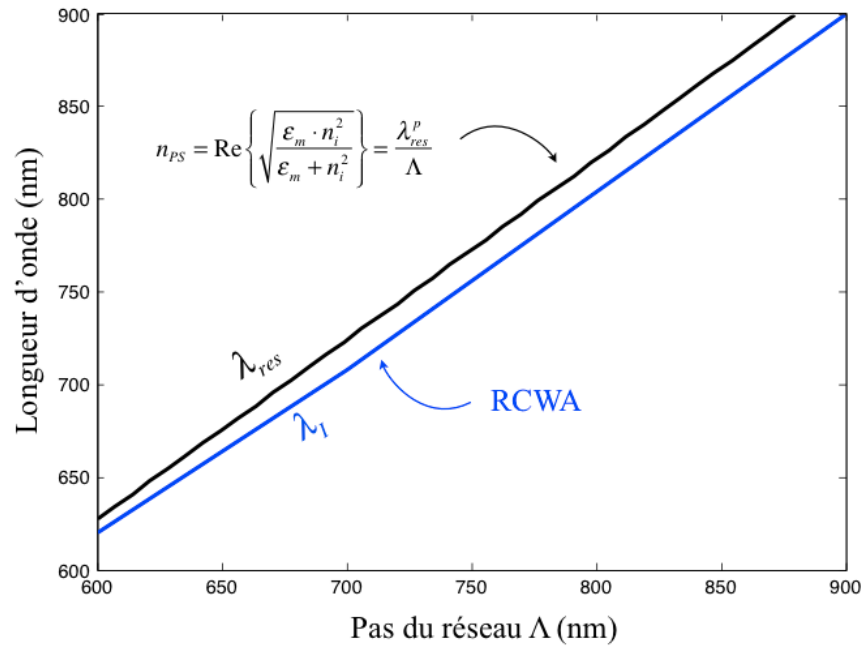


Figure 5.4 Évolutions des longueurs d'onde de couplage en fonction du pas du réseau Λ .

Comparaison du modèle RCWA en bleu à l'équation (5.2) en noir

($\theta_{inc}=0^\circ$; $d=100\text{nm}$; $w=300\text{nm}$; $n_d=1$; $\epsilon_m=\epsilon_{Au}$; $n_s=1,515$)

En considérant le couplage dû au premier ordre de diffraction on trouve, pour une période $\Lambda=600\text{nm}$, une longueur d'onde de couplage de l'ordre de 630nm , ce qui correspond bien aux conditions de couplage plasmonique observées (Figure 5.2).

Sensibilité

La longueur d'onde de couplage dépend également de l'indice du milieu diélectrique à travers la sensibilité spectrale S_s qu'on peut obtenir à partir de l'équation (5.2) ou de la simulation numérique. Cette dépendance à une variation d'indice en milieu aqueux a été simulée :

¹⁸ La variation spectrale de n_{ps} n'influe pratiquement pas sur la relation (5.2)

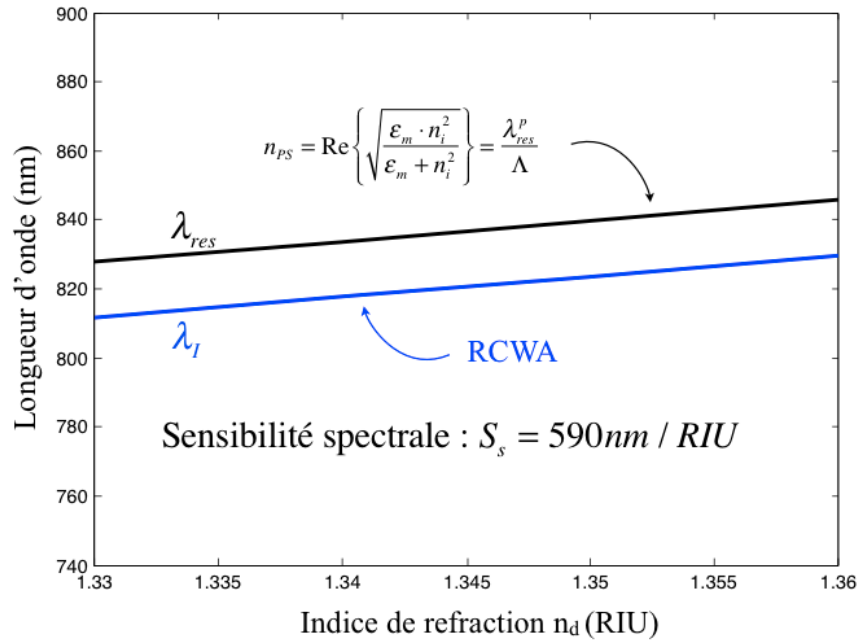


Figure 5.5 Évolutions des longueurs d'onde de couplage en fonction de l'indice n_d .

Comparaison du modèle RCWA en bleu à l'équation (5.2) en noir

($\theta_{inc}=0^\circ$; $d=100nm$; $\Lambda=600nm$; $w=300nm$; $\epsilon_m=\epsilon_{Au}$; $n_s=1,515$)

On retrouve un comportement similaire avec les deux approches : la sensibilité spectrale est constante (régime linéaire).

Bien qu'elle repose sur des hypothèses assez fortes, on peut conclure que l'équation (5.2) donne des résultats assez similaires au modèle RCWA et permet d'interpréter physiquement la réponse spectrale du capteur.

5.3 Influence de la géométrie des lames métalliques

Si une approche simplifiée de la théorie des réseaux de diffraction permet d'interpréter le couplage plasmonique, cette analyse reste toutefois limitée et ne permet pas de tenir compte de la géométrie des lames d'or dans la réponse du capteur.

Les structures nanoplasmoniques répondent à une problématique d'intégration et de miniaturisation des capteurs. Dans ce contexte, le traitement du signal se fait généralement à longueur d'onde fixe ce qui revient à considérer une détection en sensibilité de phase. Or

l'importance de la géométrie avec ce type de détection a été mise en valeur lors de l'étude des structures planes.

Il est donc intéressant de caractériser l'influence de l'épaisseur d et de la largeur $w=f \cdot \Lambda$ des lames d'or. De nombreuses configurations paramétriques peuvent être envisageables et il apparaît rapidement nécessaire d'effectuer un travail de modélisation avant de concevoir une structure. Nous avons ainsi procédé à plusieurs simulations numériques à partir du modèle RCWA afin d'analyser l'influence de la géométrie des lames métalliques sur la réponse de phase en transmission. Certains résultats présentés dans cette section ont été validés expérimentalement par mon collègue Mathieu Maisonneuve et feront l'objet d'une publication à paraître [45].

5.3.1 Largeur des lames métalliques

La largeur des bandes métalliques est décrite par le rapport $f = \frac{w}{\Lambda}$. La réponse spectrale de phase pour plusieurs largeurs de lames métalliques a été simulée :

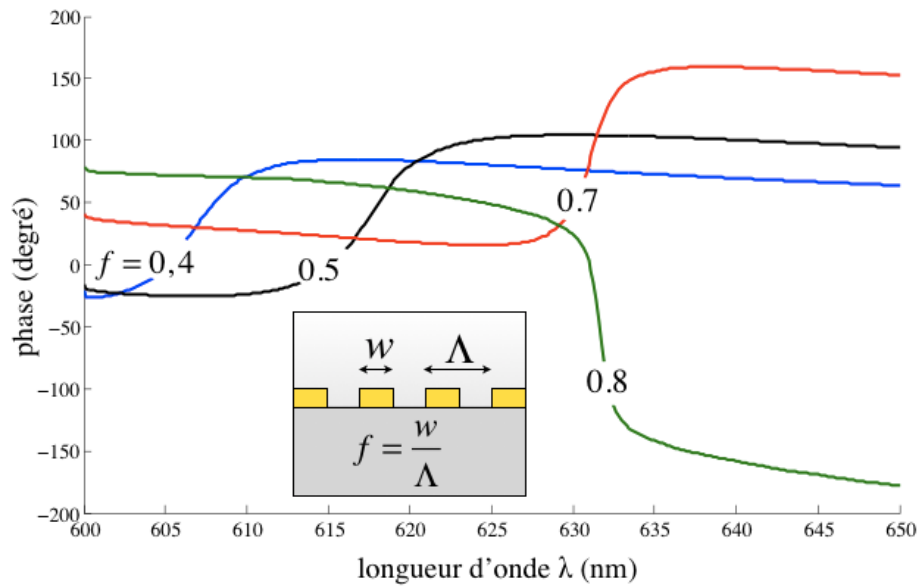


Figure 5.6 Simulation du profil spectral de phase au voisinage du couplage plasmonique pour différentes largeurs de lames d'or

$$(\theta_{inc}=0^\circ; n_s=1,515; \epsilon_m=\epsilon_{Au}(\lambda); n_d=1; d=100nm; \Lambda=600nm)$$

On remarque que le paramètre f agit conjointement sur l'angle θ_t et la pente du profil de phase. Ces deux aspects vont être détaillés.

Pente de phase

On peut observer qu'une variation du paramètre f modifie la pente de phase. Ce comportement a été confirmé expérimentalement [45] comme on le voit sur la Figure 5.7 :

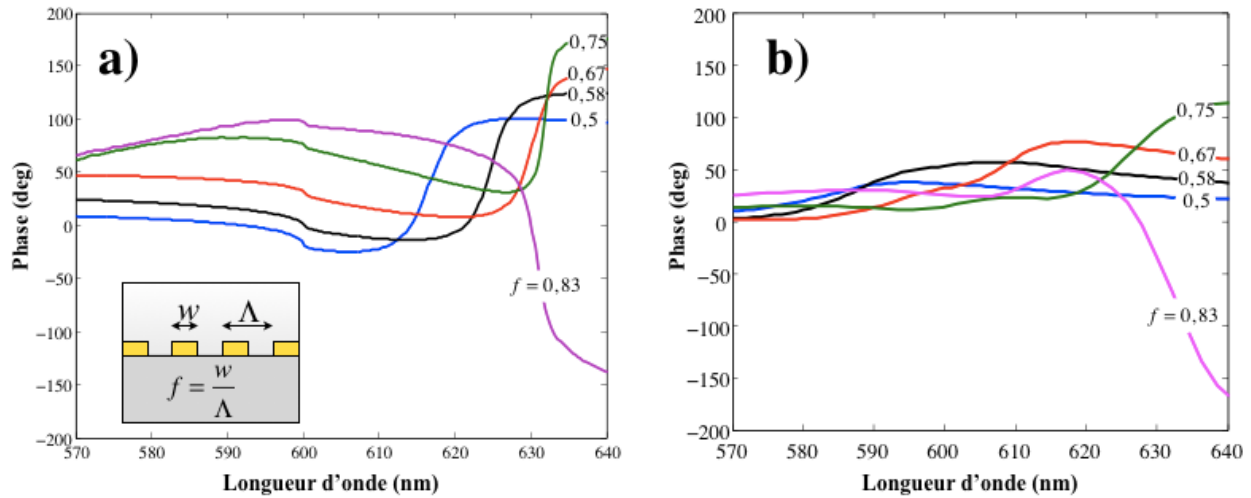


Figure 5.7 Profil spectral de phase pour différentes largeurs de bandes métalliques. a) résultats théoriques ; b) résultats expérimentaux

($\theta_{inc}=0^\circ$; $n_s=1,515$; $\epsilon_m=\epsilon_{Au}(\lambda)$; $n_d=1$; $d=100nm$; $\Lambda=600nm$)

Les limites de la modélisation discutées précédemment sont ici visibles. En effet, les pentes de phase apparaissent plus marquées dans le résultat théorique (Fig 5.7 a) que dans les données expérimentales (Fig 5.7 b). On observe toutefois dans les deux cas une augmentation de la pente du déphasage plasmonique à mesure que f augmente et une inversion du déphasage pour la dernière valeur de f ($f=0.83$).

Ce résultat pose la question de l'optimisation de la sensibilité de phase. L'évolution de cette sensibilité (valeur de la pente maximale de phase) a ainsi été simulée en fonction du paramètre f (Figure 5.8).

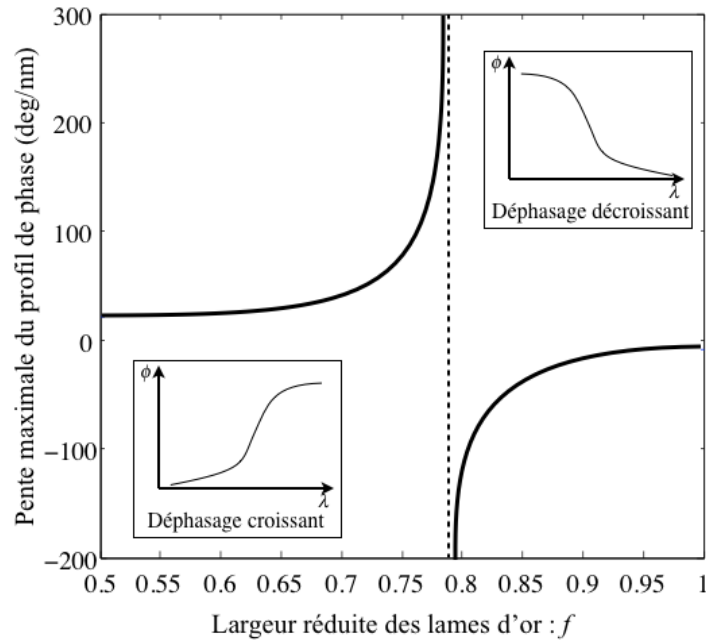


Figure 5.8 Évolution de la sensibilité de phase en fonction du paramètre f
 ($\theta_{inc}=0^\circ$; $n_s=1,515$; $\epsilon_m=\epsilon_{Au}(\lambda)$; $n_d=1$; $d=100nm$; $\Lambda=600nm$)

On peut faire une analogie entre l'influence du paramètre f sur la phase dans le cas présent et celui de l'épaisseur de la couche métallique au sein d'une configuration *Kretschmann-Raether*.

Ceci permet de mettre en évidence l'existence d'une largeur de lame « optimale » particulièrement intéressante dans un cadre de détection en sensibilité de phase.

Longueur d'onde de couplage plasmonique

En plus de la pente de phase, le paramètre f influe sur la valeur de la longueur d'onde de couplage λ_I .

Cette dépendance est simulée sur le graphe suivant :

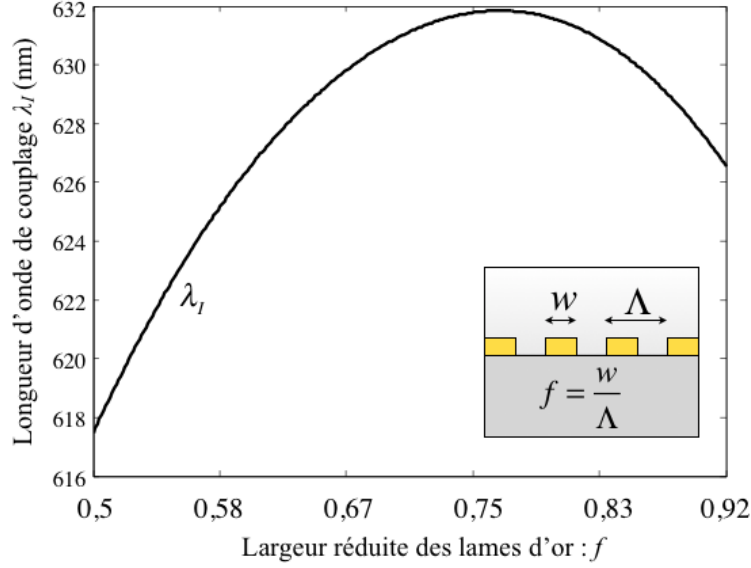


Figure 5.9 Évolution de la longueur d'onde de couplage λ_I en fonction de la largeur w
 ($\theta_{inc}=0^\circ$; $n_s=1,515$; $\epsilon_m=\epsilon_{Au}(\lambda)$; $n_d=1$; $d=100nm$; $\Lambda=600nm$)

La longueur d'onde λ_I croît avec la largeur des lames d'or jusqu'à une valeur correspondant à l'inversion de la variation de phase discutée précédemment.

La partie ascendante de la courbe pourrait s'interpréter comme la contribution d'un terme $\Delta k_{largeur}$ au vecteur d'onde plasmonique traduisant l'augmentation de la surface métallique utile à la propagation des PS (5.3), on s'attend alors à ce que $\Delta k_{largeur}$ soit une fonction croissante de la largeur w .

$$k_{PS} = k_{PS}^0 + \Delta k_{largeur} \quad (5.3)$$

Ceci ne permet toutefois pas d'expliquer la diminution de λ_I après l'inversion du déphasage.

5.3.2 Épaisseur des lames métalliques

L'influence de l'épaisseur des lames d'or sur la pente de phase a également été observée. L'analyse de simulations réalisées pour différentes valeurs du paramètre f à permis de remarquer deux types de comportement selon que f est inférieur ou supérieur à une valeur f_0 .

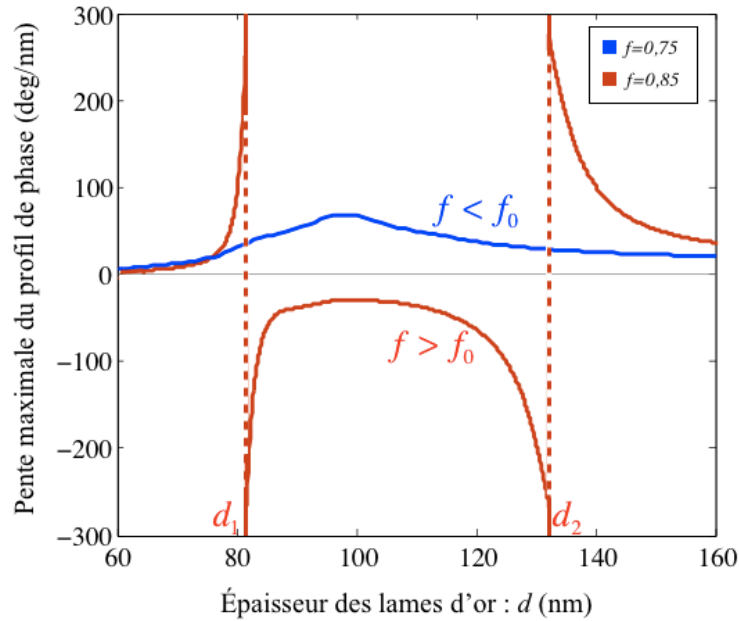


Figure 5.10 Dépendance de sensibilité de phase à l'épaisseur d selon la valeur de f
 $(\theta_{inc}=0^\circ; n_s=1,515; \epsilon_m=\epsilon_{Au}(\lambda); n_d=1; \Lambda=600nm)$

1^{er} cas : $f < f_0$

On observe l'existence d'une épaisseur optimisant la pente maximale de phase, cette pente optimale n'est pas associée à une inversion de déphasage contrairement à la configuration *Kretschmann-Raether*. Cette épaisseur qui dépend faiblement de la valeur de f se situe aux alentours de 100nm¹⁹ ce qui correspond par ailleurs à l'épaisseur généralement employée pour ce type de réseaux dans la littérature.

2^{ème} cas : $f > f_0$

On observe dans ce cas un comportement très différent de la phase avec deux épaisseurs (d_1 et d_2) d'or distinctes associées à la divergence de la sensibilité de phase. Le sens du déphasage diffère selon que l'épaisseur d'or est comprise entre d_1 et d_2 ou non.

¹⁹ 98nm pour $f=0,75$

Nous avons évalué la valeur de la largeur réduite f_0 à la frontière de ces deux régimes, on trouve $f_0 \approx 0,79$ ce qui correspond à la valeur de f à laquelle on observe une inversion de la pente de phase lorsque d est fixé à 100nm (voir Figure 5.8).

Ce résultat montre que l'épaisseur et la largeur des lames d'or ont une influence couplée sur la sensibilité de phase qu'on se propose de décrire de manière qualitative dans la section suivante.

5.3.3 Traitement couplé de l'épaisseur et de la largeur des lames métalliques

L'association des résultats obtenus sur l'épaisseur et la largeur des lames permet de proposer une représentation tridimensionnelle du comportement de la sensibilité de phase en fonction de ces deux paramètres géométriques (Figure 5.11). Ce résultat a été extrapolé à partir de simulations ne faisant varier qu'un seul paramètre (f ou d).

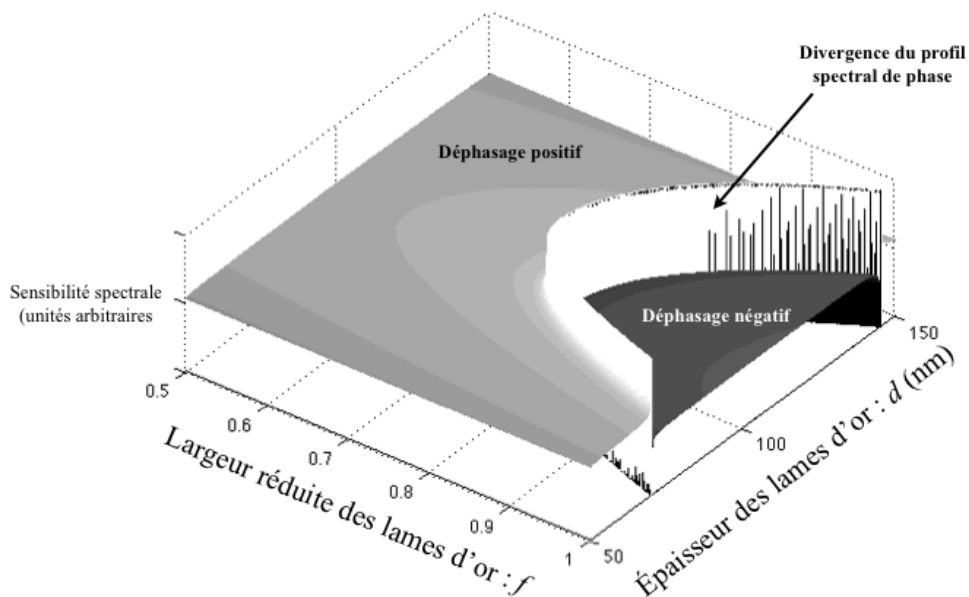


Figure 5.11 Simulation du comportement de la sensibilité de phase en fonction de l'épaisseur et de la profondeur d'or.

$$(\theta_{inc}=0^\circ; n_s=1,515; \epsilon_m=\epsilon_{Au}(\lambda); n_d=1; \Lambda=600nm)$$

Chaque point de la figure précédente correspond à la sensibilité de phase en fonction du couple (d, f) . On remarque l'existence de deux zones associées à des déphasages de sens opposés à la frontière de ces zones, le profil de phase diverge.

Afin de mieux comprendre le comportement de la sensibilité en fonction de la géométrie des lames d'or, la simulation précédente a été schématisée (Figure 5.12) :

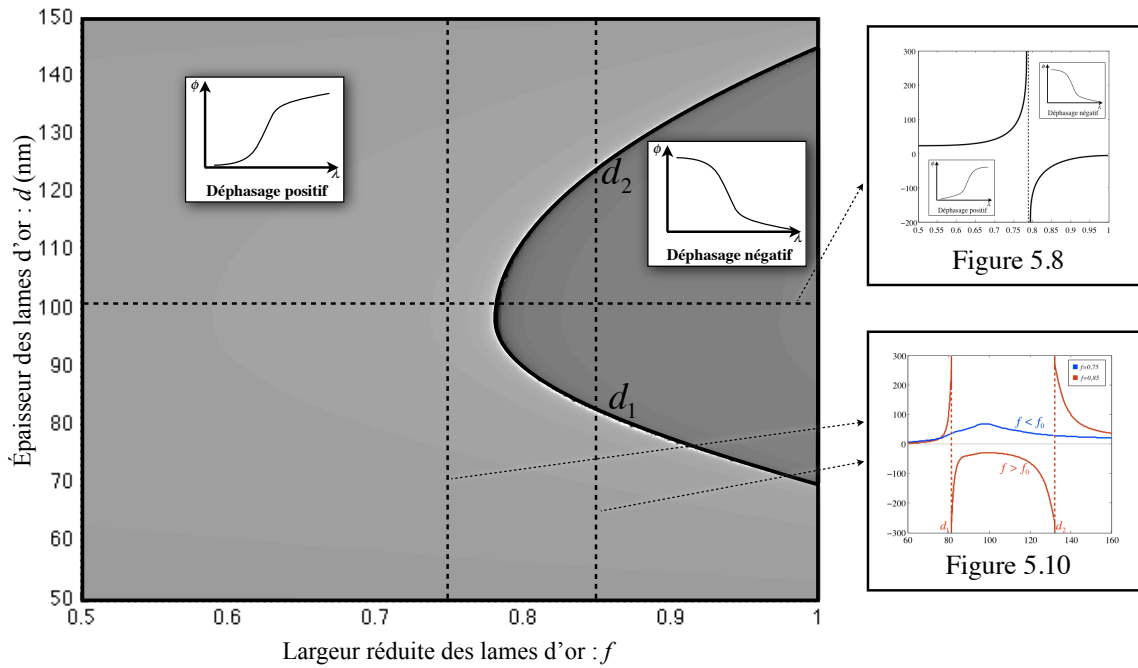


Figure 5.12 Modélisation de la sensibilité de phase en fonction du rapport f (en abscisse) et de l'épaisseur des lames métalliques (en ordonnées)

$$(\theta_{inc}=0^\circ; n_s=1,515; \epsilon_m=\epsilon_{Au}(600nm); n_d=1; \Lambda=600nm)$$

Les profils de sensibilité en fonction de la largeur réduite f (Fig. 5.8) et de l'épaisseur d (Fig. 5.10) peuvent se retrouver à partir des sections tracées en pointillé sur cette représentation.

On peut faire une analogie entre le rôle de l'épaisseur optimale dans le cas d'une géométrie plane et celui des couples (d, f) . La Figure 5.12 est particulièrement intéressante comme support préliminaire à la réalisation d'une structure nano-plasmonique. Une telle figure permet en effet de déterminer rapidement (sous contraintes ou non) les associations de paramètres (d, f) permettant d'améliorer la sensibilité de phase d'un capteur.

CONCLUSION

Le travail de recherche présenté au sein de ce mémoire a consisté à caractériser l'influence de la géométrie de capteurs plasmoniques sur la phase du signal détecté. L'objectif principal de cette étude était de proposer des voies d'amélioration pour ce type de détection. Pour cela nous avons étudié les deux principales méthodes employées en détection plasmonique : le couplage par prisme et le couplage par réseau de diffraction.

Dans un premier temps, une description des structures planes reposant sur les équations de Fresnel a permis de mieux comprendre l'origine du signal de phase et d'en proposer une modélisation. En étudiant une configuration *Kretschmann-Raether* il a été possible de souligner l'importance de la géométrie sur la qualité de ce signal. Plus particulièrement l'influence de la rugosité de surface et de l'épaisseur de la couche métallique sur la phase ont été caractérisés. Ceci a permis de mettre en évidence le rôle particulier d'une épaisseur dite « optimale » de la couche métallique sur différents aspects du signal de phase. Les avantages et les inconvénients de travailler à cette épaisseur ont alors été discutés selon les applications de détection et les méthodes de suivi. Ainsi, l'intérêt de l'épaisseur optimale a été montré dans l'amélioration de la sensibilité de détection. Cependant, il a été également observé que cette géométrie diminuait la résolution et la plage de détection du capteur.

Par la suite, la caractérisation du rapport entre la phase et la géométrie a permis de mettre en évidence une zone angulaire du signal de phase peu sensible à l'épaisseur de la couche métallique. Grâce à une analyse qualitative du système il a été possible de décrire les mécanismes à l'origine de cette convergence des courbes de phase. Nous avons vu en particulier que ce phénomène était très lié à la prédominance de l'aspect inductif du métal sur son caractère dissipatif. Une étude quantitative du problème a par ailleurs permis de déterminer les paramètres minimisant cette dépendance de la phase à l'épaisseur. Les avantages d'un tel phénomène ont été discutés dans le cadre d'un suivi angulaire du couplage plasmonique. Ceci nous a conduit à proposer une méthode de détection permettant de mettre en évidence la convergence de phase (profil de type « marche »). En comparant ce système avec une détection standard nous avons observé une amélioration générale de la résolution et une plus grande stabilité de l'angle de suivi. Ce résultat étant théorique il serait intéressant de concevoir et d'analyser expérimentalement une telle structure.

Dans un second temps, nous avons procédé à une analyse du signal diffracté par des réseaux nanostructurés en fonction de leur géométrie, ce qui a nécessité le développement d'une technique d'approximation numérique reposant sur la méthode dite des ondes couplées (RCWA). Cette modélisation offre une compréhension générale de la structure du champ transmis et réfléchi par le coupleur. Les limites de cette approche ont par ailleurs été discutées, ce qui a permis de conclure à une convergence relativement lente des solutions évaluées par cette méthode. Ce dernier point restreint l'utilisation du modèle, en particulier dans une logique d'optimisation selon plusieurs paramètres. Toutefois, la comparaison des résultats théoriques et expérimentaux dans le cadre d'un réseau d'or en transmission a validé la pertinence de cette modélisation dans le suivi de la résonnance plasmonique. Le code implémenté pourra donc être réutilisé afin d'effectuer une analyse des conditions de couplage préliminaire à la fabrication de structures nanoplasmoniques au laboratoire LP2L. Un travail d'optimisation du code, ou de réécriture dans un langage plus performant que MATLAB, sera toutefois à effectuer pour disposer plus rapidement de résultats suffisamment précis.

Pour finir, l'étude de l'influence de l'épaisseur et de la largeur des lames d'un réseau métallique sur le signal de phase en transmission a été menée à partir du code développé sur le modèle RCWA. En particulier, la pente du profil spectral de phase a été observée. Il a ainsi été possible de déterminer des configurations géométriques optimisant la sensibilité de phase. À l'instar de l'épaisseur optimale observée avec les structures planes, nous avons mis en évidence l'existence de couples (épaisseur, largeur) correspondant à une divergence de la sensibilité de phase. L'analyse de l'épaisseur conjointement à la largeur des lames du réseau a permis de fournir une description générale de la dépendance de la géométrie sur la pente de phase. L'intérêt de ce dernier résultat a été souligné pour la conception de structures nanoplasmoniques. La considération de géométries plus complexes (réseaux bidimensionnels, profils dépendant de l'axe Oz...) permettrait par ailleurs de compléter cette étude et de tenir compte des défauts structuraux des échantillons. Une interprétation physique, expliquant les différents comportements de la phase selon les configurations géométriques, permettrait par ailleurs d'enrichir la compréhension de ces structures.

Cette étude permet donc une meilleure compréhension du déphasage plasmonique, son approfondissement, en particulier dans un cadre pratique, devrait permettre de proposer et de

tester de nouvelles applications en détection de phase à partir de configurations géométriques plus spécifiques. Afin d'atteindre ce but, des pistes éventuelles de recherche seraient :

- dans le cas de l'étude des réseaux de diffraction : améliorer vitesse de convergence de modélisation et de considérer d'autres méthodes (FDTD...) pour enrichir la compréhension du système ;
- en ce qui concerne la convergence des courbes de phase : de tester la structure proposée dans ce travail sur le plan expérimental.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] R. W. Wood, "On a Remarkable Case of Uneven Distribution of Light in a Diffraction Grating Spectrum," *Proceedings of the Physical Society of London*, vol. 18, p. 269, 1902.
- [2] U. Fano, "The Theory of Anomalous Diffraction Gratings and of Quasi-Stationary Waves on Metallic Surfaces (Sommerfeld's Waves)," *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 31, pp. 213-222, 1941.
- [3] R. H. Ritchie, "Plasma Losses by Fast Electrons in Thin Films," *Physical Review*, vol. 106, p. 874, 1957.
- [4] A. Otto, "Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection," *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*, vol. 216, pp. 398-410, 1968.
- [5] E. Kretschmann and H. Raether, "Radiative decay of non-radiative surface plasmons excited by light," *Z. Naturforsch.*, vol. 23A, pp. 2135-2136, 1968.
- [6] H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings (Springer Tracts in Modern Physics)*: Springer, 1988.
- [7] C. Nylander, B. Liedberg, and T. Lind, "Gas detection by means of surface plasmon resonance," *Sensors and Actuators*, vol. 3, pp. 79-88, 1982.
- [8] A. V. Kabashin and P. I. Nikitin, "Interferometer based on a surface-plasmon resonance for sensor applications," *Quantum Electronics*, vol. 27, p. 653, 1997.
- [9] T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio, and P. A. Wolff, "Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays," *Nature*, vol. 391, pp. 667-669, 1998.
- [10] S. Berciaud, L. Cognet, P. Tamarat, and B. Lounis, "Observation of Intrinsic Size Effects in the Optical Response of Individual Gold Nanoparticles," *Nano Letters*, vol. 5, pp. 515-518, 2005.
- [11] A. Boardman, *Electromagnetic Surface Modes*: John Wiley and Sons, 1982.
- [12] J. Homola, *Surface plasmon resonance sensors: review* vol. 54, 1999.
- [13] P. B. Johnson and R. W. Christy, "Optical Constants of the Noble Metals," *Physical Review B*, vol. 6, p. 4370, 1972.
- [14] D. Courjon and C. Bainier, *Le champ proche optique: Théorie et applications*: Springer, 2001.
- [15] S. Lal, S. Link, and N. Halas, "Nano-optics from sensing to waveguiding," *Nature Photonics*, vol. 1, pp. 641-648, 2007.
- [16] K. Kneipp, *Surface-Enhanced Raman Scattering: Physics and Applications (Topics in Applied Physics)*, 2006.

- [17] W. Yuan, H. P. Ho, C. L. Wong, S. K. Kong, and C. Lin, "Surface Plasmon Resonance Biosensor Incorporated in a Michelson Interferometer With Enhanced Sensitivity," *Sensors Journal, IEEE*, vol. 7, pp. 70-73, 2007.
- [18] S. Patskovsky, R. Jacquemart, M. Meunier, G. De Crescenzo, and A. V. Kabashin, "Phase-sensitive spatially-modulated surface plasmon resonance polarimetry for detection of biomolecular interactions," *Sensors and Actuators B: Chemical*, vol. 133, pp. 628-631, 2008.
- [19] S. Patskovsky, M. Maisonneuve, M. Meunier, and A. V. Kabashin, "Mechanical modulation method for ultrasensitive phase measurements in photonics biosensing," *Opt. Express*, vol. 16, pp. 21305-21314, 2008.
- [20] Biacore.com. (2011, avril). *Biacore*. En ligne: <http://www.biacore.com>
- [21] Ibis-spr.nl. (2011, avril). *IBIS*. En ligne: <http://www.ibis-spr.nl/>
- [22] Genoptics. (2011, avril). *Genoptics*. En ligne: <http://www.genoptics-spr.com/>
- [23] S. T. Inc. (2011, mai). *Sensata Technologies Inc.* En ligne: <http://www.sensata.com/>
- [24] R. L. Rich and D. G. Myszka, "Survey of the year 2007 commercial optical biosensor literature," *Journal of Molecular Recognition*, vol. 21, pp. 355-400, 2008.
- [25] F. Abelès, "Recherches sur la propagation des ondes électromagnétiques sinusoïdales dans les milieux stratifiés. Application aux couches minces," *Ann. de Physique*, vol. 5, pp. 596-639, 1950.
- [26] E. Kretschmann, "Die Bestimmung optischer Konstanten von Metallen durch Anregung von Oberflächenplasmaschwingungen," *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*, vol. 241, pp. 313--324, 08 1971.
- [27] D. Roy, "Optical characterization of multi-layer thin films using the surface plasmon resonance method: A six-phase model based on the Kretschmann formalism," *Optics Communications*, vol. 200, pp. 119-130, 2001.
- [28] A. V. Kabashin, V. E. Kochergin, A. A. Beloglazov, and P. I. Nikitin, "Phase-polarisation contrast for surface plasmon resonance biosensors," *Biosensors and Bioelectronics*, vol. 13, pp. 1263-1269, 1998.
- [29] Platypustech.com. (2011, avril). *Platypus*. En ligne : <http://www.platypustech.com/goldsubstrates.html>
- [30] J. C. Maxwell Garnett, "Colours in Metal Glasses, in Metallic Films, and in Metallic Solutions," *Phil Trans of the Royal Society of London A*, vol. 203, pp. 385--420, 1904.
- [31] D. A. G. Bruggeman, "Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen. I. Dielektrizitätskonstanten und Leitfähigkeiten der Mischkörper aus isotropen Substanzen," *Annalen der Physik*, vol. 416, pp. 636-664, 1935.
- [32] M. Kansa, "Modélisation, réalisation et caractérisation d'un capteur plasmonique à fibre optique : Effets de la rugosité, des réactions de surface et de la cinétique dans un système microfluidique," École polytechnique de l'université de Nantes, Université de Nantes, Nantes, 2008.

- [33] A. V. Kabashin, S. Patskovsky, and A. N. Grigorenko, "Phase and amplitude sensitivities in surface plasmon resonance bio and chemical sensing," *Opt. Express*, vol. 17, pp. 21191-21204, 2009.
- [34] S. Y. Wu, H. P. Ho, W. C. Law, C. Lin, and S. K. Kong, "Highly sensitive differential phase-sensitive surface plasmon resonance biosensor based on the Mach-Zehnder configuration," *Opt. Lett.*, vol. 29, pp. 2378-2380, 2004.
- [35] A. K. Sheridan, R. D. Harris, P. N. Bartlett, and J. S. Wilkinson, "Phase interrogation of an integrated optical SPR sensor," *Sensors and Actuators B: Chemical*, vol. 97, pp. 114-121, 2004.
- [36] S. Patskovsky, M. Vallières, M. Maisonneuve, I.-H. Song, M. Meunier, and A. V. Kabashin, "Designing efficient zero calibration point for phase-sensitive surface plasmon resonance biosensing," *Opt. Express*, vol. 17, pp. 2255--2263, 02 2009.
- [37] F. Abelès and T. Lopez-Rios, "Surface Polaritons at Metal Surfaces and Interfaces," in *Surface polaritons*, V. M. Agranovich and D. L. Mills, Eds., ed Amsterdam: North-Holland Pub. Co., 1982.
- [38] SCHOTT. (2007, avril). *Propriétés optiques du verre BK7*. Available: http://www.us.schott.com/advanced_optics/us/abbe_datasheets/schott_datasheet_n-bk7.pdf
- [39] M. G. Blaber and et al., "A review of the optical properties of alloys and intermetallics for plasmonics," *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 22, p. 143201, 2010.
- [40] P. Vincent, "Differential Methods," in *Electromagnetic Theory of Gratings (Topics in Applied Physics)*, R. Petit, Ed., ed Berlin: Springer-Verlag, 1980, pp. 101–121.
- [41] D. Maystre, "Integral methods," in *Electromagnetic Theory of Gratings (Topics in Applied Physics)*, R. Petit, Ed., ed Berlin: Springer-Verlag, 1980.
- [42] M. G. Moharam and T. K. Gaylord, "*Appl. Opt.*; Coupled-wave analysis of reflection gratings," vol. 20, pp. -244, 1981.
- [43] M. G. Moharam and T. K. Gaylord, "Rigorous coupled-wave analysis of metallic surface-relief gratings," *J. Opt. Soc. Am. A*, vol. 3, pp. 1780-1787, 11 1986.
- [44] M. G. Moharam, E. B. Grann, D. A. Pommet, and T. K. Gaylord, "Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings," *J. Opt. Soc. Am. A*, vol. 12, pp. 1068-1076, 1995.
- [45] M. Maisonneuve, O. d'Allivy Kelly, A.-P. Blanchard-Dionne, S. Patskovsky, and M. Meunier, " Phase sensitive sensor on the plasmonic nanograting structure," à paraître.

ANNEXES

Annexe 1 – Lien entre minimum de réflectivité et variation maximale de la phase

Soit r_{pmd} le coefficient de réflexion global d'un dispositif de type *Kretschmann-Raether* $p|m|d$. On s'intéresse à l'expression complexe de r_{pmd} . On fait l'approximation consistant à modéliser la courbe au voisinage de la résonance par l'équation de son cercle osculateur (de centre c et de rayon ρ)

$$r_{pmd} \approx C + \rho \exp(i \cdot (u\theta + v)) \quad (A1.1)$$

avec $\rho, u, v \in \mathbb{R}$, $C = |C| \exp(i\gamma)$ et $r_{pmd} = r_r + ir_i$

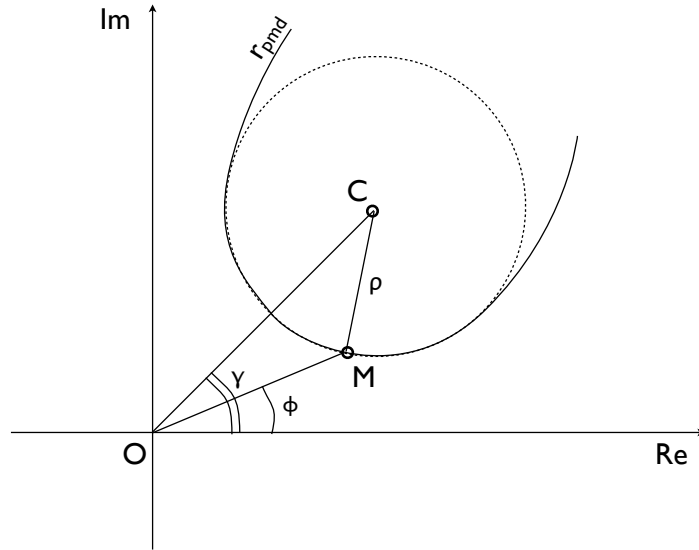


Figure 5.13 Représentation complexe du coefficient de réflexion r_{pmd}

Graphiquement on a :

$$\left| r_{pmd} \right|'(\theta_I) = 0 \Leftrightarrow \overrightarrow{OM} \times \overrightarrow{OC} = 0 \Leftrightarrow \begin{cases} r_{pmd}(\theta_I) = |\rho - |c|| \\ \phi(\theta_I) = \gamma \end{cases} \quad (A1.2)$$

Par ailleurs la condition pour avoir une variation maximale de la pente de phase est donnée par :

$$\phi''(\theta) = 0 \quad (A1.3)$$

On a :

$$\begin{aligned} \phi(\theta) &= \arctan\left(\frac{r_i}{r_r}\right) \\ \phi'(\theta) &= \frac{r_i' r_r - r_r' r_i}{|r_{pmd}|^2} \\ \phi''(\theta) &= \frac{(r_i'' r_r - r_r'' r_i) |r_{pmd}| - 2 |r_{pmd}|' (r_i' r_r - r_r' r_i)}{|r_{pmd}|^3} \end{aligned} \quad (A1.4)$$

Par le calcul on montre que :

$$r_i'' r_r - r_r'' r_i = |r_{pmd} \times r_{pmd}''| \propto |\overrightarrow{OM} \times \overrightarrow{OC}| \quad (A1.5)$$

Finalement, de (A1.4) il vient :

$$\left. \begin{aligned} (r_i'' r_r - r_r'' r_i)(\theta_I) &= 0 \\ |r_{pmd}|'(\theta_I) &= 0 \end{aligned} \right\} \Rightarrow \phi''(\theta_I) = 0 \quad (A1.6)$$

L'angle θ_I qui correspond au minimum de réflexion est donc également associé à la variation maximale de la phase.

Par ailleurs $\phi'(\theta)$ peut se réécrire :

$$\phi'(\theta) = \frac{r_{pmd} \times r_{pmd}'}{|r_{pmd}|^2} \propto \frac{\rho^2 + \overrightarrow{OC} \cdot \overrightarrow{CM}}{|r_{pmd}|^2} \quad (A1.7)$$

À l'angle d'incidence θ_I en particulier :

$$\phi'(\theta_I) \propto \frac{\rho^2 - \rho|c|}{|\rho - |c||^2} = \frac{\rho}{\rho - |c|} \quad (A1.8)$$

Annexe 2 – Simplification de la condition d'optimisation de la convergence de phase

Nous avons montré que la dépendance de la phase à l'épaisseur de la couche métallique s'exprimait au voisinage de d_{opt} par la formule suivante (3.18):

$$\frac{\partial \phi}{\partial d}(d_{opt}) = \frac{k'_{mz} \cdot \text{Re}(1 - r_{pm}^2) + k''_{mz} \cdot \text{Im}(1 - r_{pm}^2)}{|1 - r_{pm}^2|^2} \quad (A2.1)$$

Minimiser la taille de la ZCCP revient alors à résoudre l'équation

$$\frac{\partial \phi}{\partial d}(d_{opt}) = 0 \quad (A2.2)$$

Ceci revient à

$$k'_{mz} \cdot \text{Re}(1 - r_{pm}^2) + k''_{mz} \cdot \text{Im}(1 - r_{pm}^2) = 0 \quad (A2.3)$$

En développant $1 - r_{pm}^2$ à partir de la formule (2.4) :

$$1 - r_{pm}^2 = \frac{4k_{pz}k_{mz}\epsilon_m\epsilon_p}{(k_{pz}\epsilon_m + k_{mz}\epsilon_p)^2} = \underbrace{\frac{4k_{pz}\epsilon_p}{|k_{pz}\epsilon_m + k_{mz}\epsilon_p|^4}}_{\in \Re} \cdot Z \quad (A2.4)$$

avec $Z = k_{mz}\epsilon_m(k_{pz}\bar{\epsilon}_m + \bar{k}_{mz}\epsilon_p)^2$ et $\bar{k}$ et $\bar{\epsilon}$ les complexes conjugués respectivement de k et ϵ

On peut réécrire simplifier la condition en :

$$k'_{mz} \cdot \text{Re}(Z) + k''_{mz} \cdot \text{Im}(Z) = 0 \quad (A2.5)$$

Après développement de Z il vient :

$$\begin{aligned} \text{Re}(Z) &= (k'_{mz}\epsilon'_m + k''_{mz}\epsilon''_m) \left(k_{pz}^2 |\epsilon_m|^2 + |k_{mz}|^2 \epsilon_p^2 \right) + 2|k_{mz}|^2 |\epsilon_m|^2 k_{pz}^2 \epsilon_p^2 \\ \text{Im}(Z) &= (k''_{mz}\epsilon'_m - k'_{mz}\epsilon''_m) \left(k_{pz}^2 |\epsilon_m|^2 - |k_{mz}|^2 \epsilon_p^2 \right) \end{aligned} \quad (A2.6)$$

On fait dans un second temps l'approximation que le caractère inductif du milieu métallique est prépondérant par rapport à son caractère dissipatif $\varepsilon_m'' \ll \varepsilon_m'$, on peut montrer [37] que ceci a pour conséquence : $k_{mz}' \ll k_{mz}''$.

Ainsi, en négligeant les termes d'ordre 2 en ε_m'' et en k_{mz}' , l'expression (A2.5) devient :

$$k_{mz}'' \varepsilon_p^2 - k_{pz}^2 \varepsilon_m'^2 - 2k_{mz}'' \varepsilon_m' k_{pz} \varepsilon_p = 0 \quad (A2.7)$$

Ce qui équivaut à :

$$\varepsilon_p (\varepsilon_m' \sin^2(\theta) - \varepsilon_p) - (1 - \sin^2(\theta)) \varepsilon_m'^2 - \frac{\varepsilon_m' \varepsilon_m'' \sqrt{\varepsilon_p} \sqrt{1 - \sin^2(\theta)}}{\sqrt{\varepsilon_m' \sin^2(\theta) - \varepsilon_p}} = 0 \quad (A2.8)$$

Après simplification, en employant la théorie des perturbations en ε_m'' on obtient finalement la relation :

$$\sin^2(\theta_{opt}) = \frac{\varepsilon_m' \varepsilon_p + \varepsilon_m'^2 + \varepsilon_p \varepsilon_m''}{\varepsilon_p^2 + \varepsilon_m'^2} \quad (A2.8)$$

qu'on associe à la relation correspondant au couplage plasmonique :

$$\sin^2(\theta_{SPR}) = \frac{\varepsilon_m' \varepsilon_d}{\varepsilon_p (\varepsilon_m' + \varepsilon_d)} \quad (A2.8)$$

Annexe 3 – Code du programme RCWA

```

%#eml
function S = rcwa(input_data,polar,theta,Delta,d,f,N,tracer)
eml.allowpcode('plain');
%rcwa(input_data,'TE',0,600,100,1/2,50,1)
%
%*****
%
% Auteur du programme: Olivier d'ALLIVY KELLY
%                       Ecole Polytechnique de Montreal
%                       Dept. Génie Physique
%                       2500 Chemin de Polytechnique
%                       Montréal, Canada
%                       H3T 1J4
%                       olivier.dallivy-kelly@polymtl.ca
%
%                       Date: 25 décembre 2010
%*****
% DESCRIPTION:
% Cette fonction calcule les efficacités de diffractions ainsi que les déphasage associés, en
% réflexion et en transmission d'un réseau binaire compris entre deux milieux non absorbants soumis
% à une onde électromagnétique de structure plane.
%
% Reference [1] doit être utilisé pour citer ce code Matlab.
% Ce code matlab est l'implémentation de la méthode RCWA développée par M. G. Moharam [2].
%
%*****
%
% USAGE: S=[R,Phy_r,T,Phy_t] = rcwa(input_data,polar,theta,Delta,d,f,N,tracer)
%
%
%
% WHERE: R = reflectivité ordre 1, Phy_r = déphasage associé
%        T = transmittivité ordre 1, Phy_t = déphasage associé
%
% INPUT PARAMETERS:
%
% input_data ==> tableau de données un tableau matlab sous la
% forme: lambda, n_I, n_gr, n_rd, nn_II
%
% lambda : longueur d'onde en nanomètres
% n_I : indice de réfraction du domaine I
% n_gr : indice de réfraction dans les sillons du réseau
% n_rd : indice de réfraction dans les dents du réseau
% nn_II : indice de réfraction du domaine II
%
% ***Avertissement, les indices complexes doivent être exprimés avec
% la convention IR = n - ik ***
%
% polar ==> état de polarisation 'TE' ou 'TM'
%
% theta ==> angle d'incidence en degrés ##0
%
% Delta ==> période du réseau en nanomètres ##600

```

```

%
%      d          ==> profondeur du réseau ##100
%
%      f          ==> largeur_ridge/pas du réseau ##1/2
%
%      N          ==> ordre du developpement ##75
%
%      tracer     ==> le programme trace les courbes spectrales lorsque tracer=1
%
%
%
% REFERENCES:
%
%      [1] O. d'ALLIVY KELLY, "Modélisation de l'influence de la géométrie sur des capteurs
%      plasmoniques à détection de phase," MScA, Génie Physique, École Polytechnique de Montréal,
%      Montréal, 2011.
%      [2] M. G. Moharam et al., Formulation for stable and efficient implementation of the
%      rigorous coupled-wave analysis of binary gratings, J. Opt. Soc. Am. A/Vol. 12, No. 5/May 1995
%
%*****

% DEBUT Initialisation des variables

n=-N:1:N; % vecteur des ordres du développement

lambda      =input_data(:,1).'; %longueurs d'ondes à considérer
lambda_pts  =size(lambda,2); % nombre de longueurs d'ondes à considérer

theta=theta*pi/180; %angle d'incidence

%indices de refraction
n_I      =input_data(:,2).';
n_gr     =input_data(:,3).';
n_rd     =input_data(:,4).';
n_II     =input_data(:,5).';

%vecteurs d'ondes, condition de Bloch/Flochét
k_0      =2*pi./lambda;
mat_k_0  =ones(2*N+1,1)*k_0;
mat_n_I  =ones(2*N+1,1)*n_I;
mat_n_II =ones(2*N+1,1)*n_II;
k_x      =(mat_k_0).*(mat_n_I*sin(theta)-n.*(lambda/Delta));
k_Iz     =conj(sqrt(mat_n_I.^2-(k_x./(mat_k_0)).^2).*(mat_k_0));
k_IIz    =conj(sqrt((mat_n_II.^2)-(k_x./(mat_k_0)).^2).*(mat_k_0));

kro_0=zeros(2*N+1,1); kro_0(N+1)=1; % vecteur de kronenberg

%initialisation des éléments matriciels
R=zeros(2*N+1,lambda_pts);
T=zeros(2*N+1,lambda_pts);

% calcul de la matrice EE
EE=zeros(2*N+1,2*N+1,lambda_pts);
for p=-N:1:N
    for q=-N:1:N
        EE(p+(N+1),q+(N+1),:)=eps_fn(p-q,f,n_rd,n_gr);
    end
end
end

```

```

% FIN Initialisation des variables

% tracé du profil d'indice
if (tracer==1)
profil_d_indice(Delta,N,n,f,n_rd,n_gr);
end

switch polar
case 'TE'

    for l=1:1:lambda_pts

        E=EE(:,l); % matrice E pour la longueur d'onde courante
        K_x=diag(k_x(:,l)/k_0(l)); % calcul de la matrice K_x

        % calcul de la matrice A
        A=K_x^2-E;

        % diagonalisation
        [vectp, valp] = eig(A);
        q=sum(sqrt(valp),1);
        W=vectp;
        V=W*diag(q);

        % éléments matriciels
        X=diag(exp(-k_0(l)*q*d));
        Y_I=diag(k_Iz(:,l)/k_0(l));
        Y_II=diag(k_IIz(:,l)/k_0(l));

        % Calcul des coefficients de C
        Mat_c = [[i*Y_I*W+V, (i*Y_I*W-V)*X]; [-(i*Y_II*W-V)*X, -(i*Y_II*W+V)]];
        Vect_c = [i*(Y_I*kro_0+n_I(l)*cos(theta)*kro_0); zeros(2*N+1,1)];
        C = (Mat_c^-1)*Vect_c;
        cp = C(1:2*N+1);
        cm = C(2*N+2:4*N+2);

        %Coefficients de réflexion
        R(:,l)=W*(cp+X*cm)-kro_0;
        T(:,l)=W*(X*cp+cm);

    end

    % Calcul des efficacités de diffraction et phases (en degrés) à l'ordre 1
    RR=abs(R).^2; TT=abs(T).^2;
    DE_R=RR.*real(k_Iz./(mat_k_0.*mat_n_I*cos(theta)));
    DE_T=TT.*real(k_IIz./(mat_k_0.*mat_n_I*cos(theta)));
case 'TM'

    for l=1:1:lambda_pts

        E=EE(:,l); % matrice E pour la longueur d'onde courante

        K_x=diag(k_x(:,l)/k_0(l)); % calcul de la matrice K_x

```

```

% calcul de la matrice A=EB
inv_E=E^-1;
B=K_x*inv_E*K_x-eye(2*N+1);
A=(E*B);

% diagonalisation
[vectp, valp] = eig(A);
q          =sum(sqrt(valp),1);
W          =vectp;
V          =inv_E*W*diag(q);

% éléments matriciels
X          =diag(exp(-k_0(l)*q*d));
Z_I        =diag(k_Iz(:,l)/(k_0(l)*n_I(l)^2));
Z_II       =diag(k_IIz(:,l)/(k_0(l)*n_II(l)^2));

% Calcul des coefficients de C
Mat_c      =[[i*Z_I*W+V, (i*Z_I*W-V)*X];[-(i*Z_II*W-V)*X, -(i*Z_II*W+V)]];
Vect_c     =[i*(Z_I*kro_0+cos(theta)/n_I(l)*kro_0);zeros(2*N+1,1)];
C          =(Mat_c^-1)*Vect_c;
cp         =C(1:2*N+1);
cm         =C(2*N+2:4*N+2);

%Coefficients de réflexion
R(:,l)=W*(cp+X*cm)-kro_0;
T(:,l)=W*(X*cp+cm);

end

% Calcul des efficacités de diffraction et phases (en degrés)
RR=abs(R).^2; TT=abs(T).^2;
DE_R=RR.*real(k_Iz./(mat_k_0.*mat_n_I*cos(theta)));
DE_T=TT.*real((k_IIz./(mat_n_II.^2))./(mat_k_0*cos(theta)./mat_n_I));

otherwise

    error('ERREUR, choix invalide de polarisation dans l argument d entree.')
end

% Calcul des phases (en degrés) l'ordre 1
Phase_R=180/pi*angle(R(N+1,:));
Phase_T=180/pi*angle(T(N+1,:));

%DE=DE_R+DE_T;% Dans le cas de matériaux non absorbant cette variable doit valoir 1
%S=sum(DE);

if (tracer==1)
    figure(2)
    plot(lambda,(DE_R(N+1,:)))
    ylim([0 1])
    title('DE_R')

    figure(3)
    plot(lambda,(DE_T(N+1,:)))
    ylim([0 1])
    title('DE_T')

    figure(4)
    plot(lambda,Phase_R)
    ylim([-180 180])

```

```

    title('phase de la lumière réfléchie')

    figure(5)
    plot(lambda,Phase_T)
    ylim([-180 180])
    title('phase de la lumière transmise')
end

S=[DE_R(N+1,:).',Phase_R.',DE_T(N+1,:).',Phase_T.'];
end

function S = eps_fn(k,f,n_rd,n_gr)
%EPS_FN retourne le coefficient de Fourier d'ordre k de la permittivité
%dielectrique du reseau

if k==0
    S=(n_rd.^2)*f+(n_gr.^2)*(1-f);
else
    S=(n_rd.^2-n_gr.^2).*sin(pi*k*f)./(pi*k);
end

end

function profil_d_indice(Delta,N,n,f,n_rd,n_gr)
% Representation du profil d'indice sur la figure 1

% Initialisation
eps=zeros(2*N+1,1);
x_min=0;
x_max=5*Delta;
x_pts=800;
x=linspace(x_min,x_max,x_pts);

% Coefficients de Fourier de la permittivité dielectrique du reseau
for k=1:1:2*N+1;
    tmp=eps_fn(k-(N+1),f,n_rd,n_gr);
    eps(k)=tmp(1);
end

base=exp(i*(2*pi/Delta)*(n.*x));
epsilon=sum(diag(eps)*base,1);

figure(1)
plot(x,real(epsilon));
pause(.05);

end

```