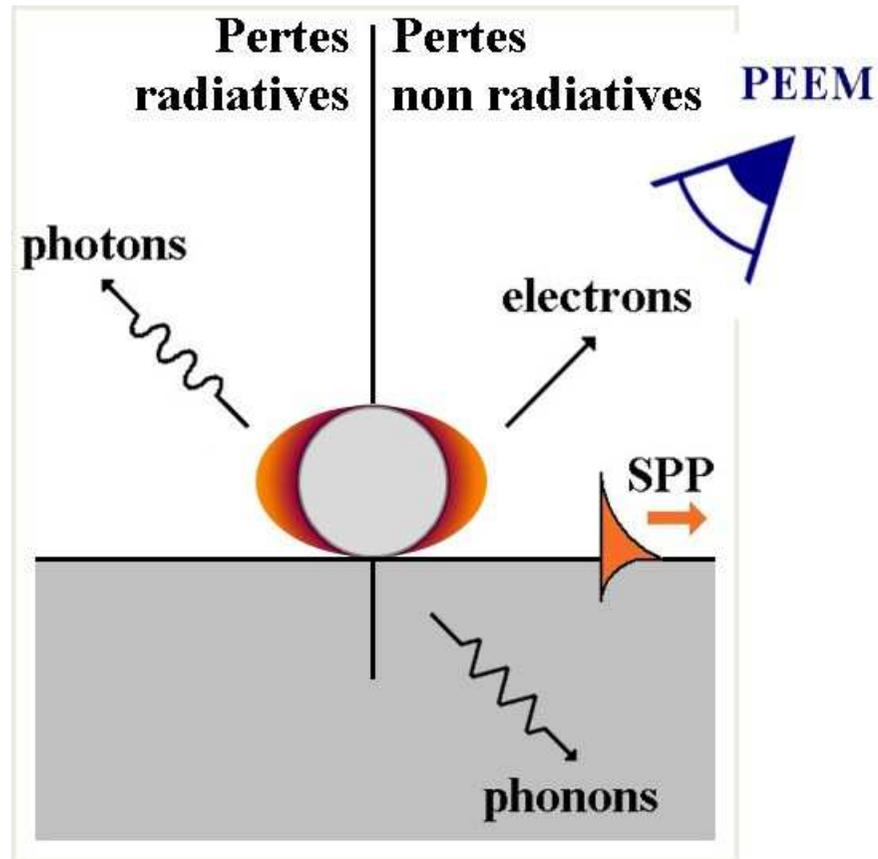


Photoémission non linéaire, un outil pour la plasmonique



S. Vassant, C. Fiorini,
F. Charra, **L. Douillard**
ludovic.douillard@cea.fr

CEA IRAMIS SPEC
UMR CNRS 3680
Université Paris-Saclay



Partenariat (i) CEA IRAMIS NIMBE UMR CNRS 3685 Univ. Paris-Saclay, F-91191 Gif sur Yvette iramis.cea.fr
(ii) Université de Technologie de Troyes ICD LNIO, F-10010 Troyes www-lnio.utt.fr
(iii) Institut d'Optique Graduate School LCFIO, F-91127 Palaiseau www.institutoptique.fr



Qu'est-ce que la plasmonique ?

➤ “A way to confine electromagnetic fields over dimensions on the order or smaller than the wavelength λ_{hv} ”

S. Maier in Plasmonics: Fundamentals and Applications (2007) Springer

➤ Interaction entre une onde électromagnétique et les électrons d'une surface métallique = **oscillation collective cohérente de charges**

➤ Ingrédients de base

(i) Plasmon-polariton de surface (*surface plasmon-polariton SPP*) - Interface métal / diélectrique – Mode hybride entre un photon et une onde de polarisation à la surface d'un métal – Mode propagatif dans le plan d'interface, évanescence suivant la normale au plan d'interface,

(ii) Plasmon-localisé (*localised surface plasmon LSP*) – Objet de dimension sub-longueur d'onde – Mode non propagatif.

➤ Promesse(s) de la plasmonique

(i) haute intégration spatiale $\lambda_{hv} / 10 \sim 60 \text{ nm}$ (visible)

(ii) haute fréquence de travail $\nu \sim 10^{14} \text{ Hz} = 10^5 \text{ GHz}$ (visible)



Plasmon-polariton de surface (SPP)

Propriétés fondamentales

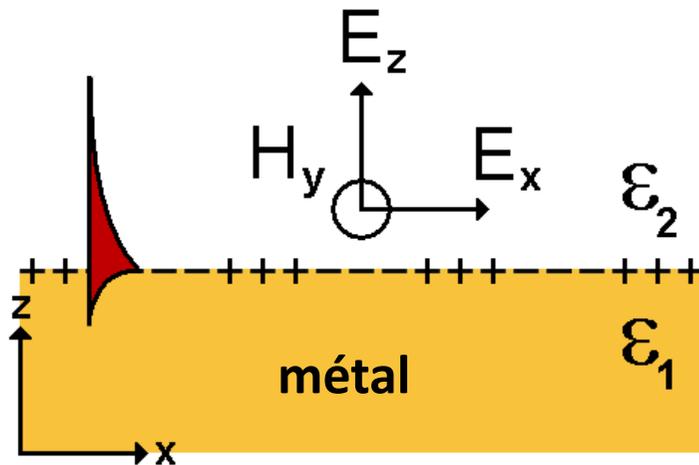
En termes de charges

.Fluctuation longitudinale cohérente de charges, oscillation de charges au voisinage du plan d'interface métallique (longueur d'écrantage de Thomas-Fermi $\sim 0.05 \text{ nm} = 0.5 \text{ \AA}$)

En termes de champs

.Onde propagative k_x suivant la direction du plan de surface Ox

.Onde évanescente k_z suivant la normale au plan de surface Oz (cas Au-Vide épaisseur de peau $\delta_{\text{peau}} \sim 30 \text{ nm}$ coté métal, 650 nm coté vide à $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$)

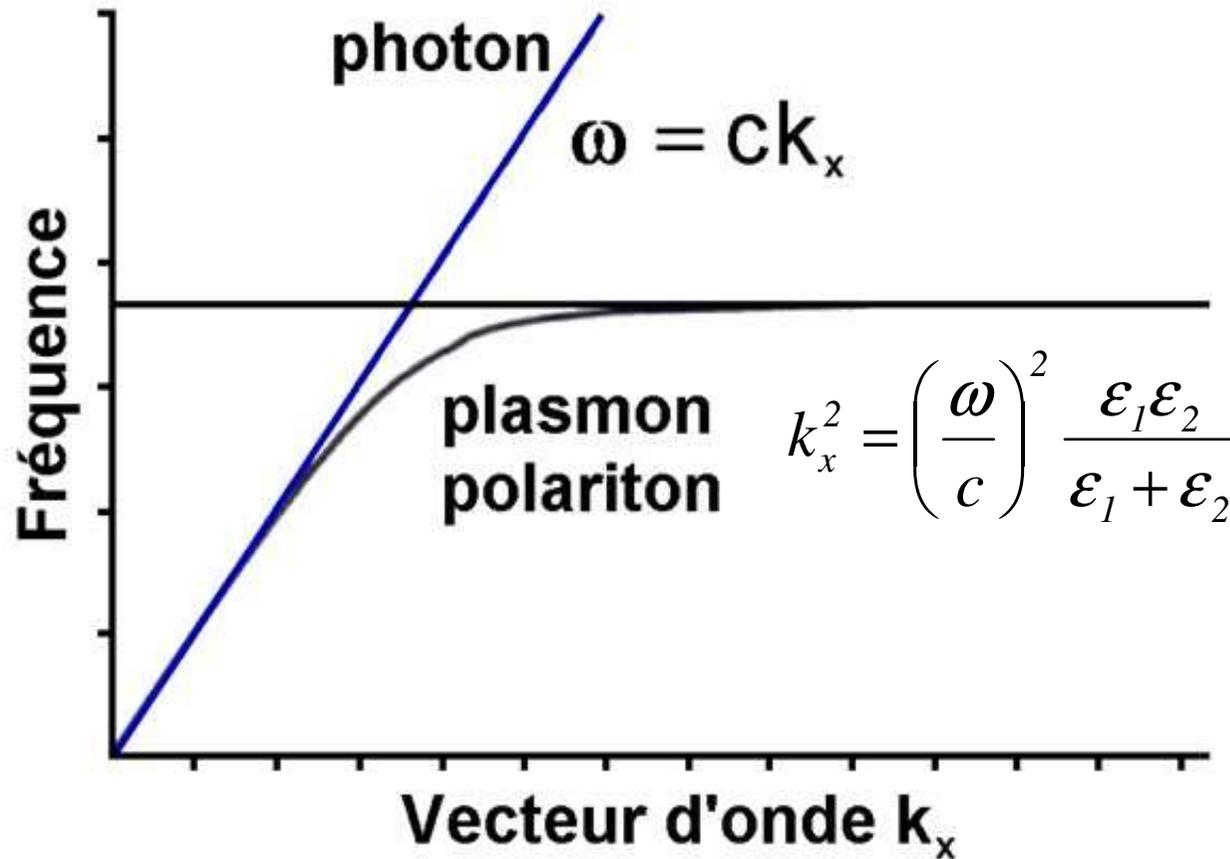


$$E_{\text{SPP}}(x, z) = E_0 \exp(ik_x x - k_z |z|)$$



Plasmon-polariton de surface (SPP)

Courbe de dispersion



- Courbe de dispersion à droite de la ligne de lumière $\omega = c.k_x$
- Non directement excitable par une OEM sur un plan, besoin d'un lanceur Δk



Plasmon localisé (LSP) – Optique de nano-objets

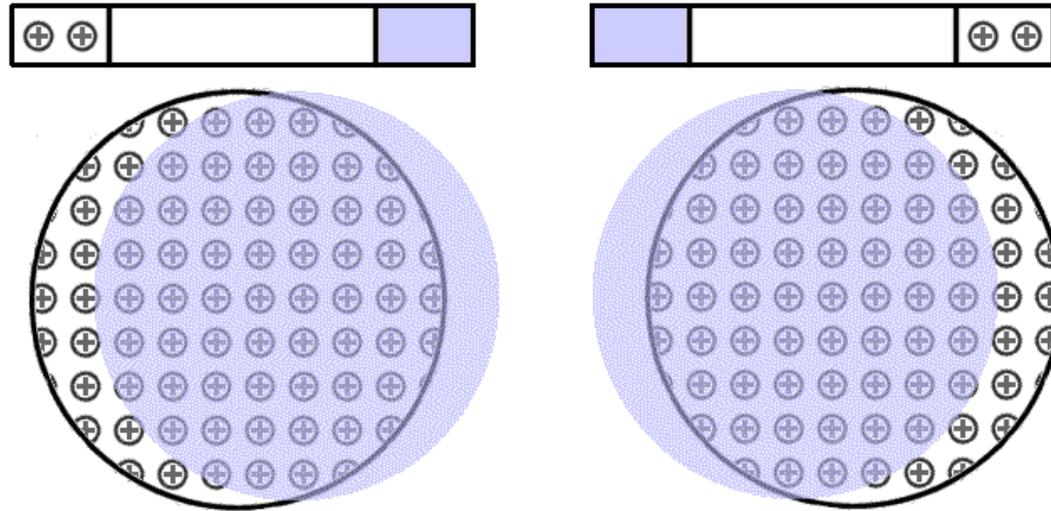
Propriétés fondamentales

➤ Résonance de Mie. G. Mie, *Ann. Phys. Leipzig* **25** (1908) 377

\vec{E} Champ électrique



Oscillation de charges



⊕ ⊕ Charges positives (noyaux)

Charges négatives (électrons de conduction) ■

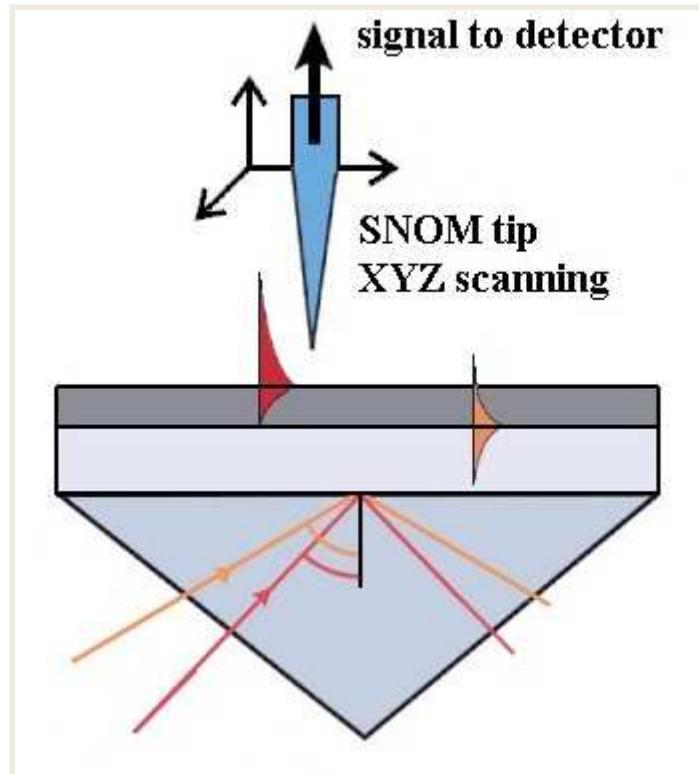
Fluctuation de charges = **Oscillateur harmonique** = **Dipôle électrique**

Cas d'une sphère métallique de rayon r , $r \sim 10...100 \text{ nm} \ll \lambda$ (OEM IR, visible)

Résonance plasmon à la fréquence $\omega = \omega_p / \sqrt{3}$, ω_p fréquence plasma du métal.

Cartographie du champ proche à l'échelle du nanomètre

SNOM - scanning near-field optical microscopy (1984)



➤ Principe

.microscopie à balayage de sonde (*scanning probe microscopy SPM*)

.introduction d'une pointe (fibre optique, métal...) dans le champ proche optique de l'objet à étudier - **méthode intrusive**

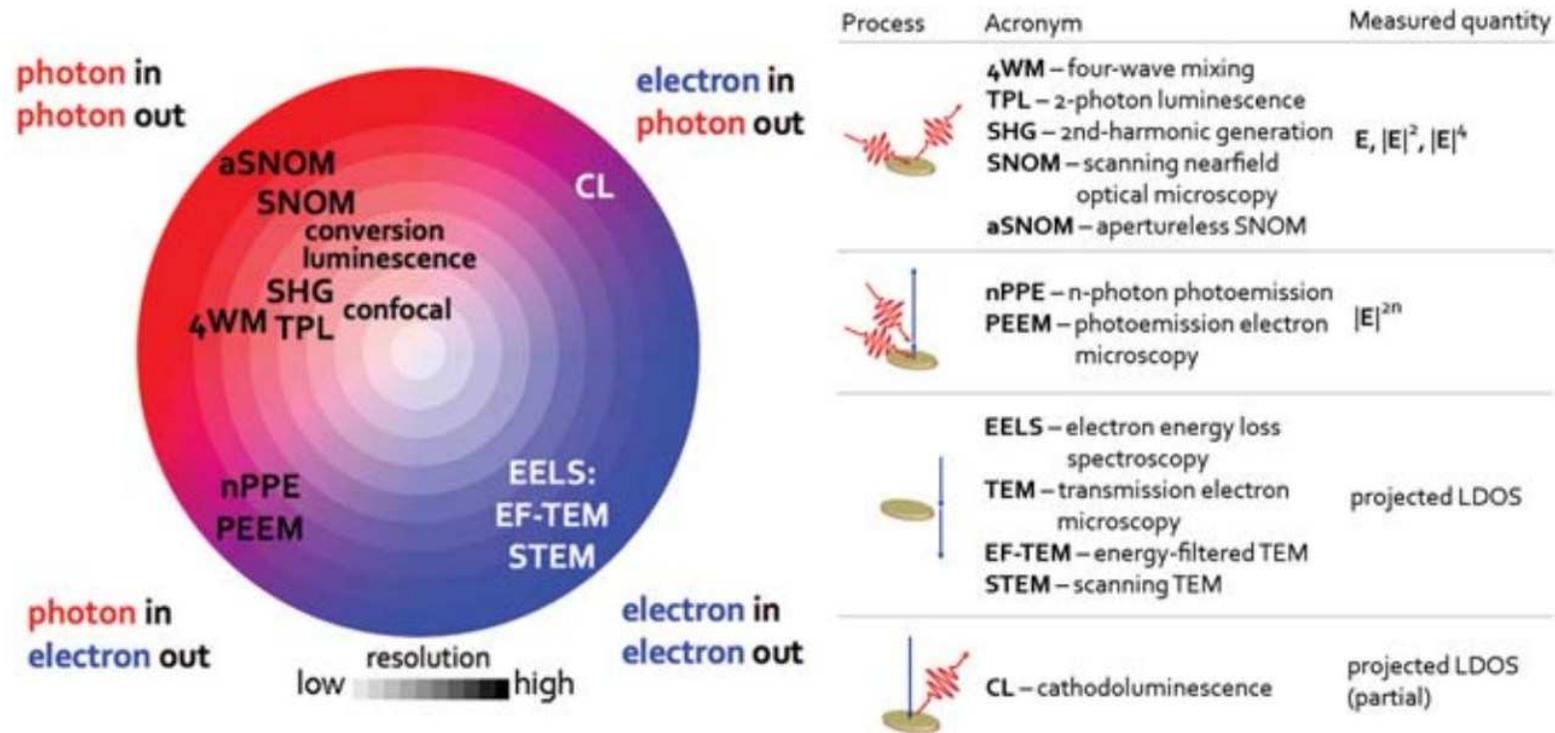
.nombreuses variantes suivant conditions d'illumination & de collection du signal

.résolution latérale 30 - 100 nm

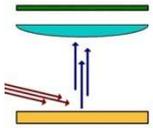
- Possible perturbation du champ évanescent par excitation de LSP, par effet de pointe au niveau de la jonction pointe-surface
- Faible reproductibilité des pointes-sondes

Cartographie du champ proche à l'échelle du nanomètre

Méthodes alternatives non intrusives

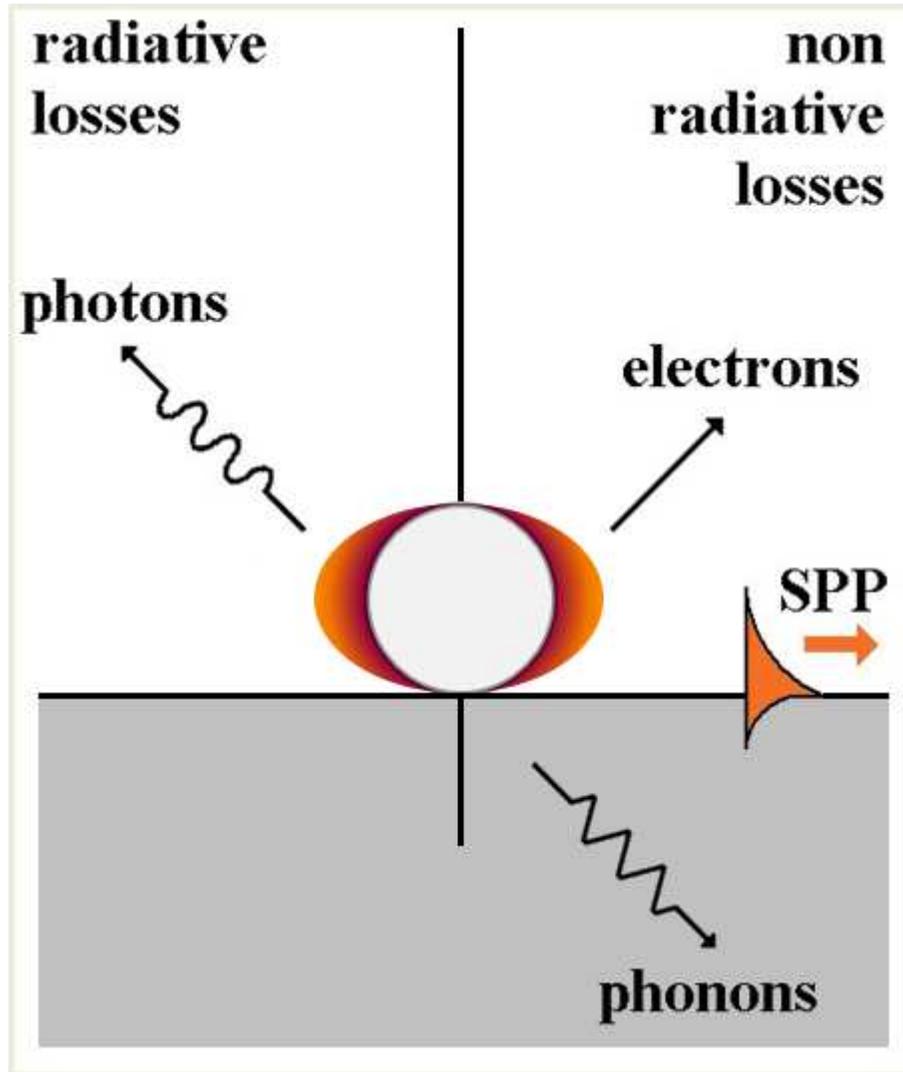


- STEM EELS *scanning transmission microscopy in electron energy loss spectro. mode* (excitation électron, détection électron) = **Cartographie d'une perte d'énergie d'électrons**
- CL *cathodoluminescence* (excitation électron, détection photon) apparentée au EELS
- PEEM *photoemission electron microscopy*, n-PPE *n photon photoemission* (excitation photon, détection électron)



Cartographie du champ proche à l'échelle du nanomètre

Canaux de désexcitation d'un plasmon de surface



➤ Canaux de désexcitation d'un plasmon de surface

.pertes radiatives (diffusion, luminescence),

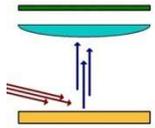
.pertes non radiatives
pertes ohmiques (phonons),
excitations secondaires SPP,
émission d'électrons,

...

➤ **Cartographier le champ proche optique via l'émission d'électrons.**

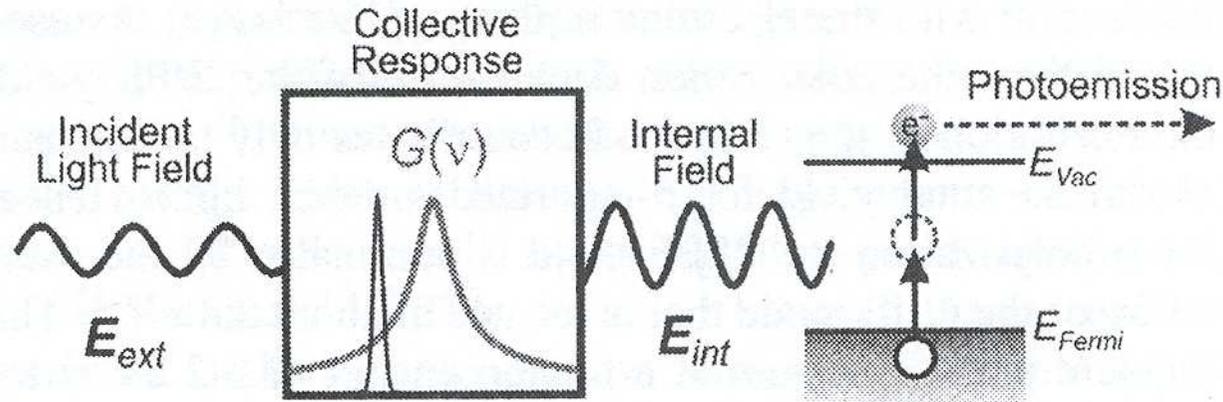
High-resolution mapping of plasmonic modes: photoemission and scanning tunnelling luminescence microscopies

L. Douillard, C. Charra, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44** (2011) 464002



Micros. de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique

Principe physique



(i) Effet photoélectrique exalté dans le champ plasmonique, réponse collective des e^- du solide. Champ interne E_{int} .

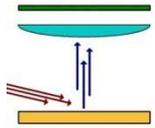
$$E_{int.}(v) = G(v) \cdot E_{exc.}(v), \quad G_{Sphère} = \frac{3\epsilon_m}{\epsilon + 2\epsilon_m}$$

$E_{int.}$ Champ électrique interne [V/m]
 G Fonction réponse collective des électrons []
 $E_{exc.}$ Champ électrique exciteur [V/m]

(ii) Photoémission non linéaire
 Plasmon $E_{plasmon} \approx 1,55$ eV (NIR 800 nm)
 Travail de sortie $\Phi_{métaux\ noble} \approx 4,5$ eV

$$n \cdot h\nu > \Phi_{métal}$$

n Ordre de non linéarité []
 $h\nu$ Energie du photon [eV]
 $\Phi_{métal}$ Travail de sortie du métal [eV]



Micros. de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique

Principe physique

- Le processus de photoémission non linéaire est proportionnel au champ électrique interne E_{int} (réservoir d'électrons, photoémission de surface)
- Absorption multiphotonique en cascade \neq Absorption cohérente multiple

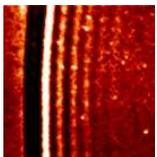
$$I_{e^-} \propto (\vec{E}_{\perp, \text{int.}})^{2n} \propto (\vec{p} \cdot \vec{E}_{\text{int.}})^{2n} \propto (\vec{p} \cdot G \vec{E}_{\text{ext.}})^{2n}$$

\vec{p} qte de mouvement d'un électron [kg.m/s]
 E_{int} champ électrique interne [V/m]

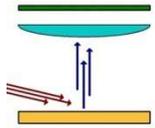
n ordre de non linéarité []
 $E_{\text{ext.}}$ champ électrique externe [V/m]

Sur des objets étendus $\geq \lambda_{\text{hv}}$, le champ interne d'origine plasmonique

$\vec{E}_{\text{int.}}^{SPP}(r, t)$ (vitesse de groupe v_{SPP}) interfère avec le champ excitateur incident
 $\vec{E}_{\text{int.}}^{hv}(r, t)$ (vitesse de groupe $c / \text{indice milieu}$).

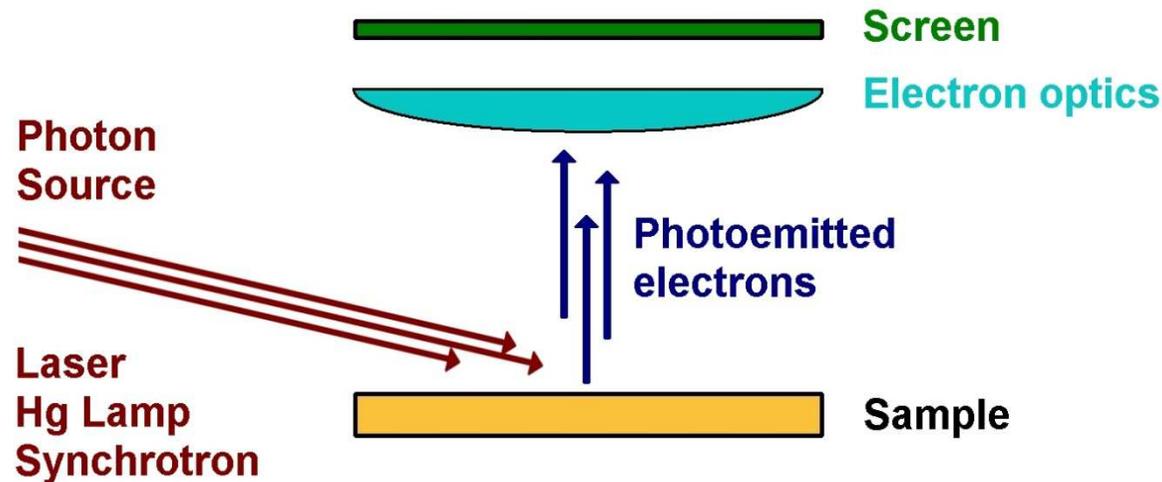


- Observation de figures de battement entre $(\vec{E}_{\text{int.}}^{SPP}(r, t), \vec{E}_{\text{int.}}^{hv}(r, t))$
 Cf. exemples de suivi de propagation de plasmons - polaritons



PEEM – photoemission electron microscopy (1933)

Instrumentation



➤ **Principe. Cartographie de la distribution des électrons photoémis (excitation photon, détection e⁻)**

.optique électronique standard (lentilles électrostatiques & magnétiques)

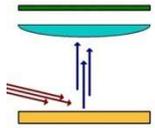
.**méthode non intrusive**, aucune sonde physique dans l'espace de mesure (\neq SNOM)

.microscopie plein champ (pas de balayage de sonde)

.contraste par travail de sortie Φ (faible énergie), raies de photoémission ($h\nu$ grande énergie)

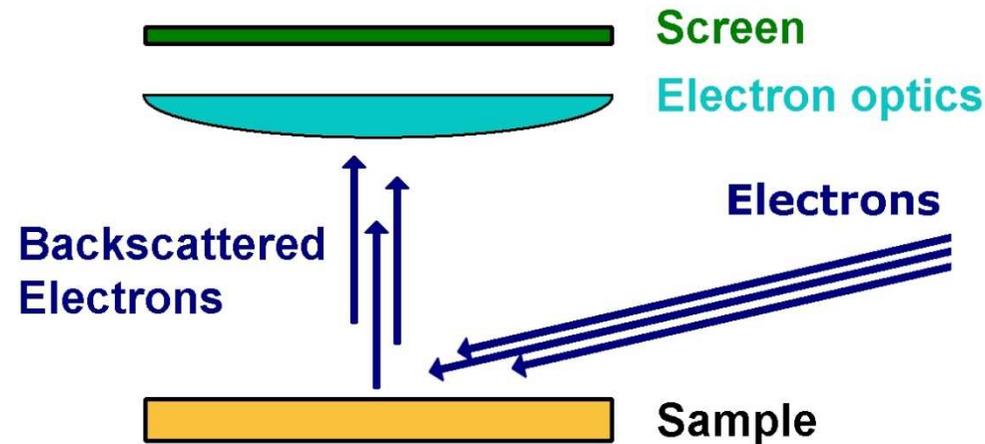
.résolution latérale (critère 16/84) 20 nm (\leq 5 nm sur instruments AC)

.sensibilité de surface \sim libre parcours moyen inélastique



LEEM – low energy electron microscopy (1962)

Instrumentation



➤ **Principe. Cartographie des électrons diffractés/diffusés par une surface (excitation e^- , détection e^-)** – Imagerie topographique. LEEM = TF(LEED + phase)

.optique électronique standard (lentilles électrostatiques & magnétiques)

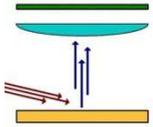
.**méthode non intrusive**, aucune sonde physique dans l'espace de mesure (\neq SNOM)

.microscopie plein champ (pas de balayage de sonde)

.contraste = diffraction (fac. de structure), phase (interférences de chemins optiques e^-)...

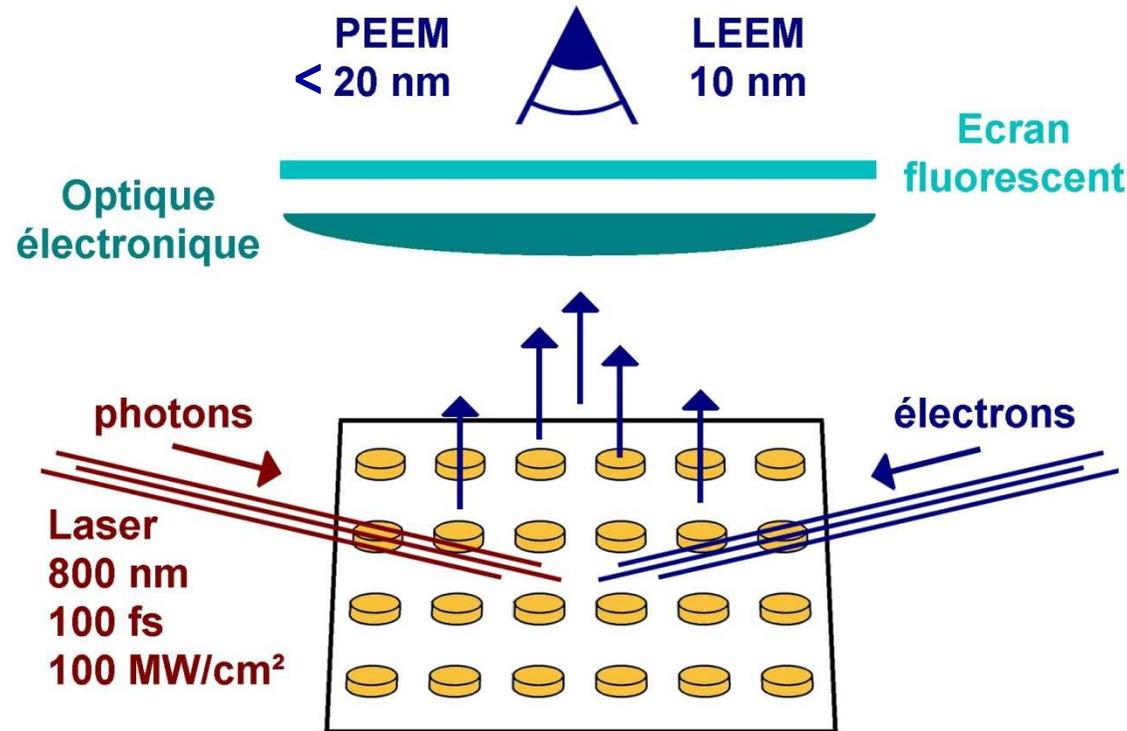
.résolution latérale (critère 16/84) 10 nm (\leq 2 nm sur instruments AC)

.sensibilité de surface \sim libre parcours moyen inélastique



Cartographie du champ proche à l'échelle du nanomètre

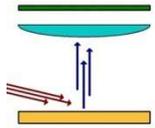
Instrument LEEM / PEEM CEA IRAMIS



- Source LASER Ti:Al₂O₃, 140 fs, long. d'onde [700, 1100 nm] (NIR) + OPO [520, 650 nm] (Vis), angles d'incidence {-90°, -45°, +3°, +15°, +90°} / plan échantillon

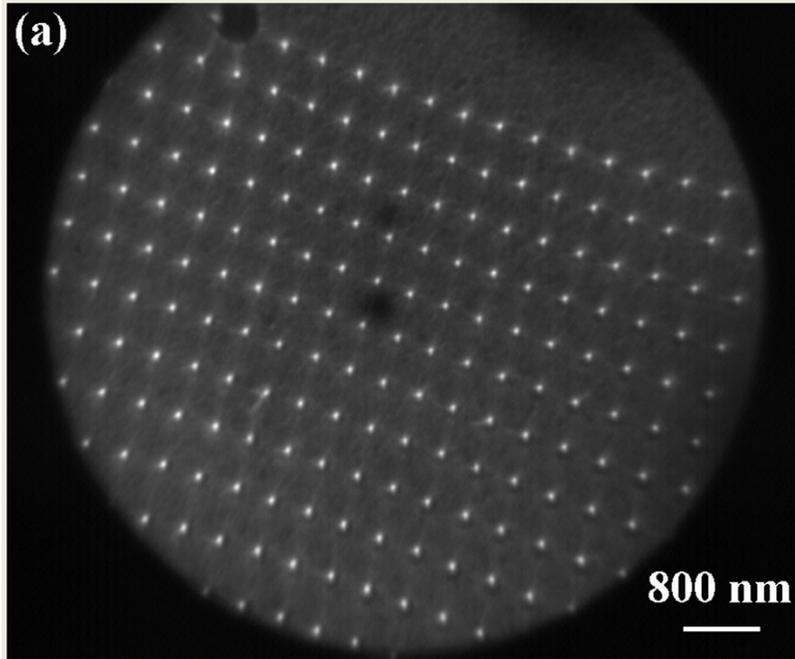
Résolution spectrale ≤ 5 nm (10 meV ds NIR)

- Microscope SPELEEM III (03/2016) www.elmitec-gmbh.com
Imagerie PEEM champ de vue 1 - 120 μm, résolution spatiale (16/84) < 20 nm (≤ 5 nm AC)
Imagerie LEEM champ de vue 1 - 80 μm, résolution spatiale (16/84) 10 nm (≤ 2 nm AC)



Cartographie du champ proche optique - PEEM

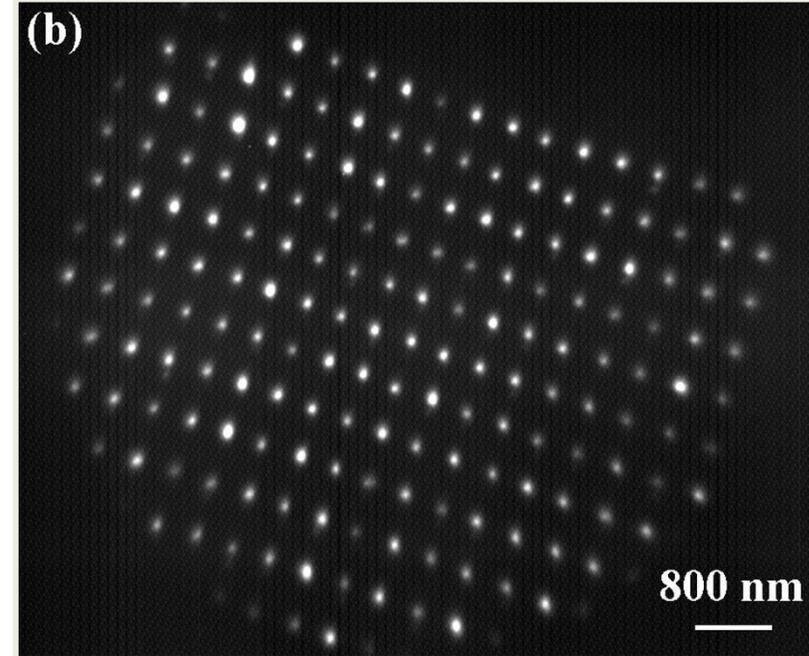
Assemblage d'objets nanométriques - LSP



Disques Au \varnothing 120 nm / ITO, pas 400 nm (UT Troyes)

➤ **Imagerie LEEM (mode topographique)**

Excitation = électrons (pas de LASER),
Détection = électrons rétrodiffusés.



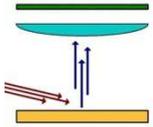
Disques Au/ITO, incidence rasante p pol. 150 MW/cm²

➤ **Imagerie PEEM sous illumination LASER**

Excitation = photons 766 nm,
 $h\nu$ (1.62 eV) < Φ_{Au} (4.6 - 5.1 eV),
Détection = photoélectrons ! (3 $h\nu$ / e^-)
Rapport signal sur bruit important

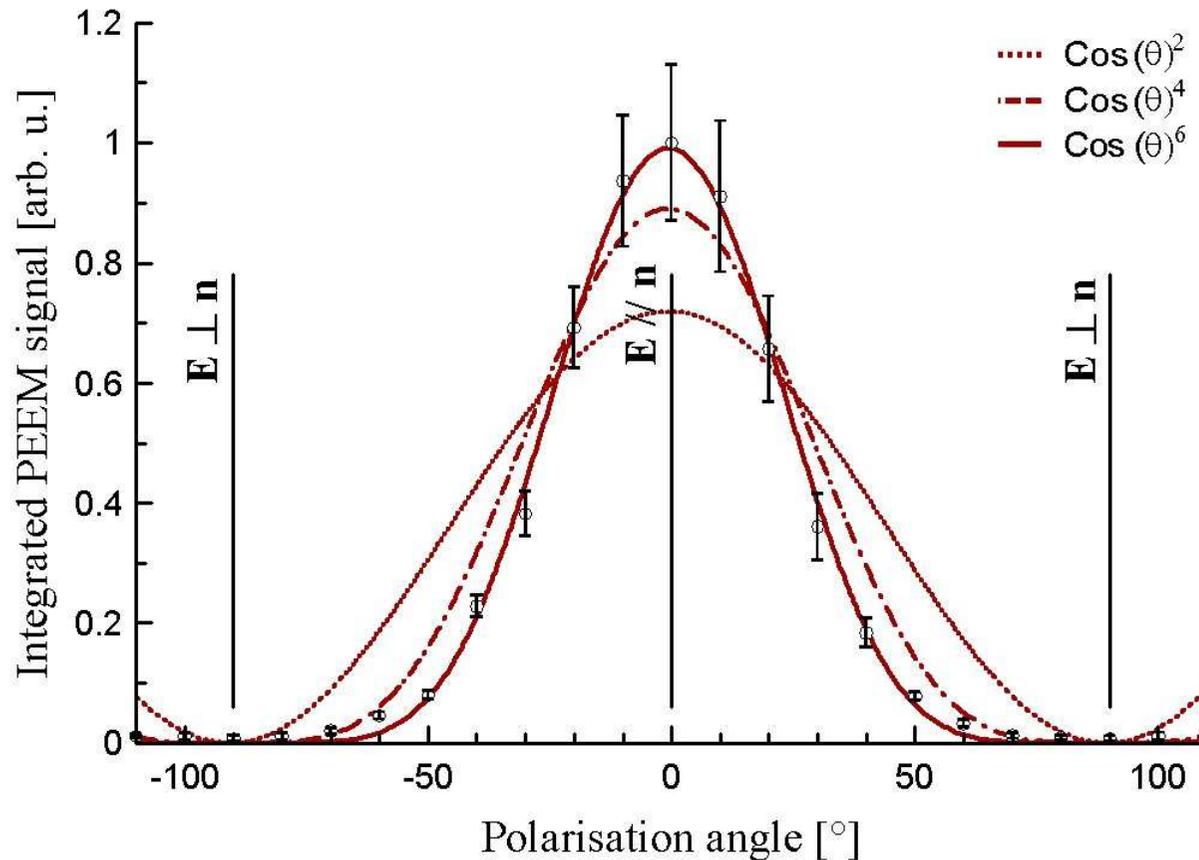
Optical properties of metal nanoparticles as probed by photoemission electron microscopy

L. Douillard *et al.* *J. of Appl. Phys.* **101** (2007) 083518



Photoémission non linéaire - PEEM

Assemblage d'objets nanométriques – Polarisation hors plan



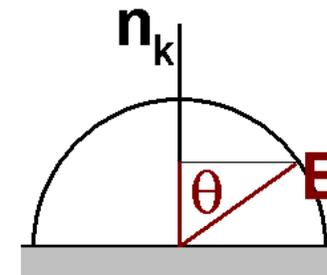
Disque Au \varnothing 120 nm / ITO

incidence rasante 17°

photon 880 nm (1.41 eV)

dens. puis. 140 MW/cm²

Facteur de Keldysh $36 \gg 1$

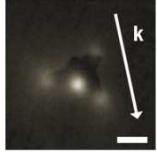


➤ Dépendance du signal de photoémission avec l'angle de polarisation hors plan θ sous incidence rasante

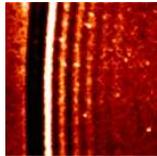
.signal PEEM $\propto (\cos \theta)^6$

.*processus de photoémission à trois photons* ($3 \cdot 1.41 \text{ eV} = 4.23 \text{ eV}$, $\Phi_{\text{Au plan}} = 4.6 \text{ eV}$)

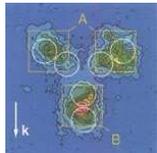
Microscopie de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique



- **Cartographie HR du champ proche optique aux échelles nanométriques - Plasmonique d'objets nanométriques, sources d'électrons chauds**

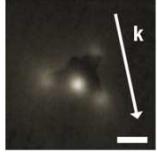


- **Dynamique de plasmons-polaritons (nm, fs)**

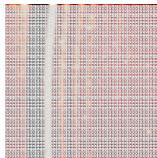


- **Manipulation du champ proche optique**
 - .contrôle cohérent par déphasage d'impulsions croisées
 - .contrôle cohérent par mise en forme d'impulsions

Microscopie de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique



- Cartographie HR du champ proche optique aux échelles nanométriques - Plasmonique d'objets nanométriques, sources d'électrons chauds



- Dynamique de plasmons-polaritons (nm, fs)



- Manipulation du champ proche optique
 - .contrôle cohérent par déphasage d'impulsions croisées
 - .contrôle cohérent par mise en forme d'impulsions



Plasmonique de nanotriangles équilatéraux D_{3h}

Lithographie électronique & Synthèse colloïdale

➤ Approche ascendante

Synthèse colloïdale par réduction de sels Au - CEA NIMBE S. Marguet & UTT LNIO
H. Yockell-Lelièvre

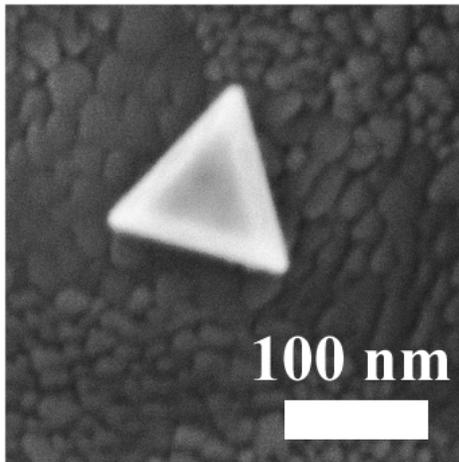
➤ Approche descendante

Nanofabrication par lithographie électronique EBL - UTT LNIO A. Perron

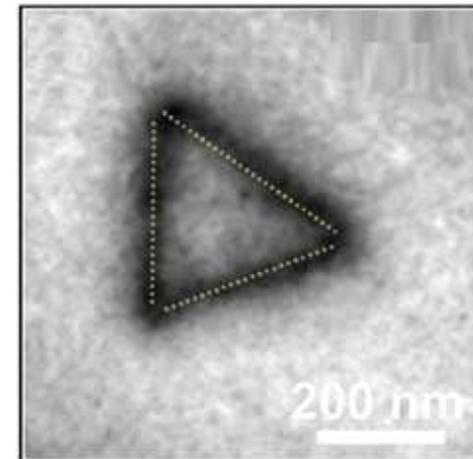
Nature: Au sur primaire d'adhésion 5 nm TiO_2

Géométrie: 100 nm < hauteur < 300 nm, épaisseur 50 nm

Substrat: 40 nm d'oxyde d'indium-étain ITO sur verre flotté SiO_2



Triangle colloïdal
120 x 50 nm, MEB

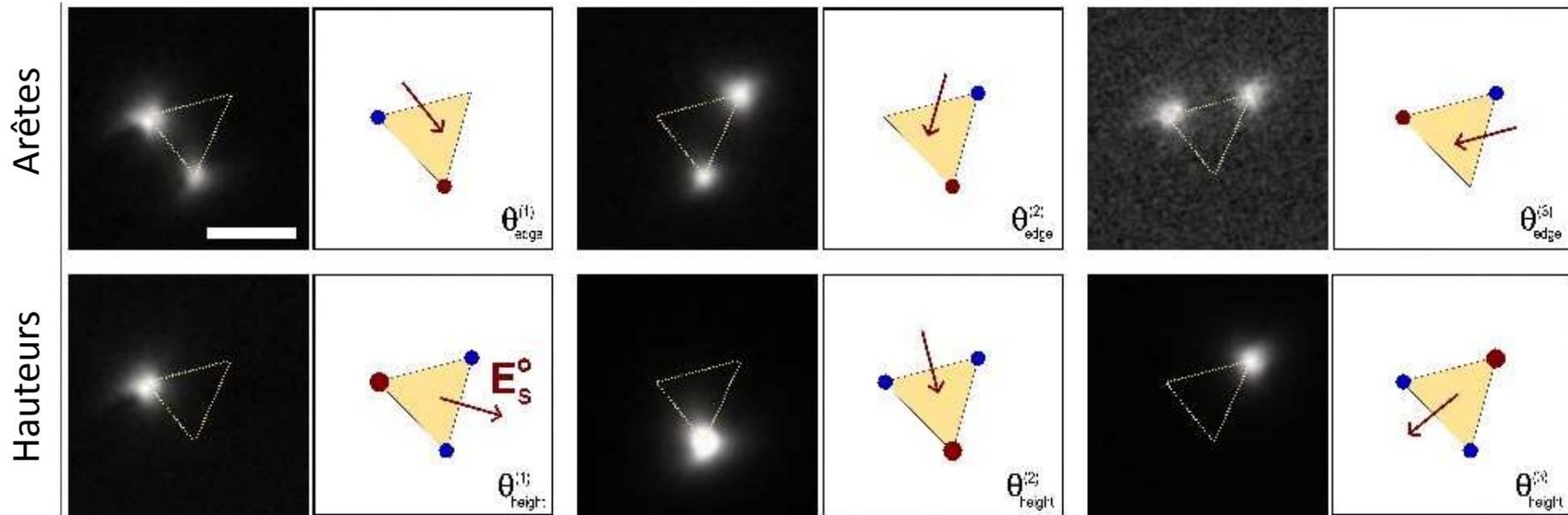


Triangle EBL
300 x 50 nm, LEEM



Plasmonique de nanotriangles D_{3h} - PEEM

Adressage sélectif des modes dipolaires



Triangle Au EBL 200 nm - Mode dipolaire E' - Imagerie PEEM & Théorie des groupes

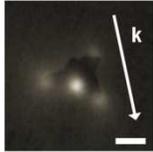
- Adressage sélectif des modes dipolaires de symétrie E' via la polarisation de la source d'excitation = Contrôle du diagramme de radiation d'antennes D_{3h}
- Levée de la dégénérescence des modes E' via la polarisation d'excitation

Selective excitation of plasmon resonances of single **Au triangles** by polarization-dependent light excitation

C. Awada *et al.* *J. Phys. Chem. C* **116** (2012) 14591

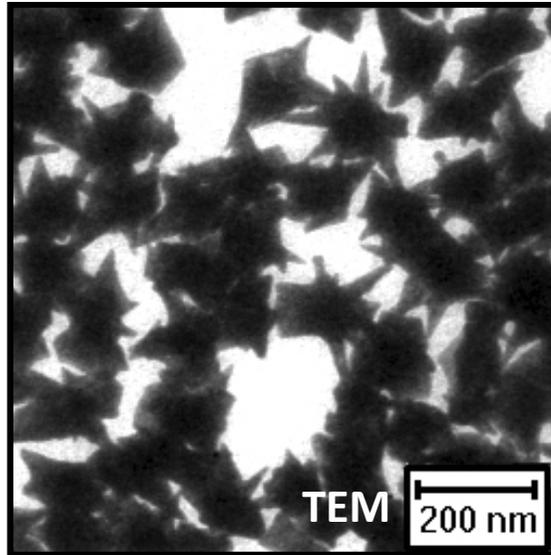
Near-field localization of single **Au cubes**, a group theory description

S. Mitiche *et al.* *J. Phys. Chem. C* **121** (2017) 4517



Plasmonique d'objets nanométriques

Nanoétoiles colloïdales



➤ Nanoétoiles Au colloïdales

Coeur sphérique hérissé de 5 à 8 pointes,
Diamètre moyen 120 – 140 nm,
Rayon de courbure des pointes 5 nm,
Objets 3D monocristallins pentamaclés,

Synthèse par chimie colloïdale,
Dépôt sur substrat ITO (indium tin oxide).

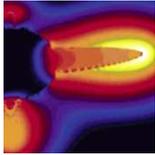


Source F. Jäckel Ludwig-Maximilians-Universität
München, Allemagne

- **Intérêt.** Sous excitation optique, obtention de points chauds d'origine plasmonique, i.e. zones de forte exaltation du champ proche optique au niveau des pointes, $E_{\text{ext}}/E_0 \sim 100$ pour un rayon de courbure $\varnothing \sim 5 - 10$ nm
- **Application.** Support de spectrométrie SERS *surface enhanced Raman spectrometry* pour détection de molécules individuelles $(E_{\text{ext}}/E_0)^4 \sim 1 \cdot 10^8$

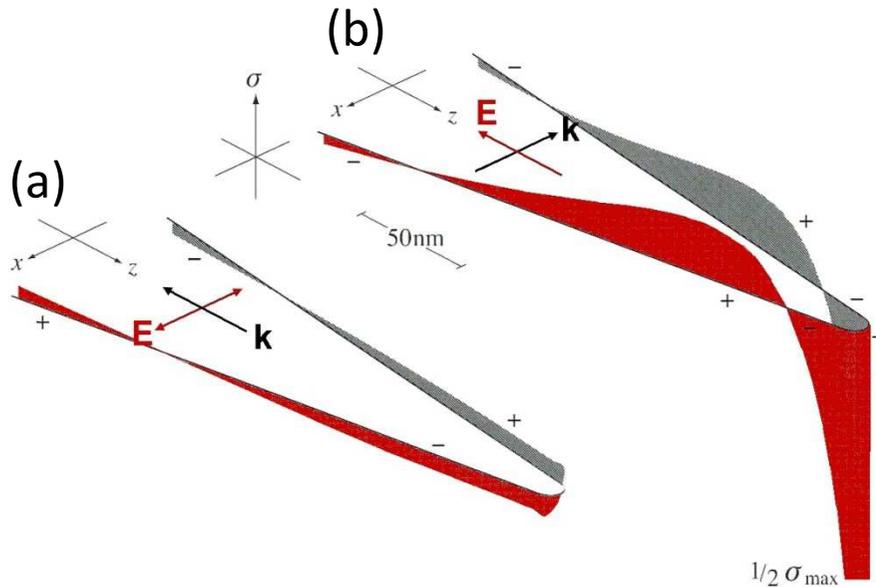
Single gold nanostars enhance Raman scattering

C. Hrelescu, APL **94** (2009) 153113



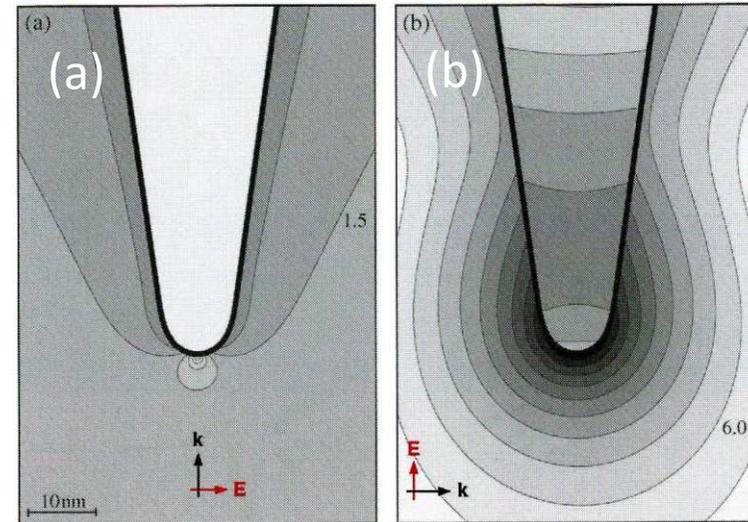
Résonance plasmon d'une pointe métallique Au

Aspects théoriques – *Multiple multipole Method (MMP)*



Densité de surface de charge induite sous excitation $\lambda = 810 \text{ nm}$

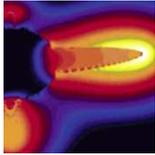
- (a) Polarisation transverse (extrémité = nœud)
- (b) Polarisation axiale (extrémité = ventre)



Cartographie du champ proche sous excitation $\lambda = 810 \text{ nm}$. Lignes de niveau x2,
 (a) Polarisation transverse, (b) Polarisation axiale.

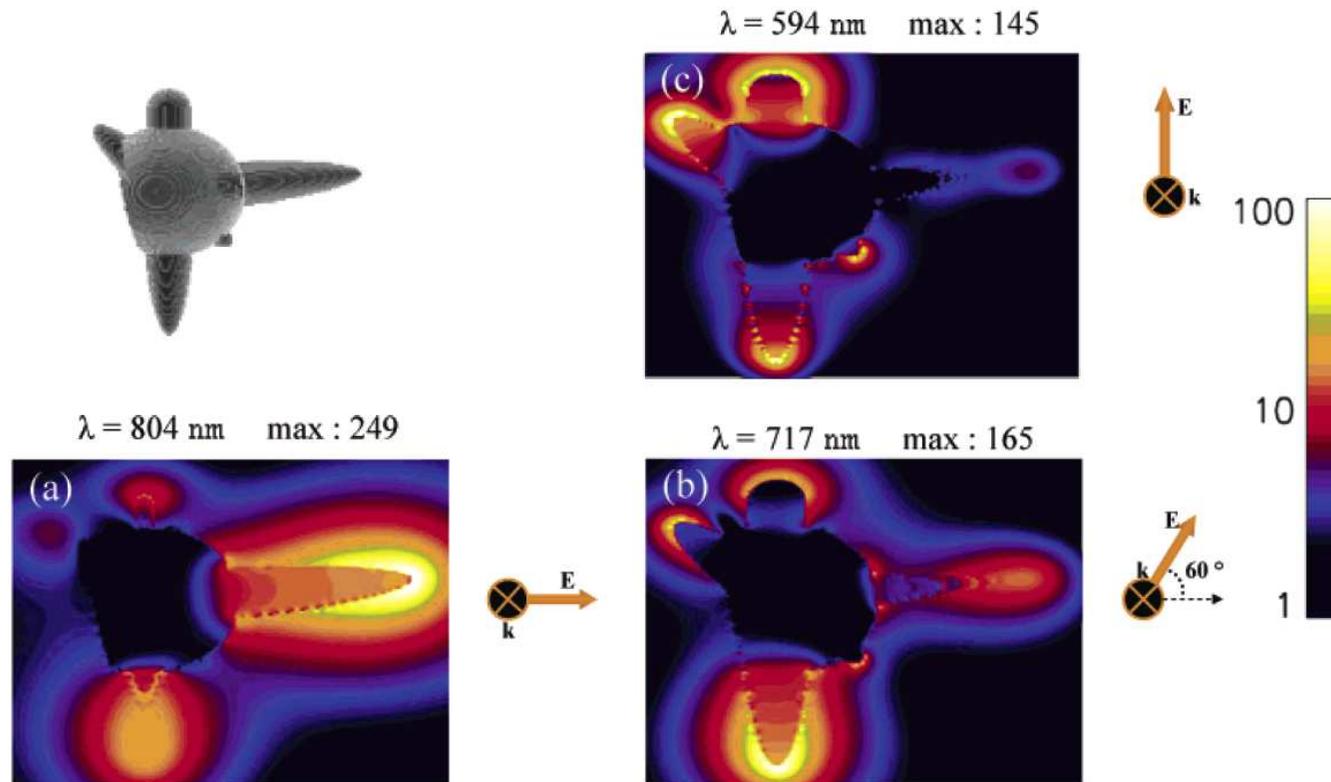
Excitation optique d'une pointe métallique optimale en polarisation axiale

- Forte accumulation de charges induites en extrémité de pointe
- Forte exaltation du champ proche en extrémité de pointe.



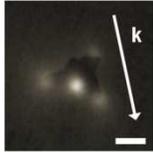
Plasmonique d'objets nanométriques - Nanoétoile Au

Théorie – Simulation *finite-difference time-domain (FDTD)*



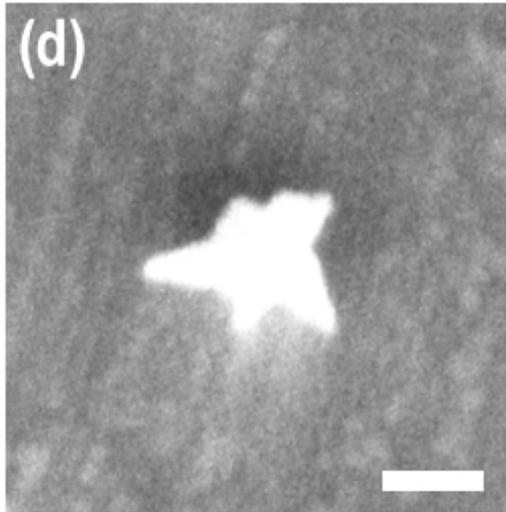
Cartographie du facteur d'exaltation d'une nanoétoile Au (cœur sphérique + pointes ellipsoïdales) de 100 nm de diamètre sous excitation optique

- Fortes dépendances en **polarisation & longueur d'onde**,
- Facteur d'exaltation du champ $E_{int}/E_0 \sim 1 - 20$, $E_{ext}/E_0 \sim 10 - 100$.

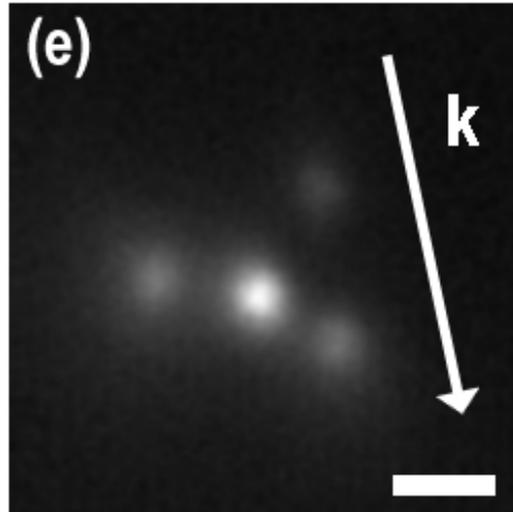


Plasmonique d'objets nanométriques – MEB / PEEM

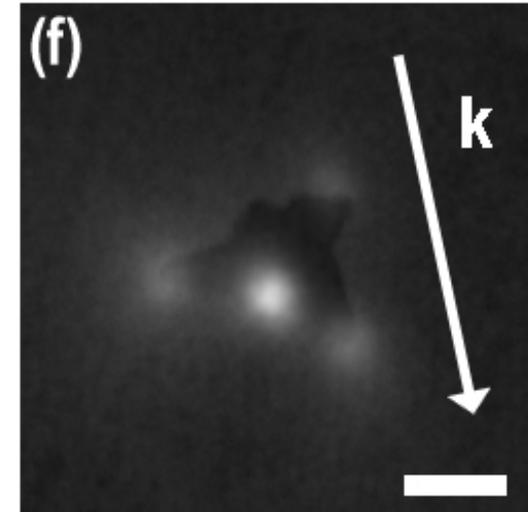
Nanoétoile & Points chauds



MEB – Topographie
échelle 100 nm



PEEMs – Champ proche
Long. d'onde 780 nm inc. 15° p
Long. d'onde 860 nm inc. 15° p - 42°



**MEB + PEEMs
superposition**

- Points chauds d'origine plasmonique aux extrémités des pointes
- Estimations du facteur d'exaltation
Signal PEEM / Signal d'une surface plane Au (res. pôle + effet de pointe)

$$E_{int}/E_0 = 8 \pm \text{grande incertitude} \quad E_{ext}/E_0 \sim 80$$

$$\text{RAMAN } E_{ext}/E_0 \sim 50 - 75 \text{ (LMU Munchen, APL 94 (2009) 153113)}$$

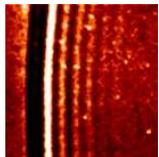
Selective excitation of individual plasmonic hotspots at the tips of single gold nanostars

C. Hrelescu *et al.* *Nano Lett.* **11** (2011) 402

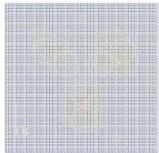
Microscopie de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique



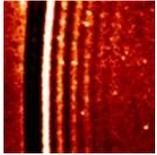
➤ Cartographie HR du champ proche optique aux échelles nanométriques - Plasmonique d'objets nanométriques



➤ **Dynamique de plasmons-polaritons (nm, fs)**

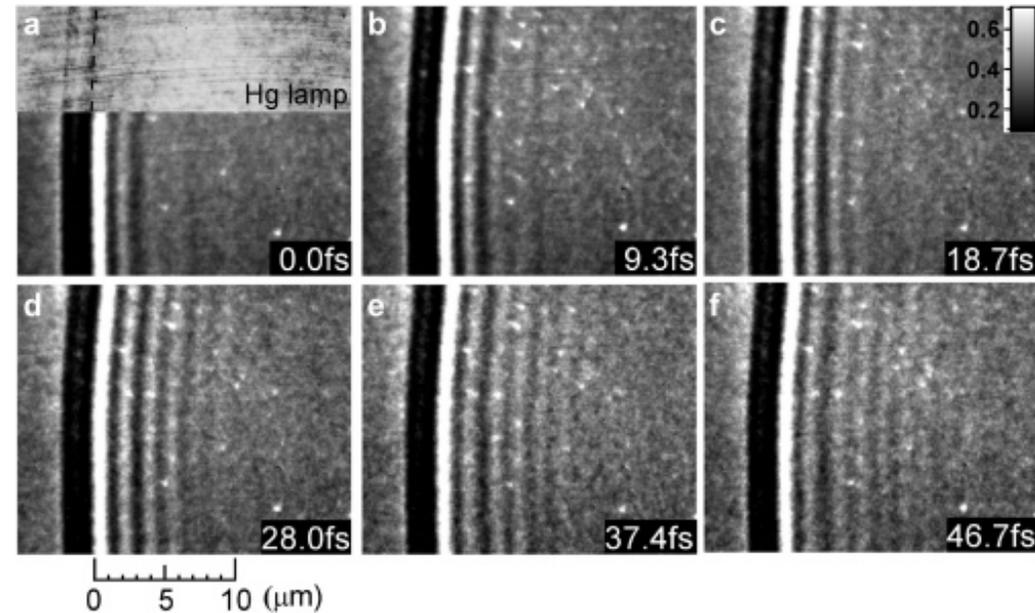
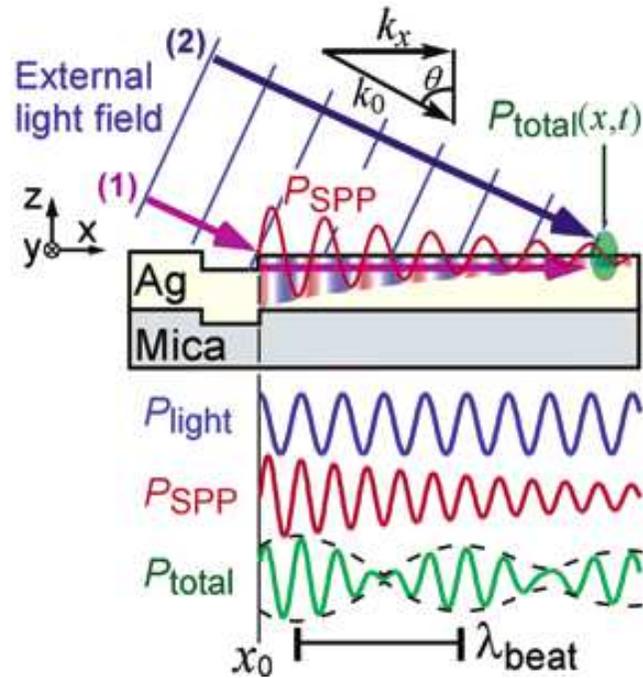


➤ Manipulation du champ proche optique
.contrôle cohérent par déphasage d'impulsions croisées
.contrôle cohérent par mise en forme d'impulsions



Propagation de plasmons-polaritons (nm, fs) – PEEM

Symétrie 2D – Expérience pompe-sonde - Interface Ag / vide

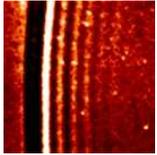


(i) Interface Ag/vide (ii) Excitation 400 nm@100 mW, 10 fs, incidence 65°/ ⊥, pol. p (iii) PEEM focus GmbH

➤ Propagation d'un plasmon - polariton à partir des fronts de marche du film Ag (conservation \vec{k})

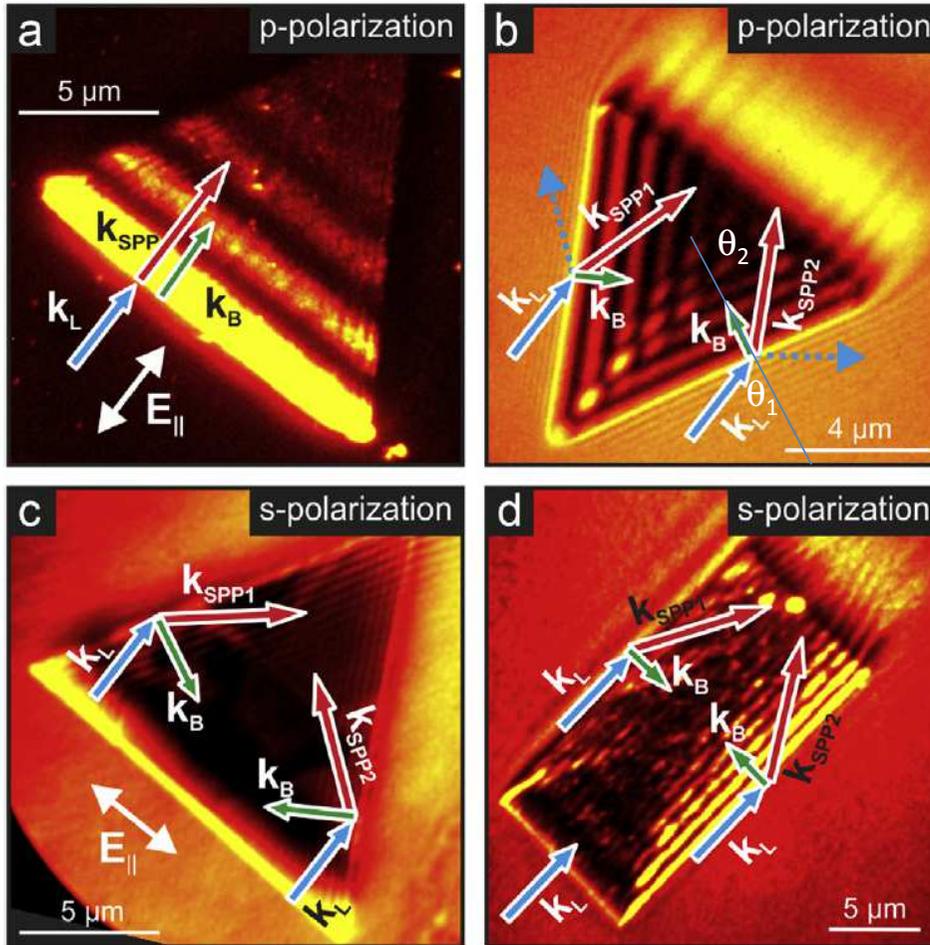
Processus de photoémission à 2 photons $2 \times 3.1 = 6.2 \text{ eV} > \Phi_{\text{Ag}} = 4.2 \text{ eV}$

Résolutions temporelle = 1 fs (expérience pompe-sonde), et spatiale = 40 nm



Propagation de plasmons-polaritons – PEEM

Symétrie 2D – Loi Snell-Descartes - Interface Ag / vide



➤ Loi de Snell-Descartes

- .Triangle Ag / Si(111)
- .PEEM 2 photons

- Onde incidente $k_{//}$, milieu n_{vide}
- Onde SPP k_{SPP} , milieu n_{Ag}
- Figure de battements k_B (Moiré)

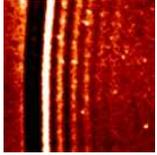
$$\vec{k}_B = \vec{k}_{\text{SPP}} - \vec{k}_{//}$$

$$k_{//} \cdot \sin(\theta_1) = k_{\text{SPP}} \cdot \sin(\theta_2)$$

➤ Validation de la loi Snell-Descartes pour la réfraction

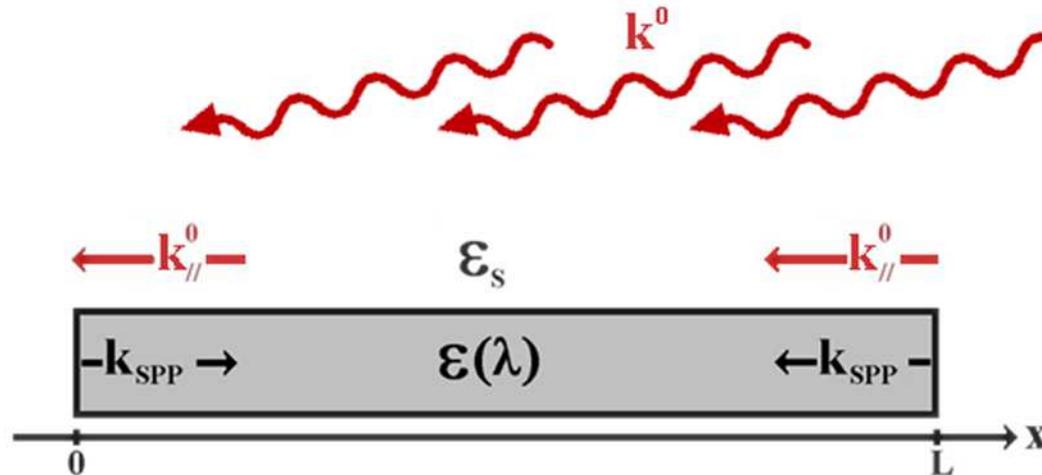
Onde libre → Onde plasmon - polariton

Onde plasmon - polariton → Onde libre

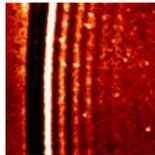


Propagation de plasmons-polaritons – PEEM

Symétrie 1D – NanoFil – Guide d'ondes

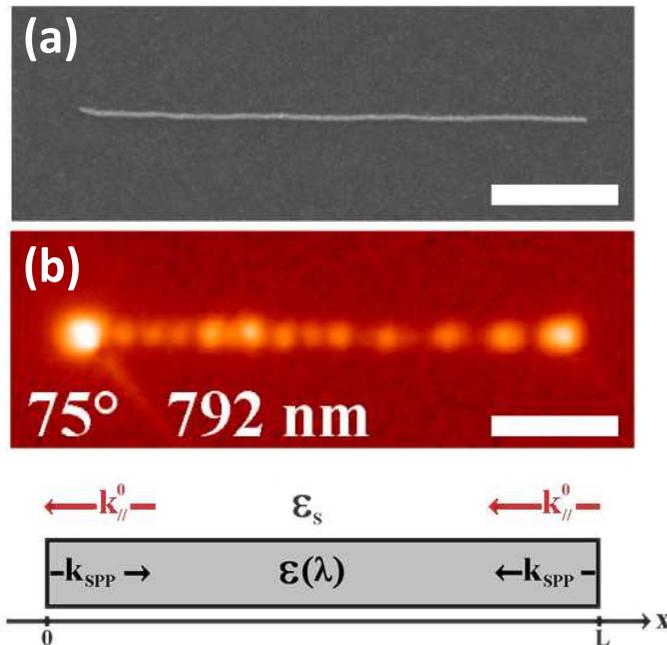


- **NanoFil** (Longueur, Rayon) = (L, R), R ~ épaisseur de peau du champ SPP
- **Solutions générales**
 - (1) Deux ondes SPP contrapropagatives de vecteurs d'onde $\pm K_{\text{SPP}}$ (ondes libres)
 - (2) Onde forcée de vecteur d'onde $k_{//}$ (champ laser excitateur)
- **Deux figures de battements de périodes distinctes**
 - Grande période $2\pi/(K_{\text{SPP}} - k_{//})$ au bord d'attaque
 - Petite période $2\pi/(K_{\text{SPP}} + k_{//})$ au bord de fuite



Propagation de plasmons-polaritons – PEEM

Symétrie 1D – Nanofils



NanoFil Au polycristallin (L, R) = (4 μm , 15 nm),
Fabrication EBL (UT Troyes, Fr)

Longueur d'onde $\lambda_{\text{hv}} = 792 \text{ nm}$
Incidence rasante angle 15°
Polarisation p
Irradiance $\sim 150 \text{ MW/cm}^2$

MEB (a) & PEEM (b) microscopies
Barre d'échelle 1 μm

➤ Propagation d'un plasmon-polariton de surface le long du nanofil Au (guide d'onde)

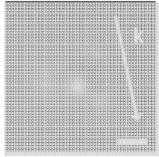
SPP lent, courte portée (short-range) $\Leftrightarrow R \sim$ épaisseur de peau SPP $\approx 25 \text{ nm}$

Longueur d'onde SPP $\lambda_{\text{SR-SPP}} = 335 \text{ nm}$, distance de propagation $L_{\text{SR-SPP}} = 3300 \text{ nm}$

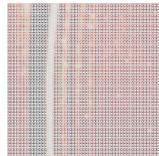
Réduction de la longueur d'onde de la lumière aux fréquences optiques :

$\lambda : 800 \text{ nm}$ (photon IR, vide) $\rightarrow 335 \text{ nm}$ (plasmon polariton "UV", matière)

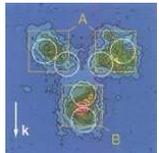
Microscopie de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique



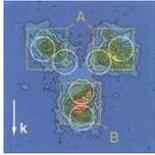
➤ Cartographie HR du champ proche optique aux échelles nanométriques



➤ Dynamique de plasmons-polaritons (nm, fs)

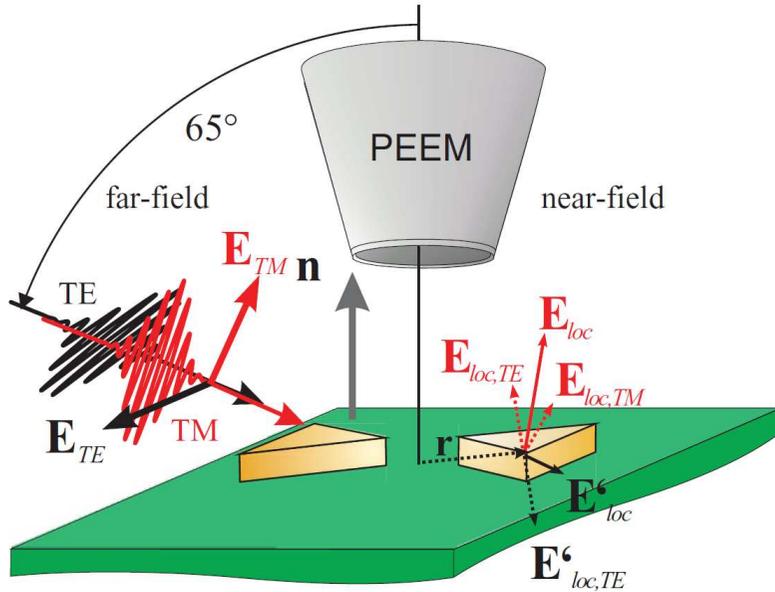


➤ **Manipulation du champ proche optique**
.contrôle cohérent par déphasage d'impulsions croisées
.contrôle cohérent par mise en forme d'impulsions



Manipulation du champ proche optique – PEEM

Contrôle cohérent par déphasage d'impulsions croisées



- Réponses locales à deux composantes de polarisations croisées TM & TE

$$E_{loc, TM} = [1 + G_{TM}]E_{ext, TM}$$

$$E_{loc, TE} = [1 + G_{TE}]E_{ext, TE}$$

$$E_{loc}(r, \omega) = |E_{TM}|e^{i\varphi_{TM}} + |E_{TE}|e^{i\varphi_{TE}}$$

$$E_{loc}(r, \omega) = |E_{TM}|e^{i\varphi_{TM}} + |E_{TE}|e^{i\varphi_{TM}}e^{i\phi}$$

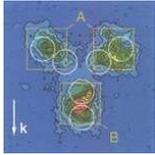
$$\phi = \varphi_{TE} - \varphi_{TM}$$

- Manipulation du champ proche optique aux échelles nanométriques par déphasage d'impulsions de polarisations croisées

Noeuds-papillons Au (350 nm 100 nm 350 nm), 3PPE - PEEM, résolution spatiale ≈ 40 nm

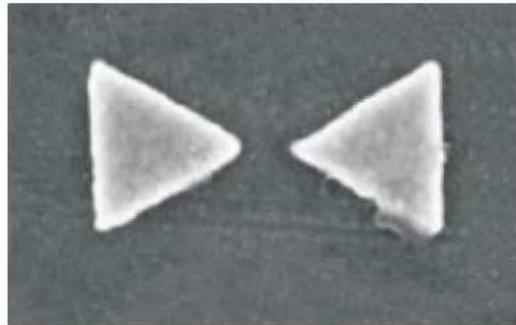
Mécanisme = Interférence de composantes du champ proche

Paramètre de contrôle = déphasage d'impulsions de polarisations croisées

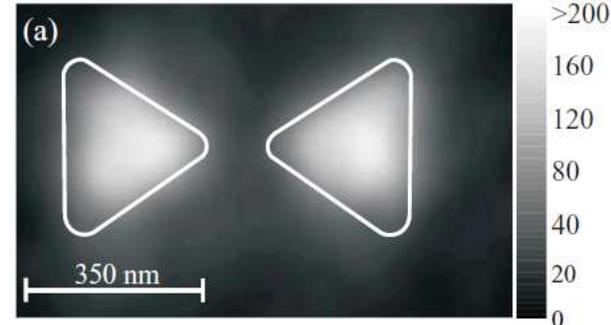


Manipulation du champ proche optique – PEEM

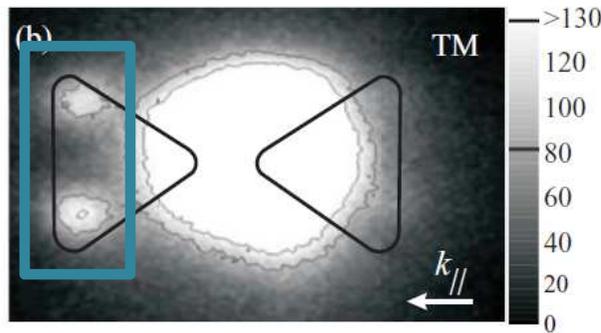
Contrôle cohérent par déphasage d'impulsions croisées



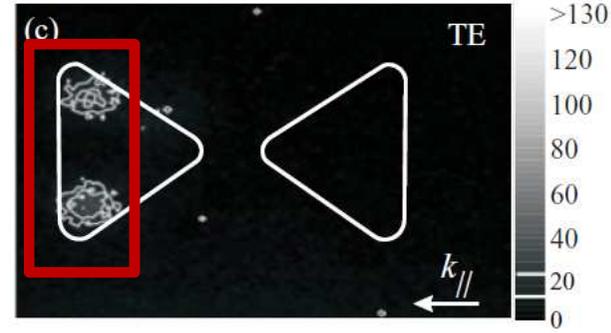
Noeud Papillon, MEB



Noeud Papillon, PEEM Hg
PEEM 1 photon

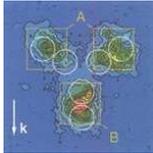


PEEM 3 photons - TM



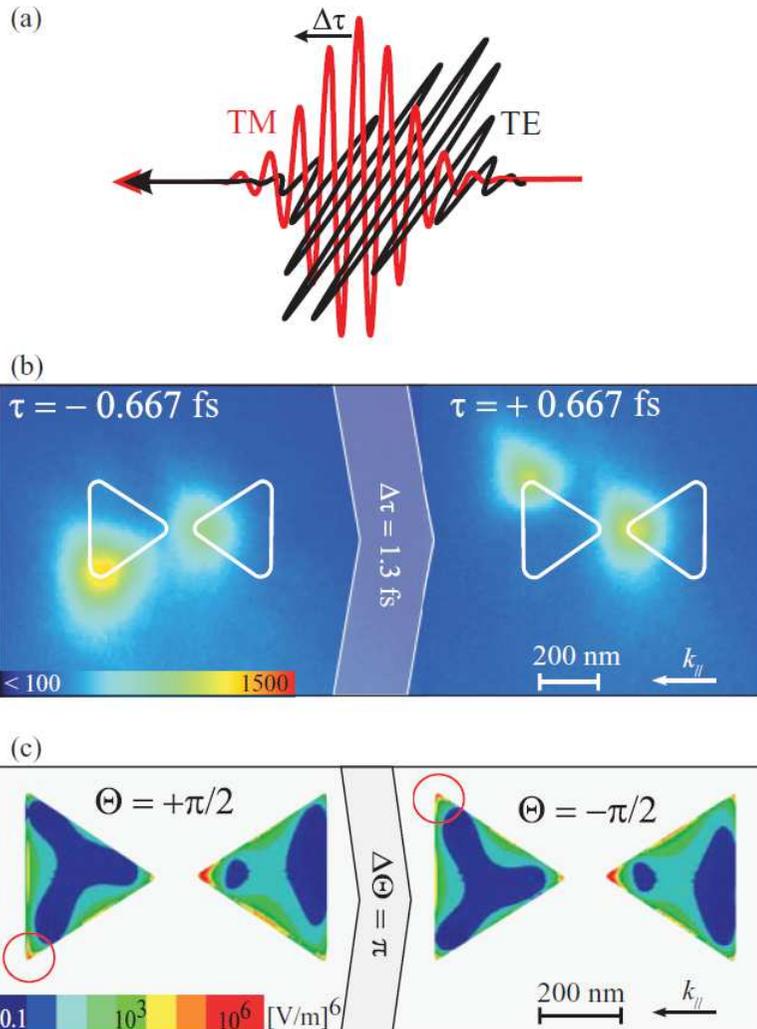
PEEM 3 photons - TE

- Condition d'interférence : **Signal TM** \approx **Signal TE**, $|E_{loc,TM}|^2 \approx |E_{loc,TE}|^2$
- Sites accessibles : coins du triangle gauche



Manipulation du champ proche optique – PEEM

Contrôle cohérent par déphasage d'impulsions croisées



➤ Réponses locales à deux composantes de polarisations croisées TM & TE

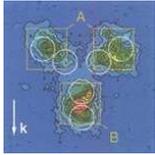
$$E_{loc}(r, \omega) = |E_{TM}|e^{i\varphi_{TM}} + |E_{TE}|e^{i\varphi_{TE}}e^{i\phi}$$

$$\phi = \varphi_{TE} - \varphi_{TM}$$

$$|E_{loc}|^2 = \left(|E_{loc, TM}|^2 + |E_{loc, TE}|^2 \right) (1 + C \cos\phi)$$

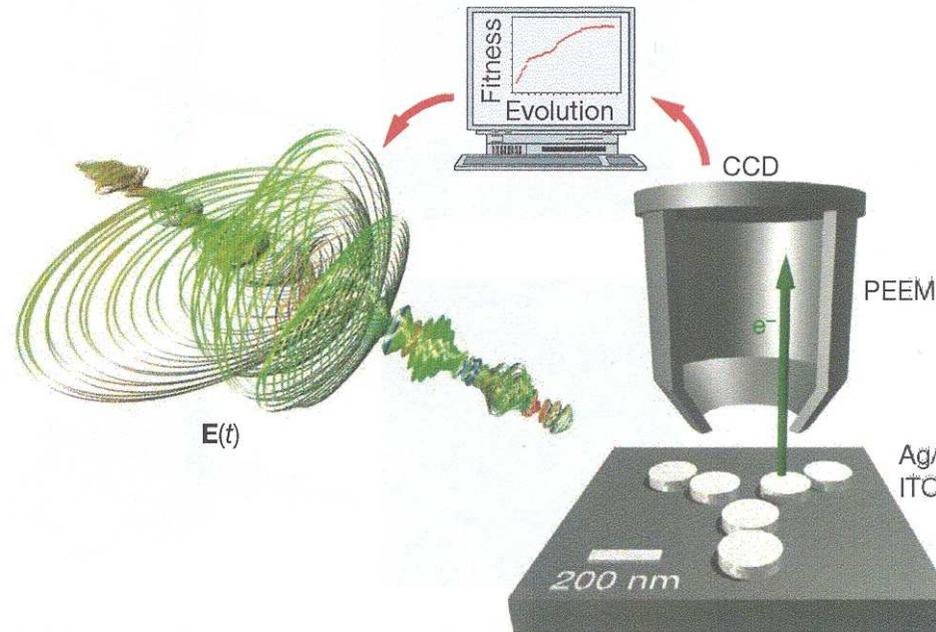
➤ Adressage de points chauds par déphasage d'impulsions de polarisations croisées

Contraste maximal : déphasage = π



Manipulation du champ proche optique – PEEM

Contrôle cohérent par mise en forme d'impulsions

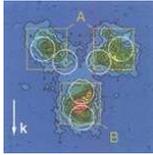


➤ Manipulation du champ proche optique aux échelles nanométriques par mise en forme d'impulsions LASER

Objet nanométrique trigonal, arrangement de dimères de disques Ag

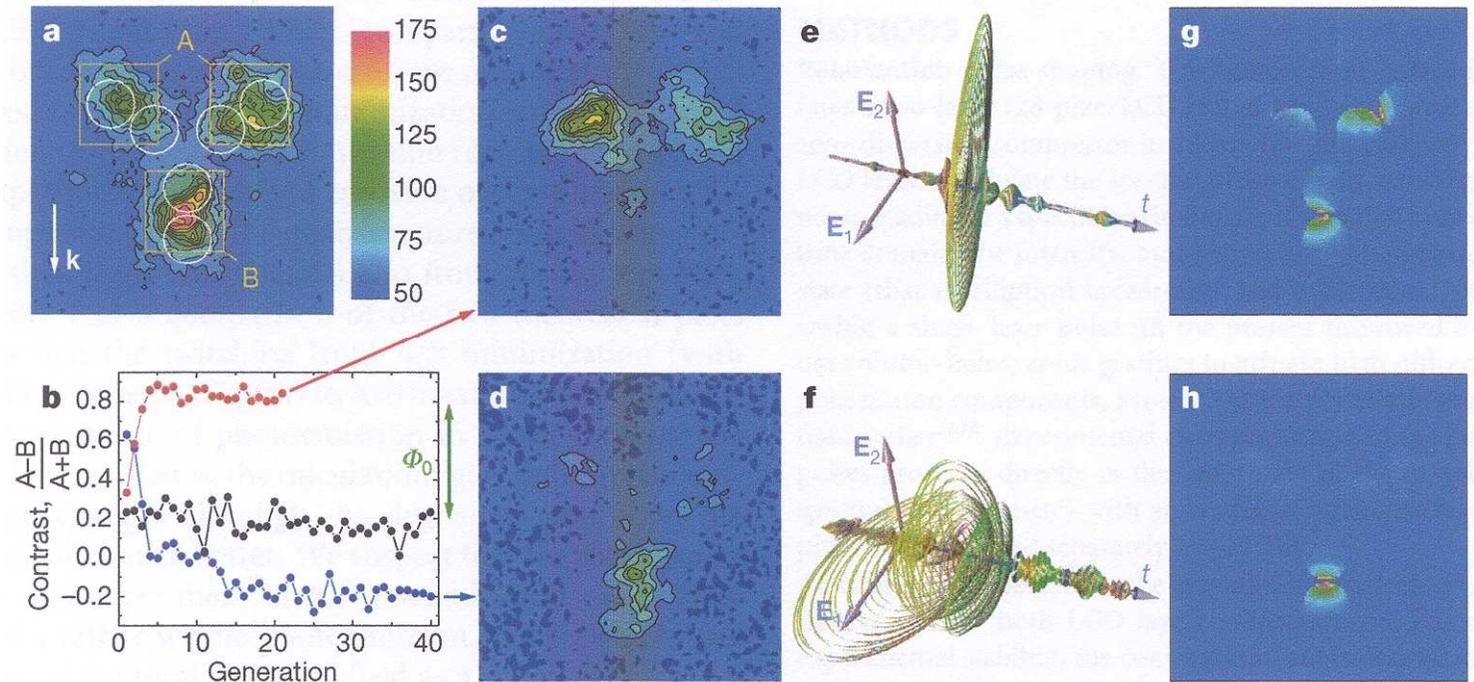
Cartographie du champ proche optique par microscopie de photoémission à 2 photons, résolution sublongueur d'onde ≈ 40 nm

Paramètre de contrôle = Mise en forme adaptative d'impulsions picosecondes ≈ 1 ps



Manipulation du champ proche optique – PEEM

Contrôle cohérent par mise en forme d'impulsions



(a) Référence. polarisation p, incidence 65° , $\lambda_{hv} = 790$ nm FoV $(1.13 \mu\text{m})^2$

{Mise en forme (e); (c, exp.); (g, théorie)}, {Mise en forme (f); (d, exp.); (h, théorie)}

➤ Manipulation du champ proche optique aux échelles nanométriques par mise en forme adaptative d'impulsions – déplacement points chauds

Microscopie de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique

- **PEEM.** Bon outil de cartographie HR du champ proche optique.
 - Méthode non intrusive,
 - Microscopie plein champ,
 - Haute résolution latérale 20 nm. **Résolution spatiale $\Delta r \sim 5$ nm sur instrument AC,**
 - Grand rapport S/N (métal = réservoir d'électrons),
 - Possibilités de mesures spectrales. **Résolution spectrale $\Delta\lambda < 5$ nm (10 meV)**
 - Possibilités de mesures temporelles (pompe – sonde) **Rés. temporelle $\Delta t \sim 10 - 100$ fs**

Imagerie du champ interne à la surface de l'objet $\propto |E_{\text{int.}}|^{2n}$ (\ll SNOM $E_{\text{ext.}}$)

Substrat conducteur

Faible rugosité

Expérience UHV

Alternative aux microscopies champ proche à balayage de sonde (SNOM *scanning near field microscopy*) pour :

Cartographie HR du champ proche aux échelles nanométriques

Dynamique de plasmons-polaritons (nm, fs)

Ingénierie sub-longueur d'onde du champ électromagnétique

Microscopie de photoémission d'électrons, un outil pour **la plasmonique**

- Optique sublongueur d'onde par voie plasmonique. Manipulation de la lumière à l'échelle sublongueur d'onde - points chauds, pince plasmonique,
- Grands facteurs d'exaltation du champ proche $\sim 10 - 100$ (absorption métal). Exaltation de spectrométries optiques non linéaires - SERS, TERS
- Sources d'électrons chauds – catalyse, oncologie...



Microscopie de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique



CEA Saclay IRAMIS SPEC Groupe de NanoPhotonique, Fr iramis.cea.fr
S. Mitiche, C. Awada, T. Popescu, C. Fiorini, S. Vassant, F. Charra



CEA Saclay IRAMIS NIMBE, Fr iramis.cea.fr
S. Marguet



Université de Technologie de Troyes LNIO Laboratoire de
Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique, Fr www-lnio.utt.fr
A. Perron, H. Yockell-Lelièvre, A.-L. Baudrion, P.-M. Adam,
S. Kostcheev, G. Lerondel, R. Bachelot



Institut d'Optique Graduate School IOGS Laboratoire Charles Fabry
Palaiseau, Fr www.institutoptique.fr/
J.-J. Greffet, M. Besbes



Ludwig-Maximilians-Universität München, Ger www.uni-muenchen.de
C. Hrelescu, T. Sau, F. Jäckel

