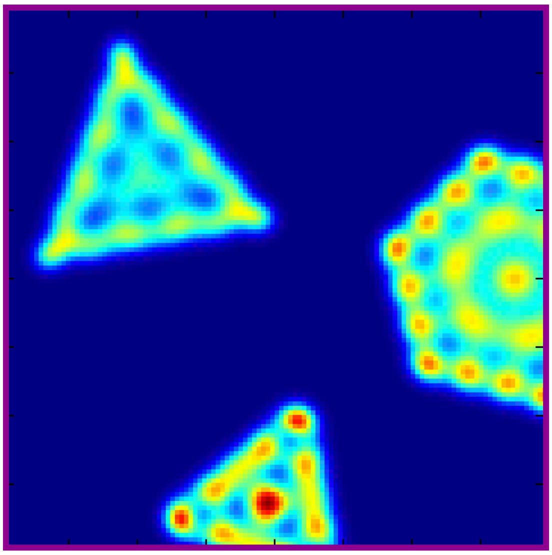
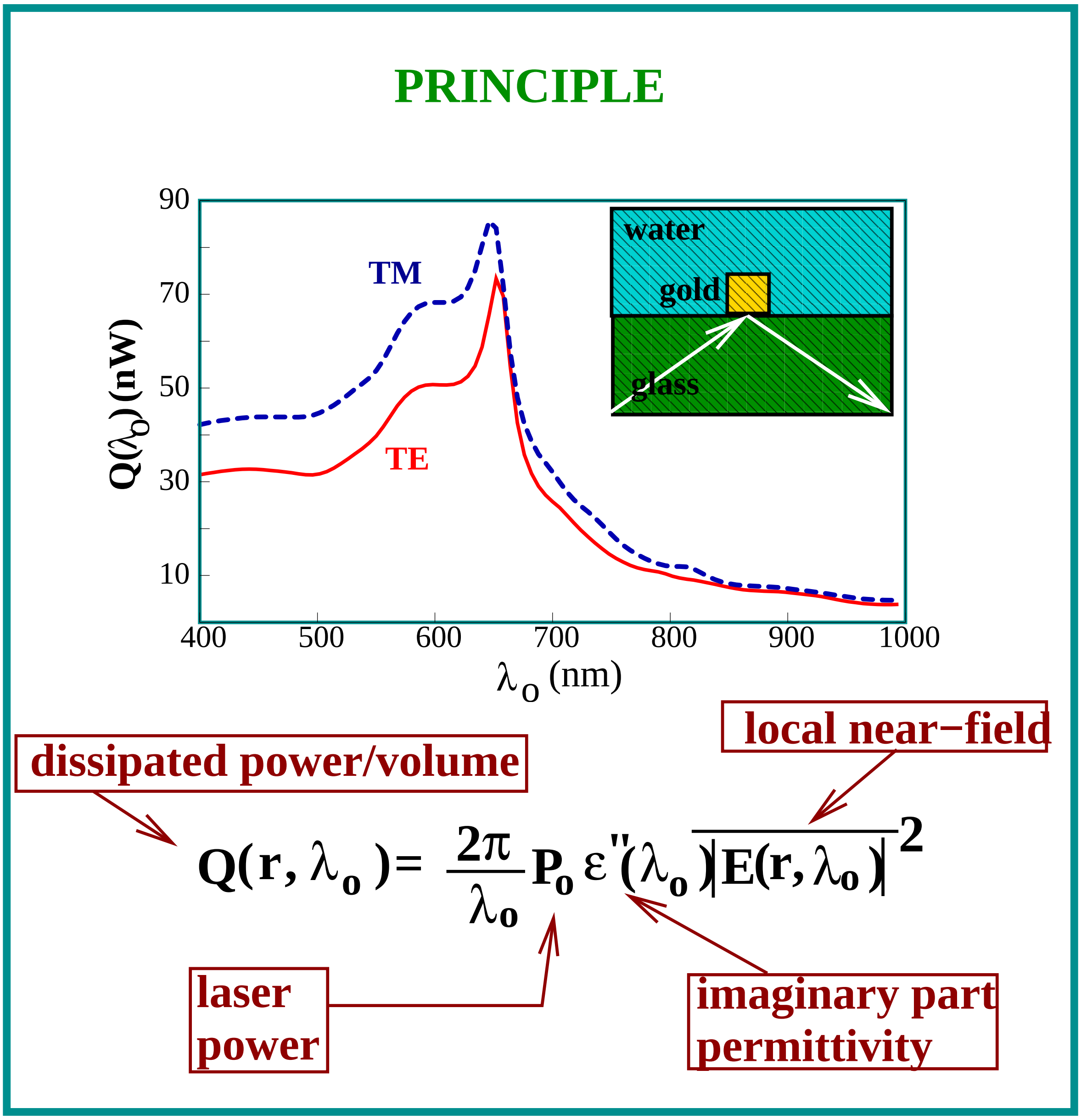
COURS ETPMSE

Structures Modales et Dépôt de Chaleur dans les Systèmes Plasmoniques

Christian Girard
Groupe NeO, CEMES/CNRS, 29 rue Jeanne Marvig
31055 Toulouse, Cedex 4

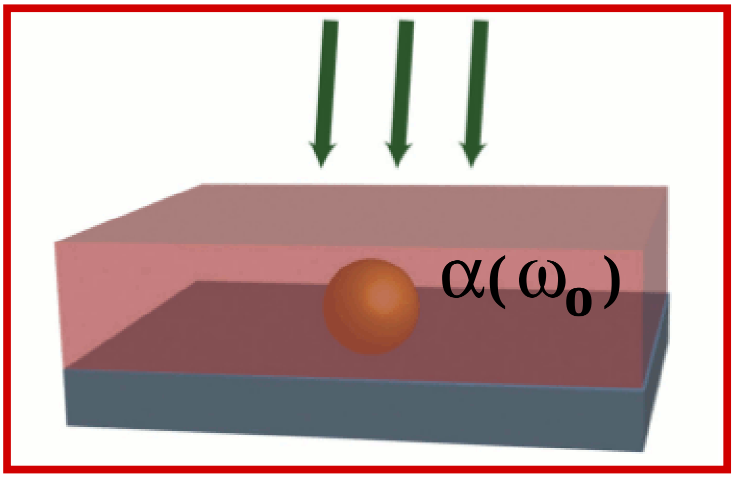


PLASMONS, DISSIPATION ET EFFETS THERMIQUES : GENERALITES[1]



[1] Shaping and Manipulation of Light Fields with Bottom–up Plasmonic Structures, *New Journal of Physics*, **10**, 105016-22 (2008), Christian Girard, Erik Dujardin, Guillaume Baffou, and Romain Quidant

CAS D'UNE PARTICULE SPHERIQUE ECLAIREE PAR UNE ONDE PLANE

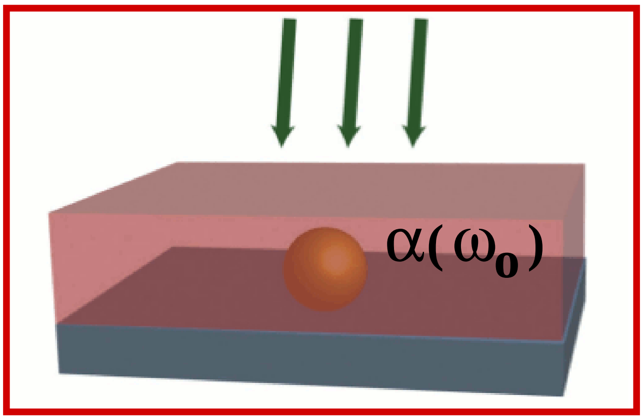


Champ électrique incident

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2}\{\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega_0)\exp(i\omega_0 t) + C.C.\}\ , \tag{1}$$

$\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega_0)$ (avec $\mathbf{r} = (x,y,z)$) est l'amplitude de Fourier :

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega_0) = \mathbf{E}_0[\exp(-in_1k_0z) + R\exp(in_1k_0z)]\ , \tag{2}$$



Champ électrique local à l'endroit de la particule
Couplage avec la surface

$$\mathbf{E}_l(\mathbf{R}_0,\omega_0) = \mathcal{A}(\mathbf{R}_0,\omega_0)\cdot\mathbf{E}_0(\mathbf{R}_0,\omega_0) \tag{3}$$

avec

$$\mathcal{A}(\mathbf{R}_0,\omega_0) = \begin{pmatrix} \frac{8R_0^3}{8R_0^3-\alpha(\omega_0)\Delta} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{8R_0^3}{8R_0^3-\alpha(\omega_0)\Delta} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{4R_0^3}{4R_0^3-\alpha(\omega_0)\Delta} \end{pmatrix} \tag{4}$$

ou $\Delta = (\epsilon_s - \epsilon_{env})/(\epsilon_s + \epsilon_{env})$

Chaleur dissipée par la particule de métal

$$\mathcal{Q}(\mathbf{R}_0) = \frac{1}{4\pi}\int_{v_{part}} d\mathbf{r} < \mathbf{E}_l(\mathbf{r},t)\cdot\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{D}_l(\mathbf{r},t) > \tag{5}$$

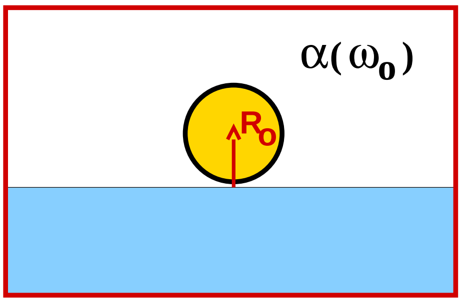
$$\begin{aligned}\mathcal{Q}(\mathbf{R}_0) = \frac{1}{16\pi}\int_{v_{part}} & i\omega_0\{\mathbf{E}_l(\mathbf{r},\omega_0)\cdot\mathbf{D}_l^\star(\mathbf{r},\omega_0) \\ & -\mathbf{E}_l^\star(\mathbf{r},\omega_0)\cdot\mathbf{D}_l(\mathbf{r},\omega_0)\}d\mathbf{r}\end{aligned} \tag{6}$$

Relation constitutive :

$$\mathbf{D}_l(\mathbf{r},\omega_0) = \epsilon(\omega_0)\mathbf{E}_l(\mathbf{r},\omega_0)$$

Pour une seule nanoparticule :

$$\epsilon(\omega_0) = 1 + 4\pi\alpha(\omega_0)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_0)$$



Puissance dissipée par la particule de métal

$$\mathcal{Q} = \frac{E_0^2 \omega_0}{2} \{\Im \alpha(\omega_0)\} \tag{7}$$

relation entre puissance laser et intensité du champ électrique

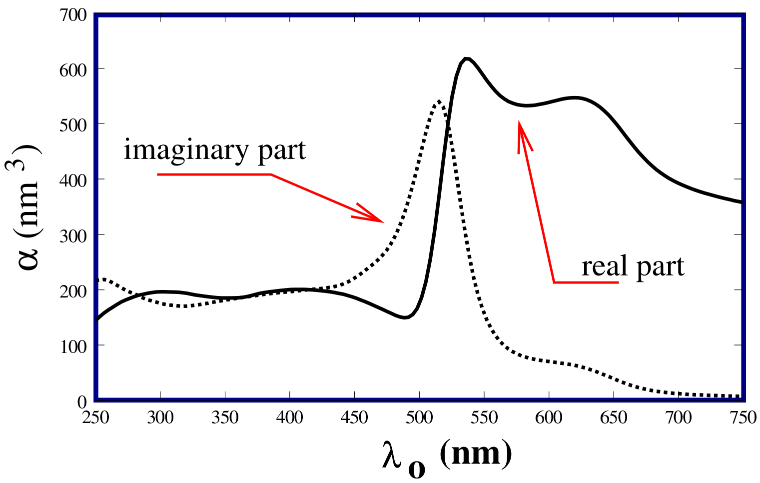
$$E_0^2 = \frac{8\pi S_0}{c} \ , \tag{8}$$

$$\Downarrow$$

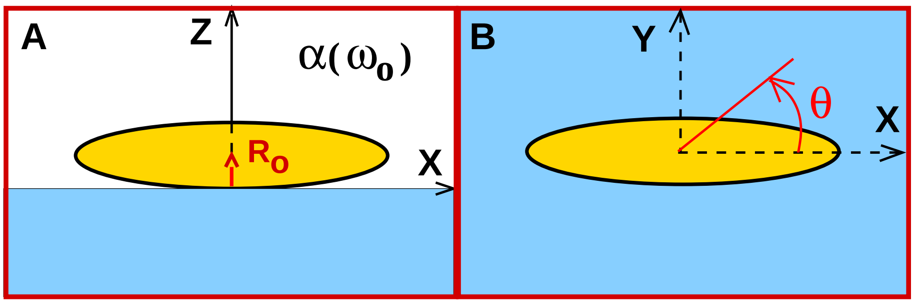
$$\mathcal{Q} = 4\pi S_0 k_0 \{\Im \alpha(\omega_0)\} \tag{9}$$

A comparer avec la section transverse d'extinction :

$$I_{ext}(\lambda_0) = \frac{8\pi^2}{\lambda_0} \Im\{\alpha(\omega_0)\} \tag{10}$$

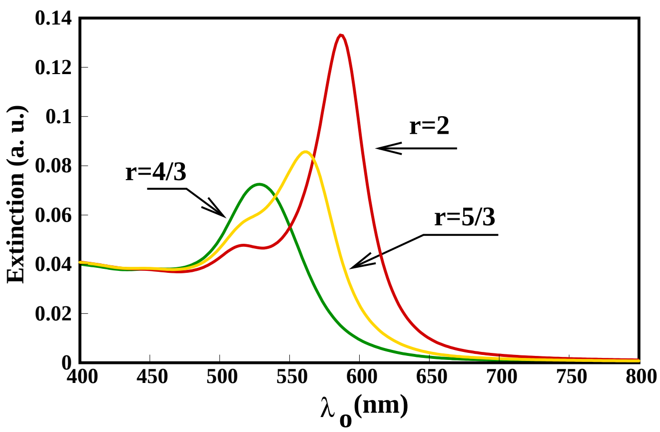


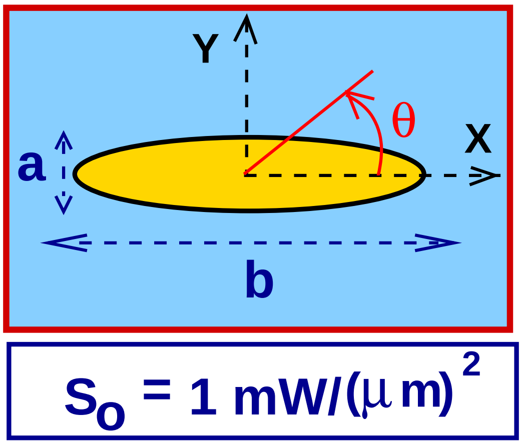
PARTICULES DE FORME ALONGEE
ELLIPSOIDES, BATONNETS

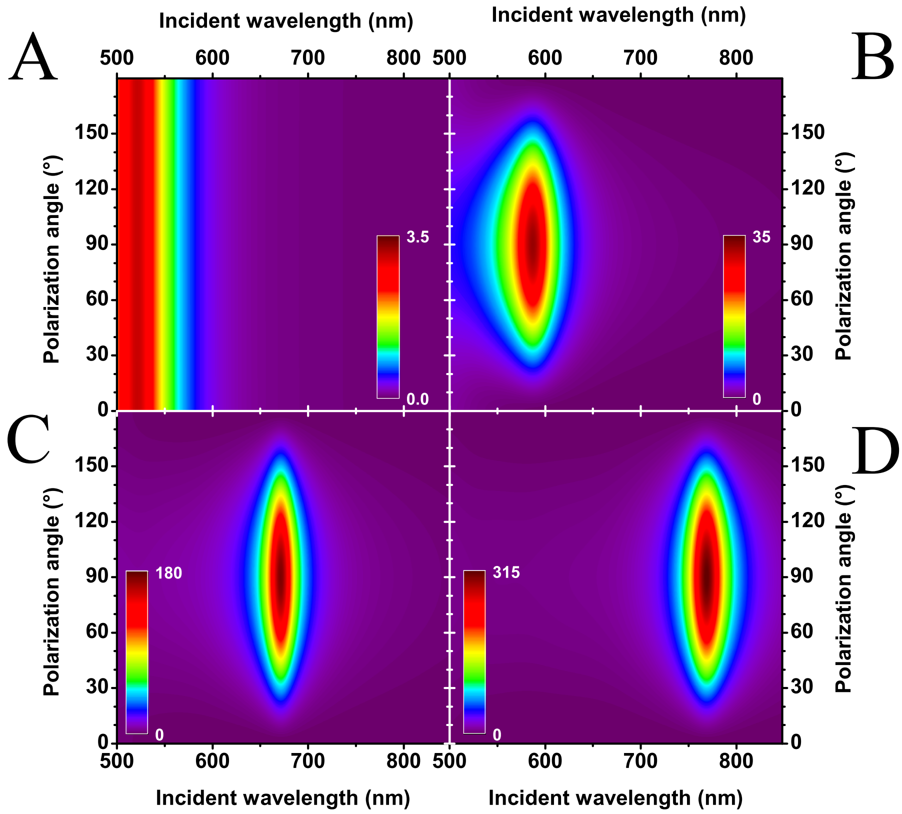


$$\alpha(\omega_0) = \begin{pmatrix} \alpha_{\|}(\omega_0) & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{\perp}(\omega_0) & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{\perp}(\omega_0) \end{pmatrix} \tag{11}$$

$$\boxed{\mathcal{Q}(\omega_0, \theta) = 4\pi S_0 k_0 \{\Im \alpha_{\|}(\omega_0) \cos^2(\theta) + \Im \alpha_{\perp}(\omega_0) \sin^2(\theta)\}}$$

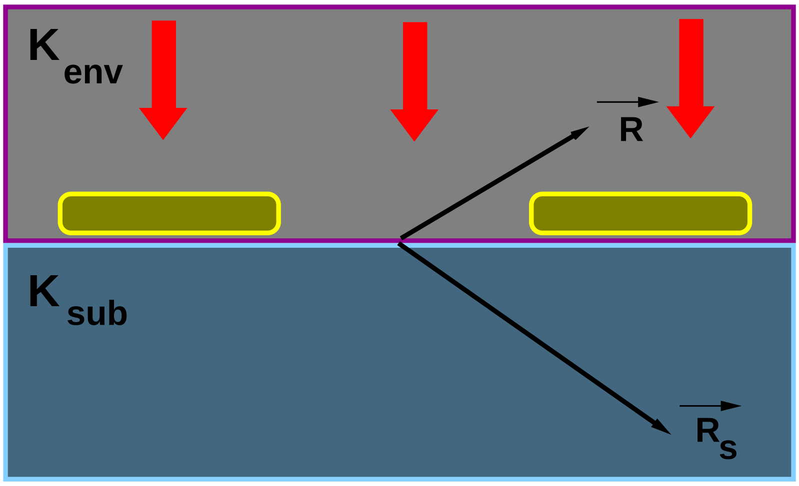






Chaleur déposée en fonction de la longueur d'onde et de la polarisation θ :
(A) Sphère , (B), (C) et (D) sont des ellipsoïdes

VARIATION DE LA TEMPERATURE EN REGIME STATIONNAIRE



Dans le demi–espace supérieur

$$\delta T(\mathbf{R}) = \frac{1}{4\pi\kappa_{env}} \Sigma_{j=1}^{n} \mathcal{Q}(\mathbf{r}_j)\{\frac{1}{|\mathbf{R}-\mathbf{r}_j|} + \frac{\kappa_{sub}-\kappa_{env}}{\kappa_{sub}+\kappa_{env}}\frac{1}{|\mathbf{R}-\mathbf{r'}_j|}\}$$

κ_{sub} et κ_{env} sont les conductivités thermiques des 2 demi–espaces.

$\mathbf{r'}_j = (x_j, y_j, -z_j)$ est la position *image* de $\mathbf{r}_j$.

Dans le substrat nous avons une relation similaire :

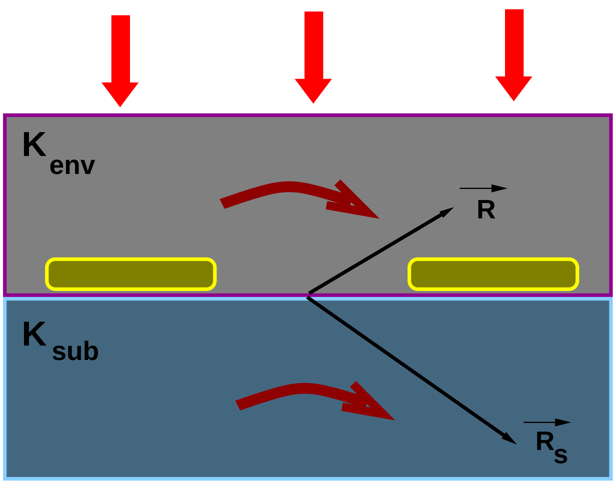
$$\delta T(\mathbf{R}_{sub}) = \frac{1}{4\pi\kappa_{sub}} \Sigma_{j=1}^{n} \mathcal{Q}(\mathbf{r}_j)\{\frac{2\kappa_{sub}}{\kappa_{sub}+\kappa_{env}}\frac{1}{|\mathbf{R}_{sub}-\mathbf{r}_j|}\}$$

Flux de chaleur induits dans chaque milieu :

$$\Phi(\mathbf{R}) = -\kappa_{env}\nabla_{\mathbf{r}=\mathbf{R}}[\delta T(\mathbf{r})] \qquad (12)$$

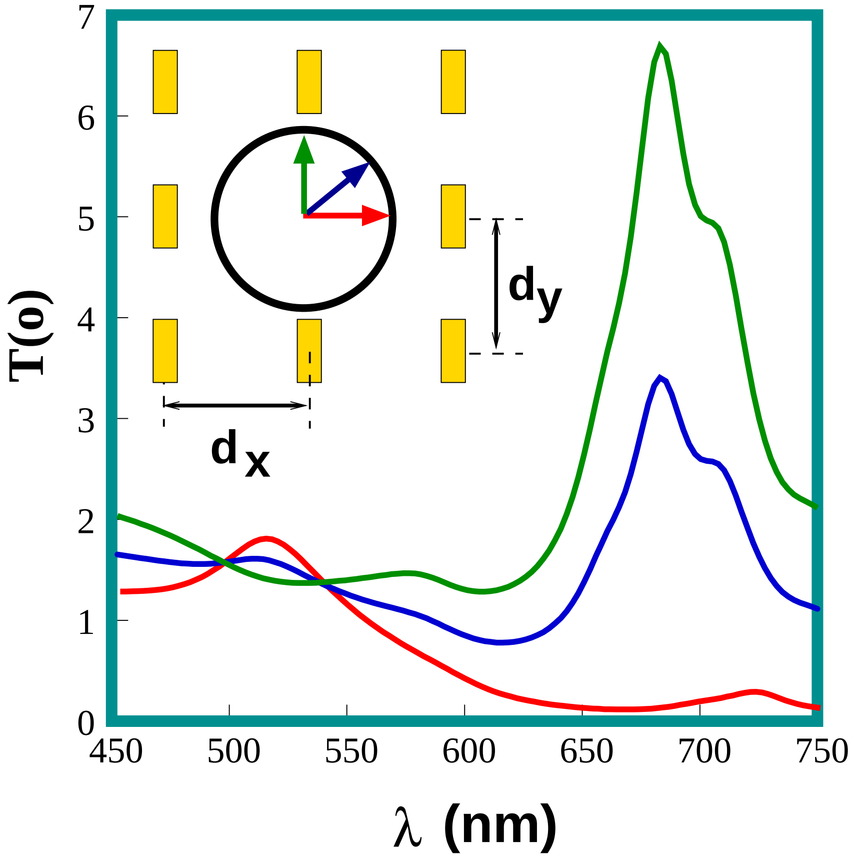
et

$$\Phi(\mathbf{R}_s) = -\kappa_{sub}\nabla_{\mathbf{r}=\mathbf{R}_s}[\delta T(\mathbf{r})] \qquad (13)$$



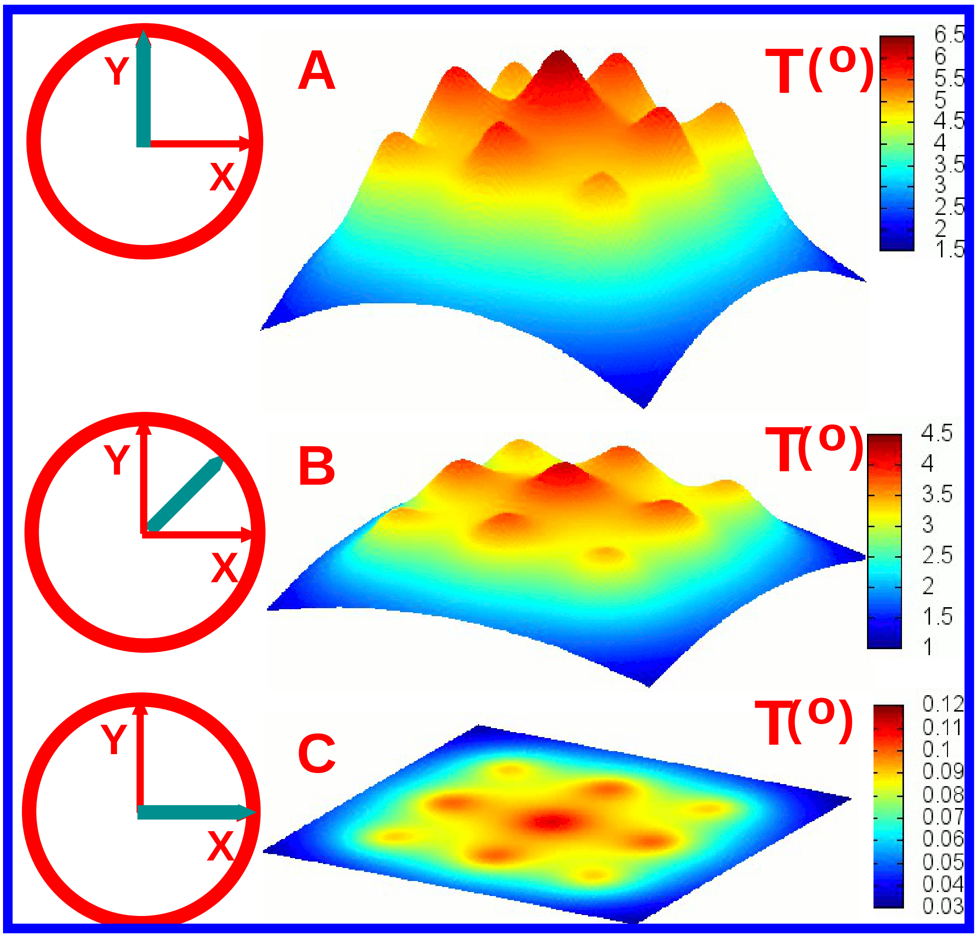
EXEMPLES D'APPLICATION
Arrangement de particules alongées
Métasurfaces

(A) Assemblée d'antennes parallèles : Variation spectrale de la température



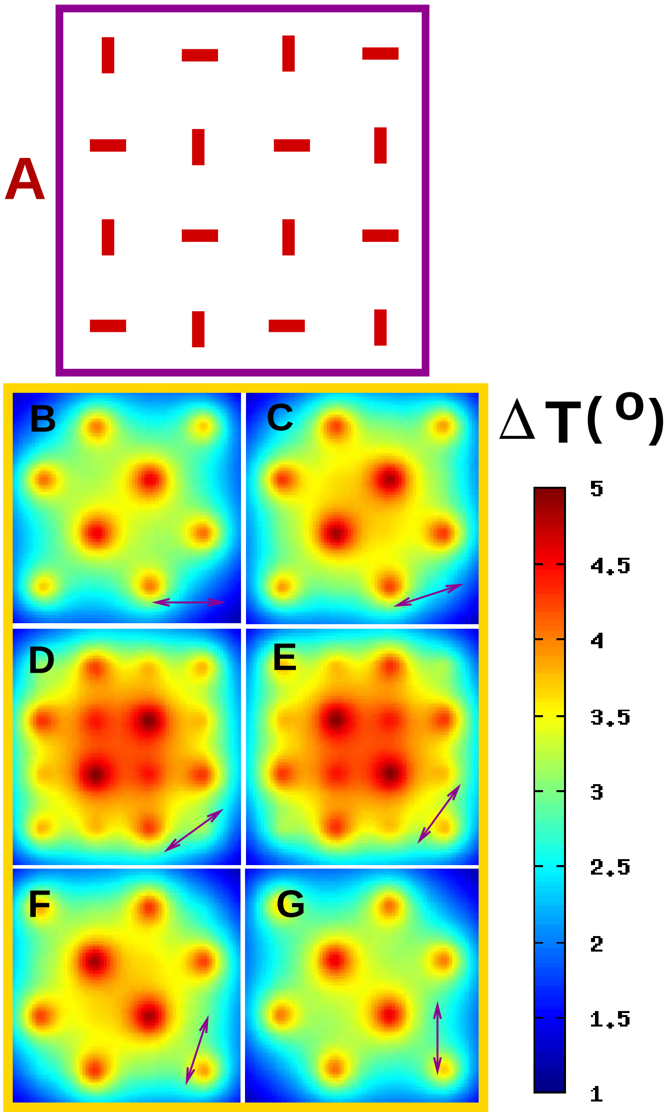
$\mathbf{S}_0 = 5mW/\mu m^2$, $d_x = d_y =$ 250 nm.

Evolution de la carte de température en fonction de la polarisation incidente



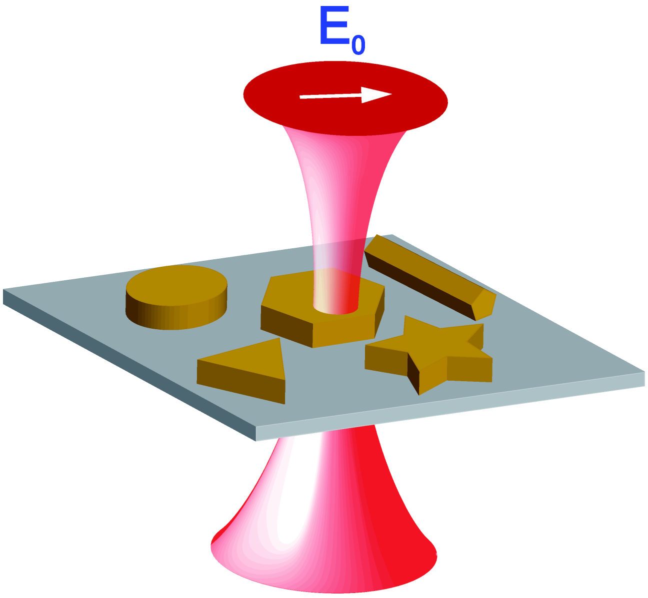
$\lambda = 680$ nm (longueur d'onde longitudinale)

(B) Assemblée d'antennes antiparallèles : Métasurfaces thermoplasmoniques



$\lambda = 680$ nm (longueur d'onde longitudinale)

EXEMPLE D'APPLICATION
Imagerie avec un faisceau focalisé

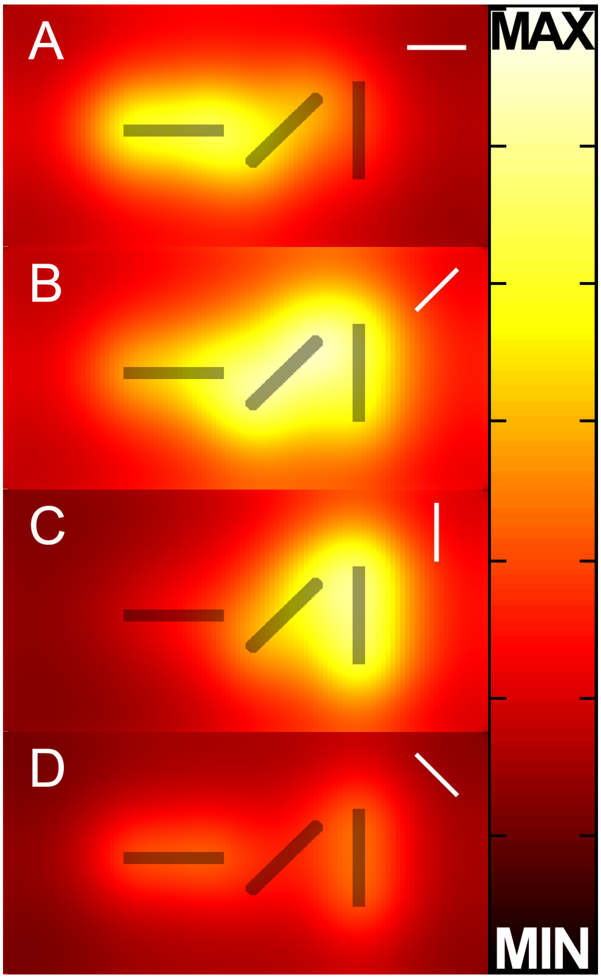


$$\mathbf{E}(\mathbf{R}_0, \mathbf{r}, \omega) = \int_{volume-metal} \mathcal{K}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \mathbf{E_0}(\mathbf{R}_0, \mathbf{r}, \omega) d\mathbf{r}'$$

$$Q(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{\omega \Im[\epsilon_m(\omega)]}{8\pi} \int_{volume-metal} |\mathbf{E}(\mathbf{R}_0, \mathbf{r}, \omega)|^2 d\mathbf{r}$$

Simulation de cartes de température par balayage du faisceau lumineux

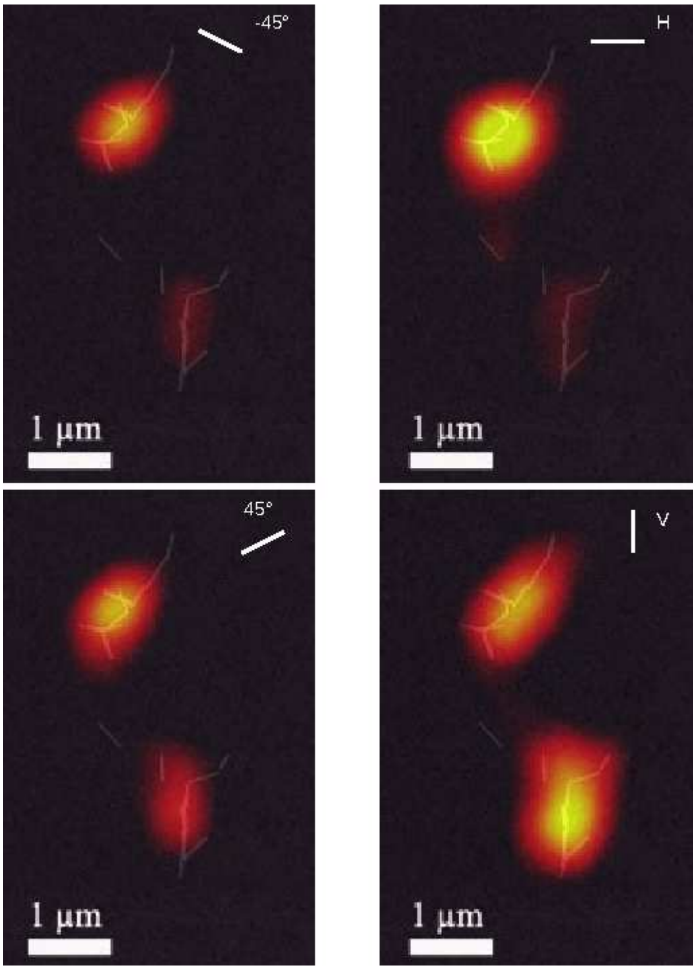
$$\Delta T(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{1}{4\pi\kappa_{env}} \int_V \frac{Q(\mathbf{R}_0, \mathbf{r}, \omega)}{|\mathbf{R}_0 - \mathbf{r}|} d\mathbf{r}$$



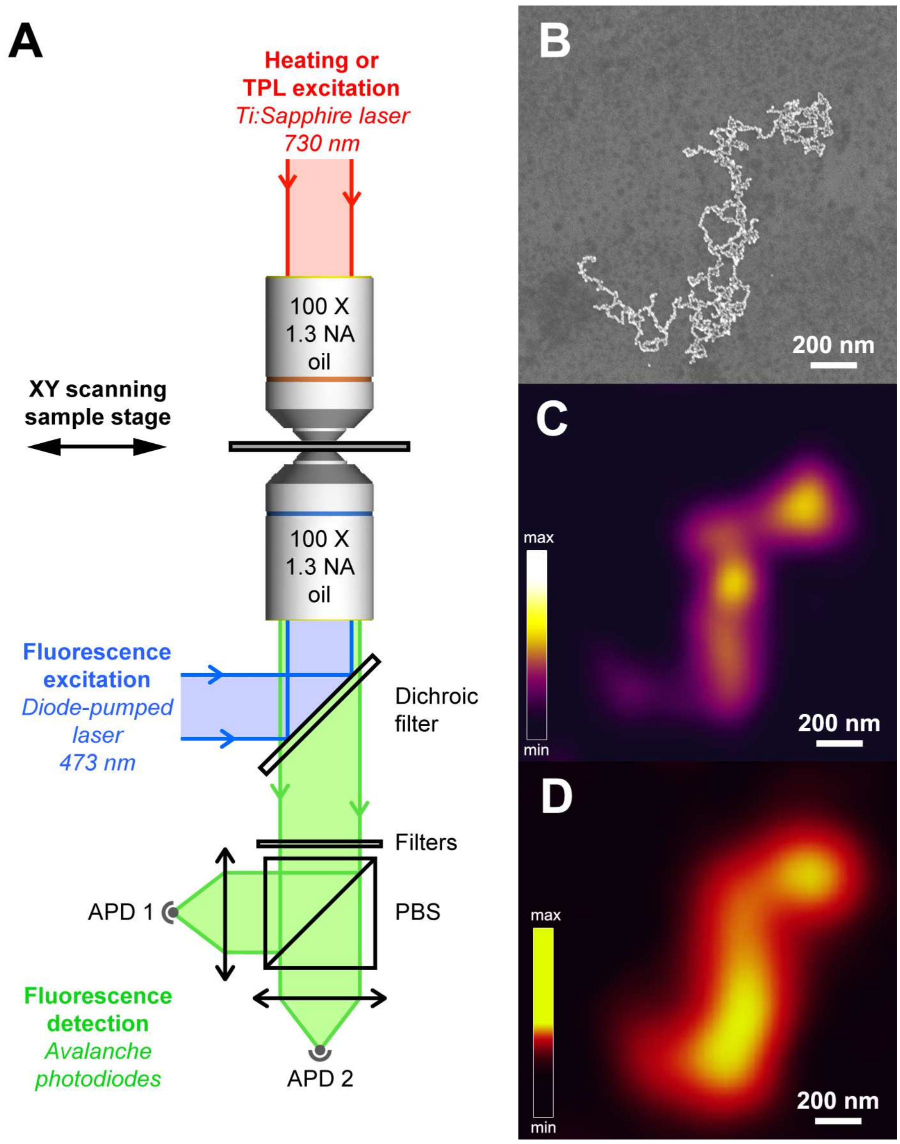
(λ = 730 nm, dimension : 400 $\times$ 30 nm.)

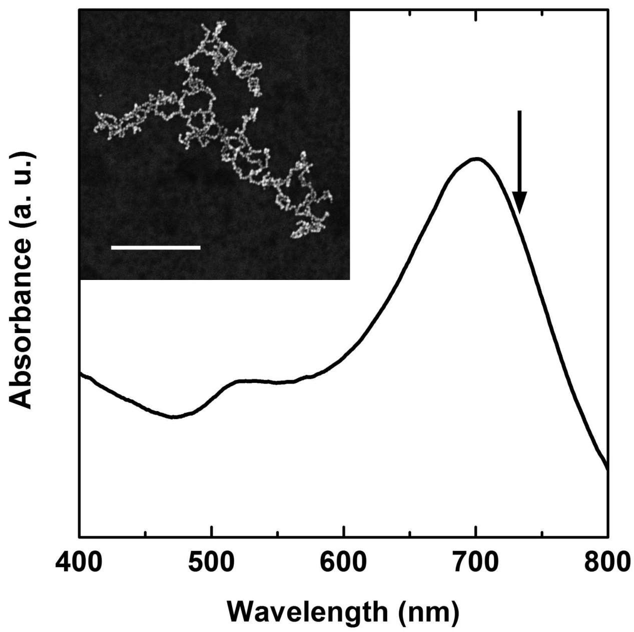
EXPERIENCES FPA
(fluorescence polarisation anisotropy)
collaboration CEMES ICFO

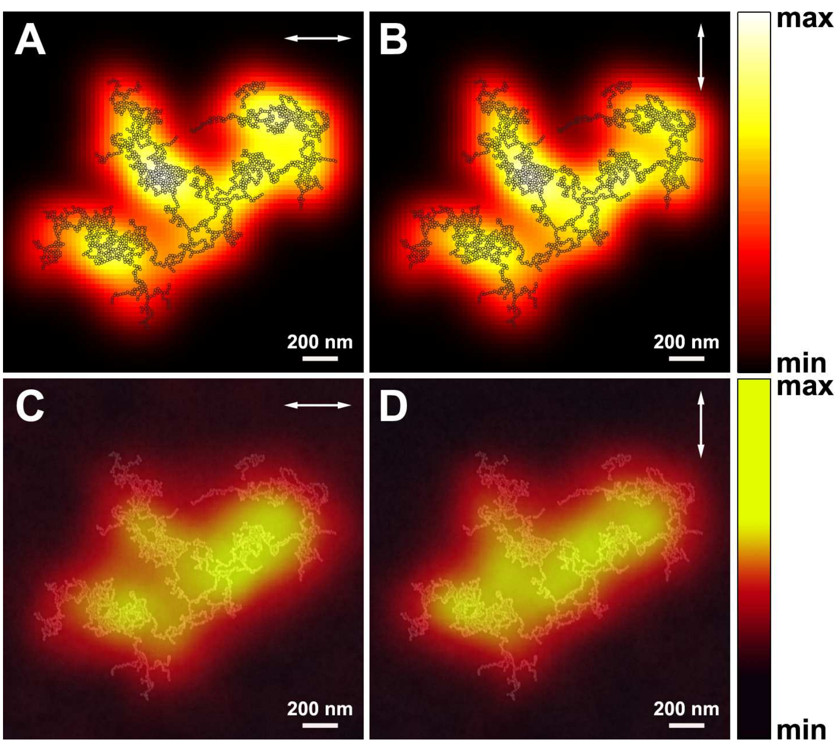
Images FPA de nano–batonnets d'or[2]



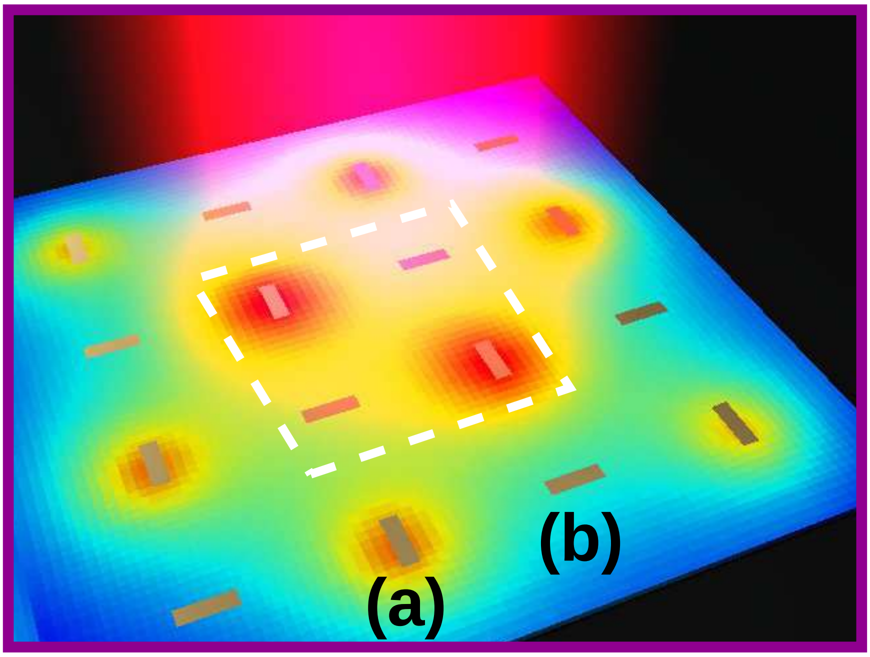
Images FPA de chaines de nanoparticules d'or
collaboration CEMES ICFO




Absorbance (a. u.)
400
500
600
700
800
Wavelength (nm)


A
B
C
D
200 nm
200 nm
200 nm
200 nm
max
min
max
min

Relation entre SP–LDOS et Chaleur Déposée par le Faisceau Lumineux

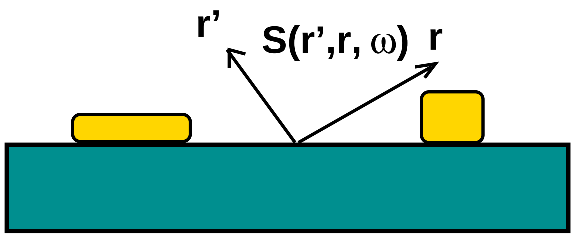


Concept de SP–LDOS en géométrie planaire

A) PHOTONIQUE LDOS : DEFINITION

$$\rho(\mathbf{r},\omega) = \Sigma_n \, |\mathcal{E}(\mathbf{r},\omega_n)|^2 \delta(\omega_n - \omega).$$

Cette quantité scalaire peut être exprimée à partir de la fonction de Green du système $\mathcal{S}$:

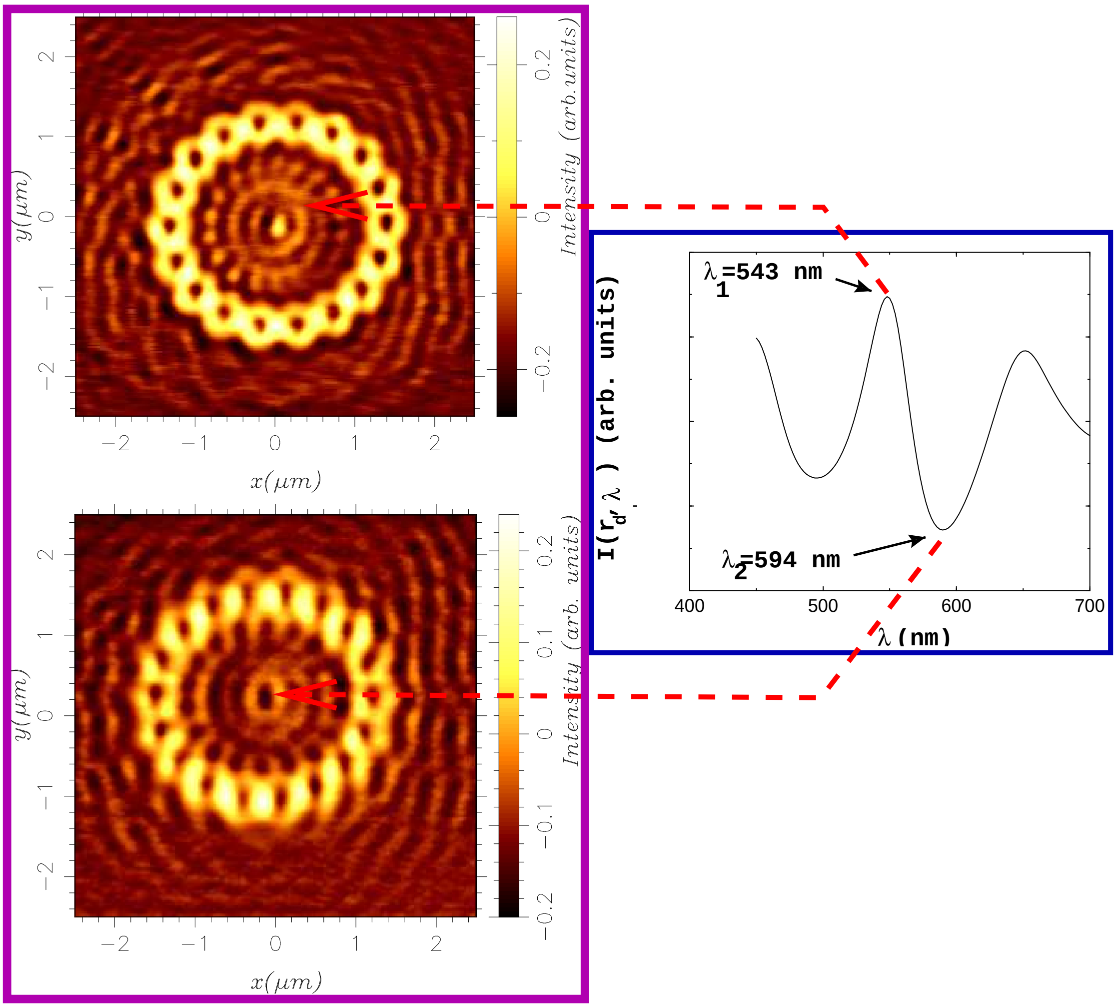


$$\rho(\mathbf{r},\omega) = \Sigma_{\alpha=x,y,z} \, \rho_\alpha(\mathbf{r},\omega)$$

$\rho_\alpha(\mathbf{r},\omega)$ définissent trois LDOS partielles pour $\alpha = x, y,$ ou z.

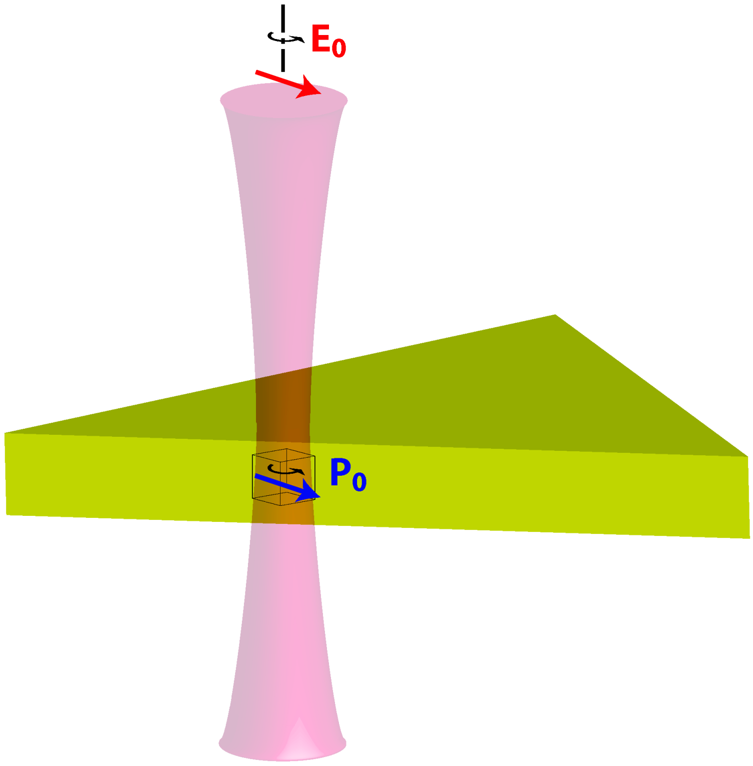
$$\rho_\alpha(\mathbf{r},\omega) = \frac{1}{2\pi^2\omega} \, \mathrm{Im} \, \mathcal{S}_{\alpha\alpha}(\mathbf{r},\mathbf{r},\omega). \tag{14}$$

B) LDOS PHOTONIQUE
EXEMPLE DE MESURE AVEC UN SNOM



Imaging the local density of states of optical corrals
Phys. Rev. Let. 88 097402-4 (2002)

C) TECHNIQUE DE CALCUL DE LA SP-LDOS DANS DES NANO-STRUCTURES



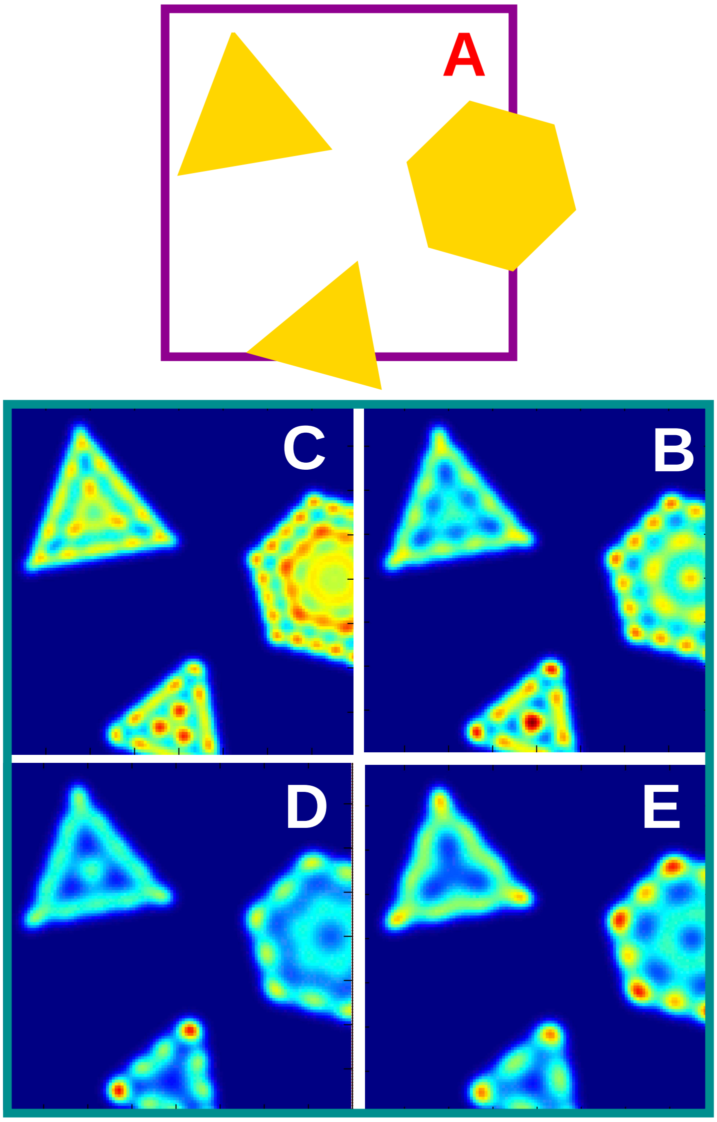
$$\rho_\alpha(\mathbf{r}_0, \omega_0) = A(\omega_0) \frac{|\mathbf{E}_\alpha(\mathbf{r}_0, \omega_0)|^2}{|\mathbf{E_0}(\mathbf{R}_0)|^2}$$

avec

$$A(\omega_0) = \frac{1}{3}\rho_0(\omega_0)$$

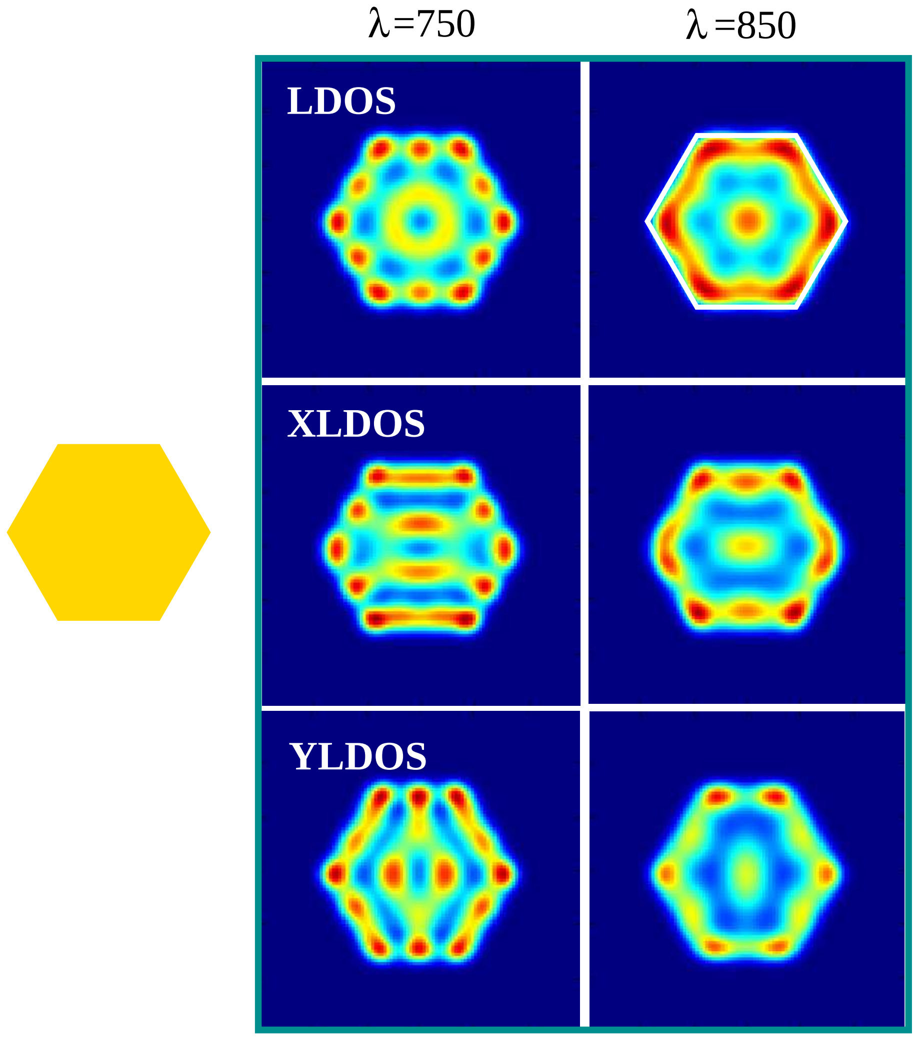
D) APPLICATION A UNE ASSEMBLEE DE MICRO–PLAQUETTES D'OR

$$\rho_{\parallel}(\mathbf{r}_0, \omega_0) = \rho_x(\mathbf{r}_0, \omega_0) + \rho_y(\mathbf{r}_0, \omega_0)$$



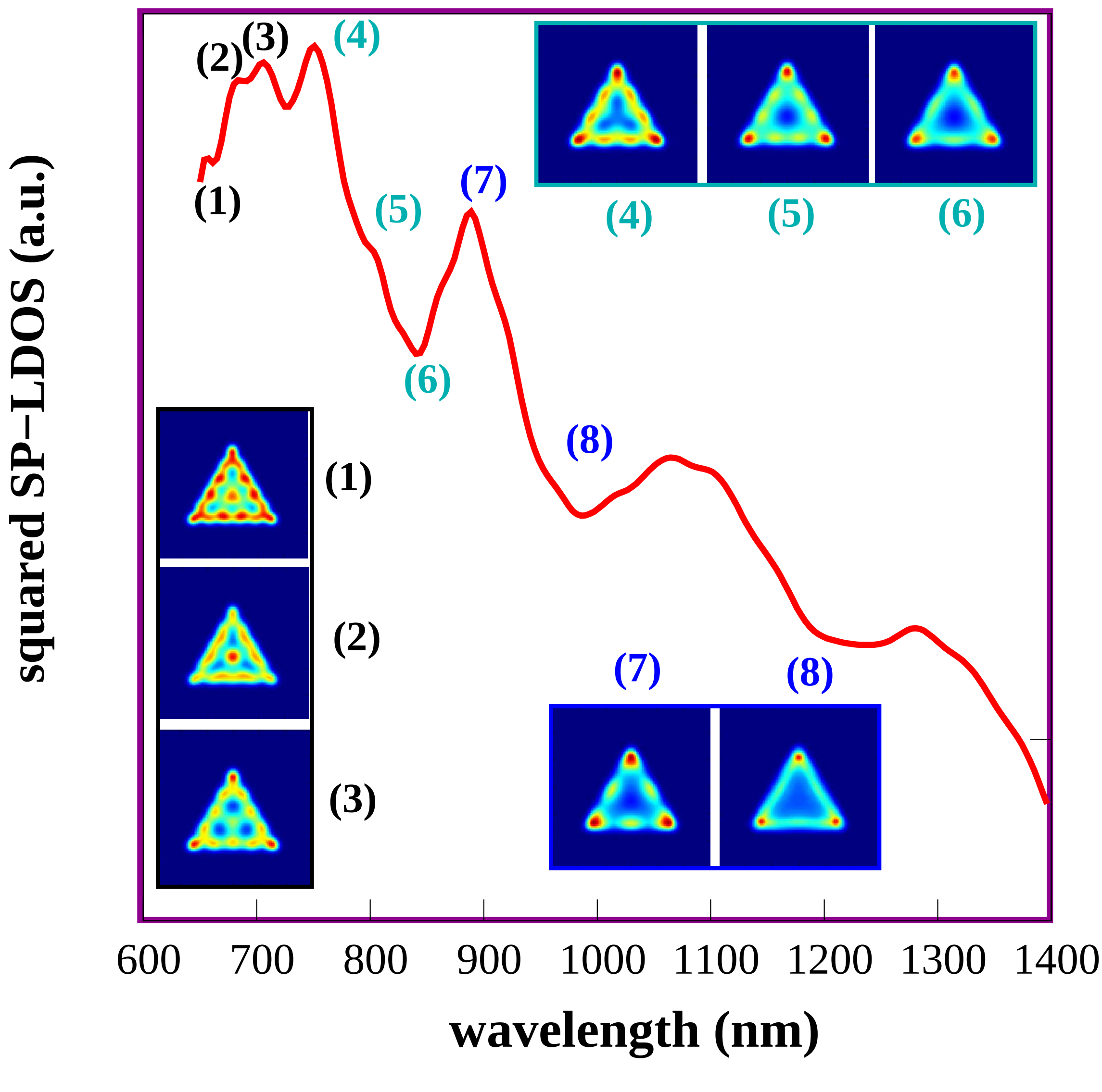
E) SP-LDOS PARTIELLE D'UNE MICRO–PLAQUETTE D'OR

$$\rho_\alpha(\mathbf{r}_0, \omega_0)$$



F) SPECTROSCOPIE LOCALE D'UNE MICRO–PLAQUETTE D'OR

$$\rho_{\|}(\mathbf{r}_0, \omega_0) = \rho_x(\mathbf{r}_0, \omega_0) + \rho_y(\mathbf{r}_0, \omega_0)$$



Chaleur déposée et SP–LDOS en géométrie planaire

$$Q(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{\omega \Im[\epsilon_m(\omega)]}{8\pi} \int_{volume-metal} |\mathbf{E}(\mathbf{R}_0, \mathbf{r}, \omega)|^2 d\mathbf{r}$$

Si le champ incident $\mathbf{E_0}(\mathbf{R}_0, \mathbf{r}, \omega)$ est polarisé selon $(x, y$ ou $z)$

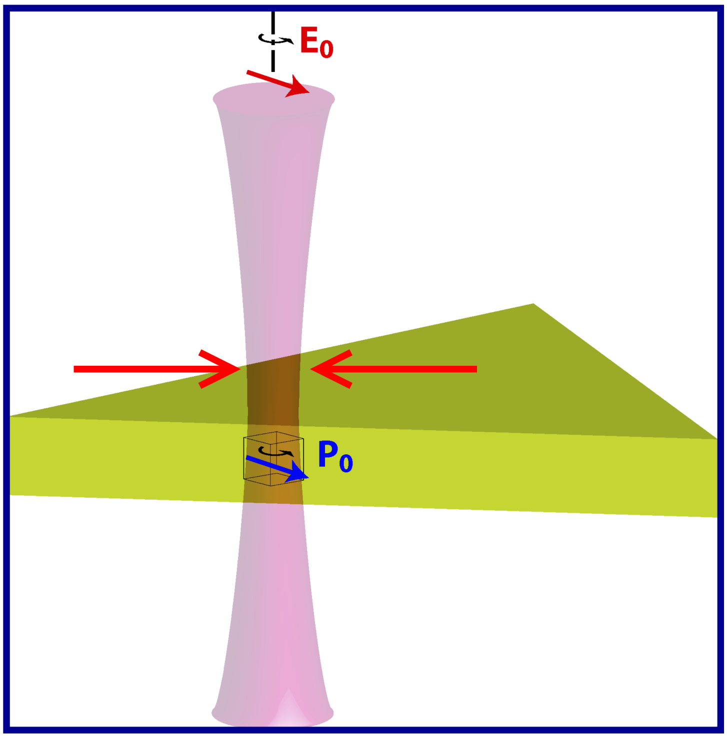
⬇

L'intensité du champ local peut être reliée à la SP–LDOS

$$|\mathbf{E}(\mathbf{R}_0, \mathbf{r}, \omega)|^2 = \frac{3\pi^2 c^3}{\omega^2} \rho_\alpha(\mathbf{r}, \omega) |\mathbf{E_0}(\mathbf{R}_0, \mathbf{r}, \omega)|^2$$

⬇

$$Q(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{3\pi^2 c^3}{8\omega} \Im[\epsilon_m(\omega)] \int_{vm} \rho_\alpha(\mathbf{r}, \omega) |\mathbf{E_0}(\mathbf{R}_0, \mathbf{r}, \omega)|^2 d\mathbf{r}$$



A ce niveau, la réduction spatiale de la zone active du faisceau laser peut s'exprimer par un distribution de Dirac :

$$\left|\mathbf{E}_{\mathbf{0}}^{(\alpha)}(\mathbf{R}_{\mathbf{0}}, \mathbf{r}, \omega_0)\right|^2 \simeq \left|\mathbf{e}_{\mathbf{0}}^{(\alpha)}\right|^2 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{\mathbf{0}}) \ , \tag{15}$$

dans laquelle le vecteur ${\mathbf{e}_{\mathbf{0}}}^{(\alpha)}$ définit la direction de polarisation.

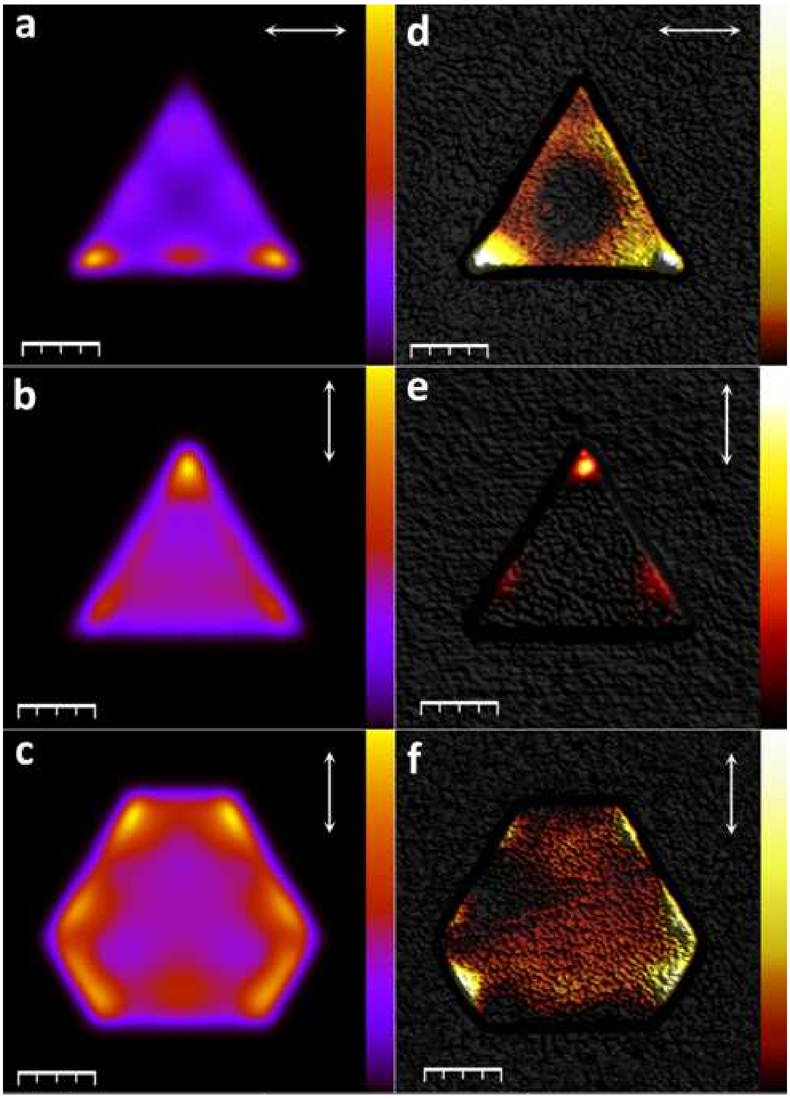
Dans ce cas, la chaleur déposée par le spot :

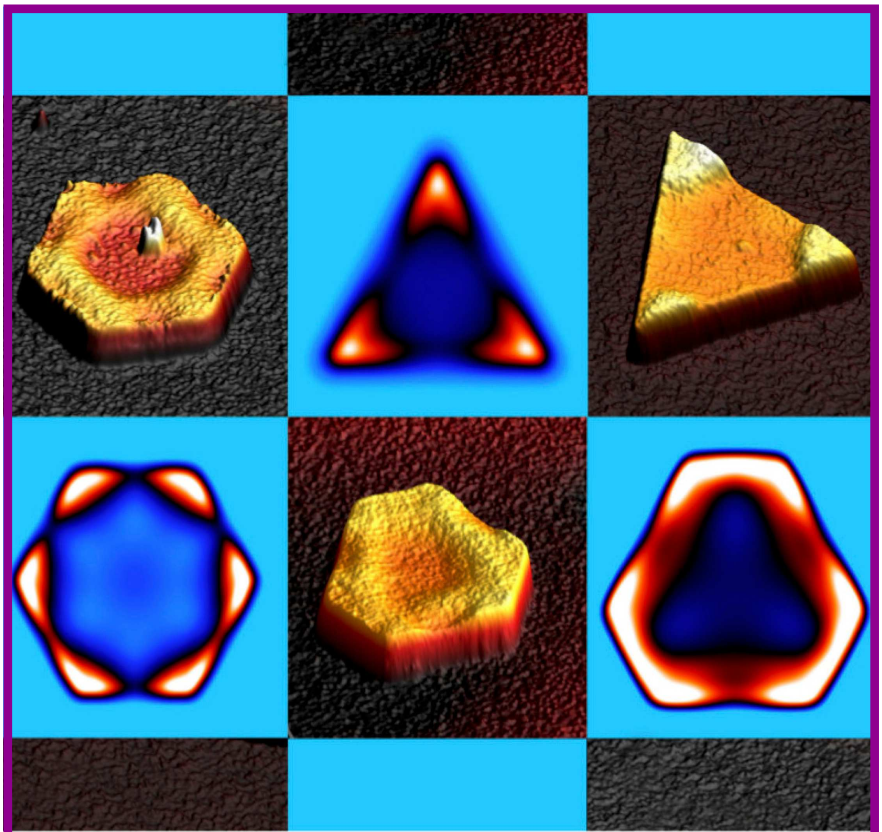
$$Q(\mathbf{R}_{\mathbf{0}}, \omega_0) = \frac{3\pi c^3}{8\omega_0} \epsilon_m^{\prime\prime}(\omega_0) \left|\mathbf{e}_{\mathbf{0}}^{(\alpha)}\right|^2 \rho_\alpha(\mathbf{R}_{\mathbf{0}}, \omega_0) \ , \tag{16}$$

devient strictement proportionelle à la SP–LDOS projetée sur la direction de polarisation.

Expérience avec un laser FEMTO

S. Viarbitskya, A. Cuche
A. Arbouet, J. Sharma et E. Dujardin

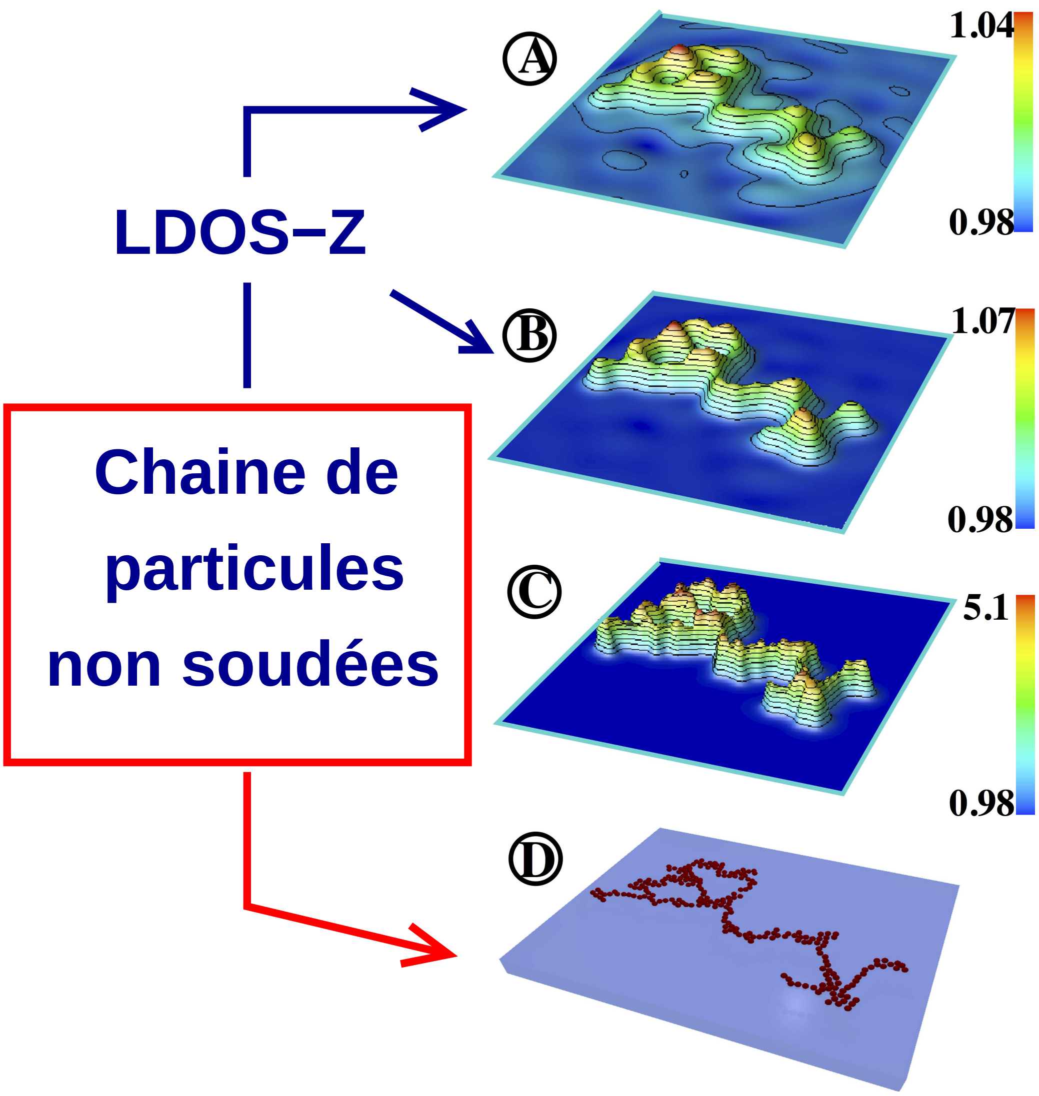




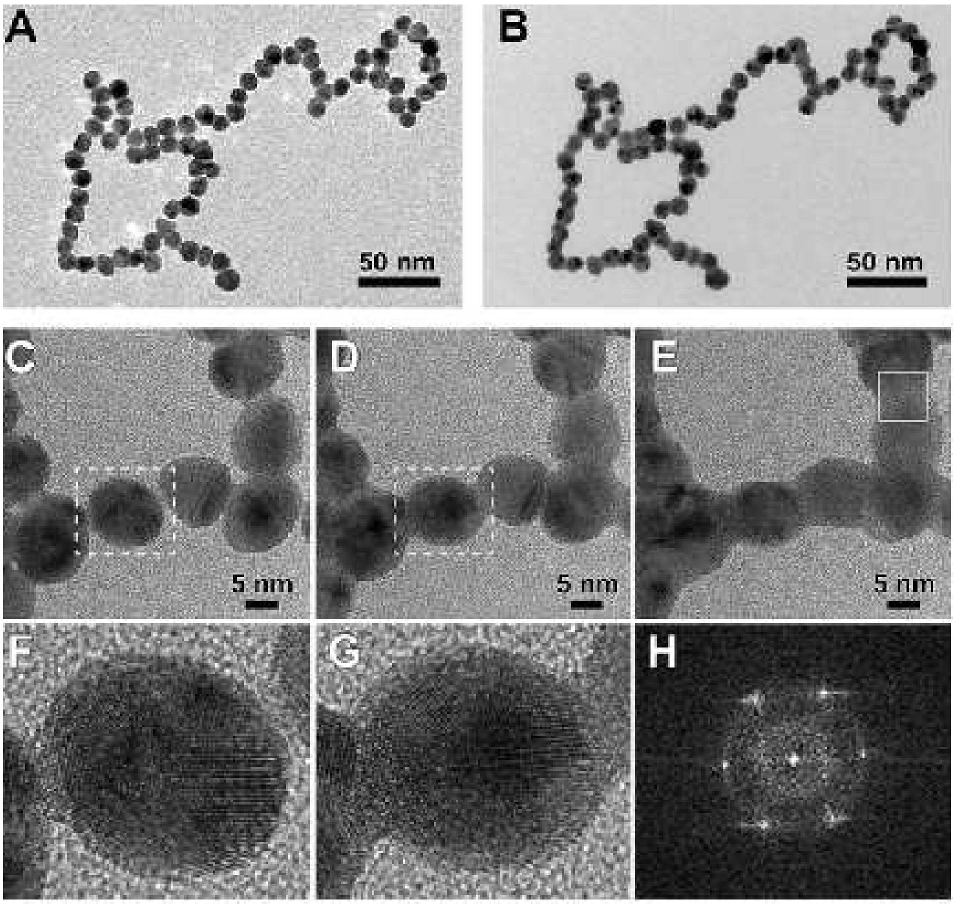
Cartes AFM et SPLDOS
polarisation circulaire

(composé par E. Dujardin)

Modification morphologique : Fusion locale et structure modale de chaines de particules d'or



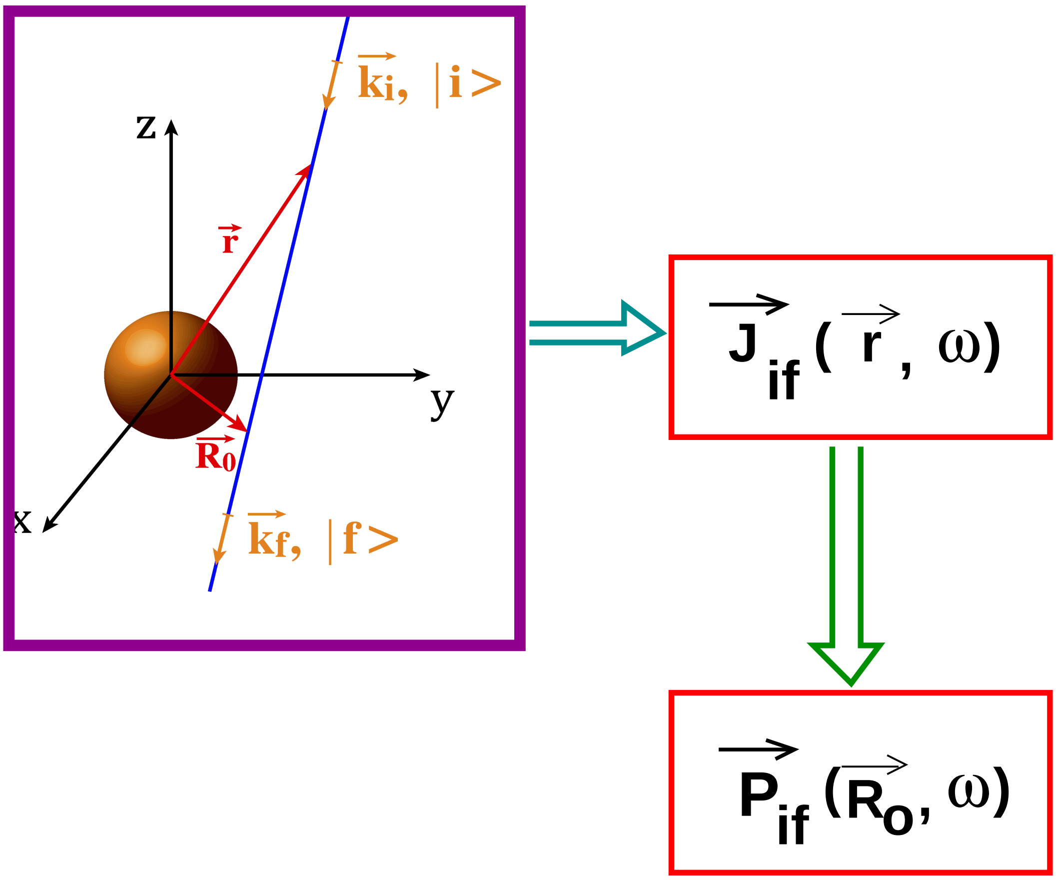
SOUDURES LOCALISEES DE CHAINES DE PARTICULES D'OR EXPOSEES A UN FAISCEAU D'ELECTRONS



Structures synthétisées au CEMES par chimie colloïdale : Erik Dujardin et Gurunathan Kargal
Images enregistrées à IMRE de Singapour par Michel Bosman et Alexandre Teulle

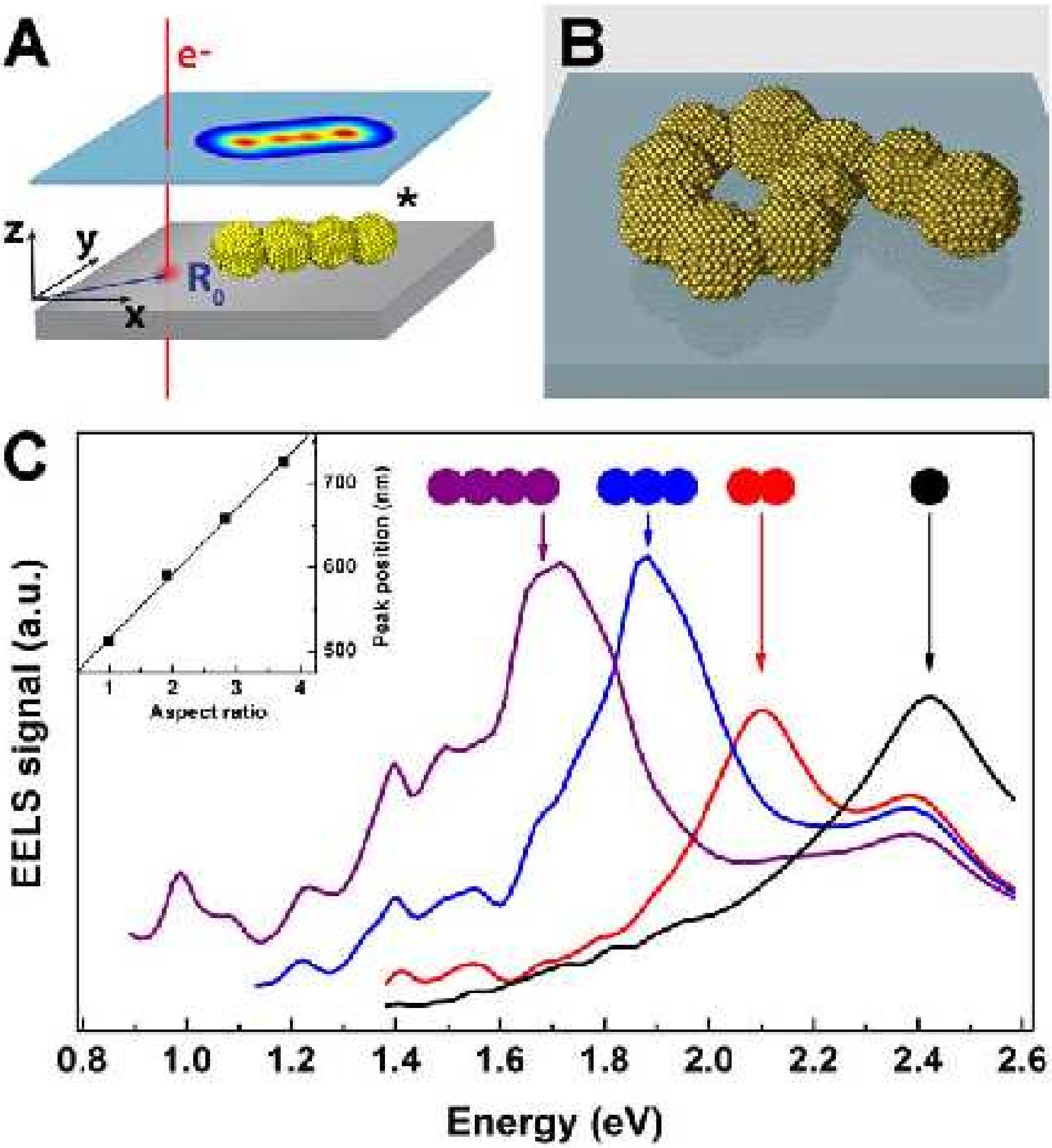
THEORIE DES PERTES D'ENERGIE AU VOISINAGE DE PARTICULES D'OR SOUDEES

Principe de la méthode

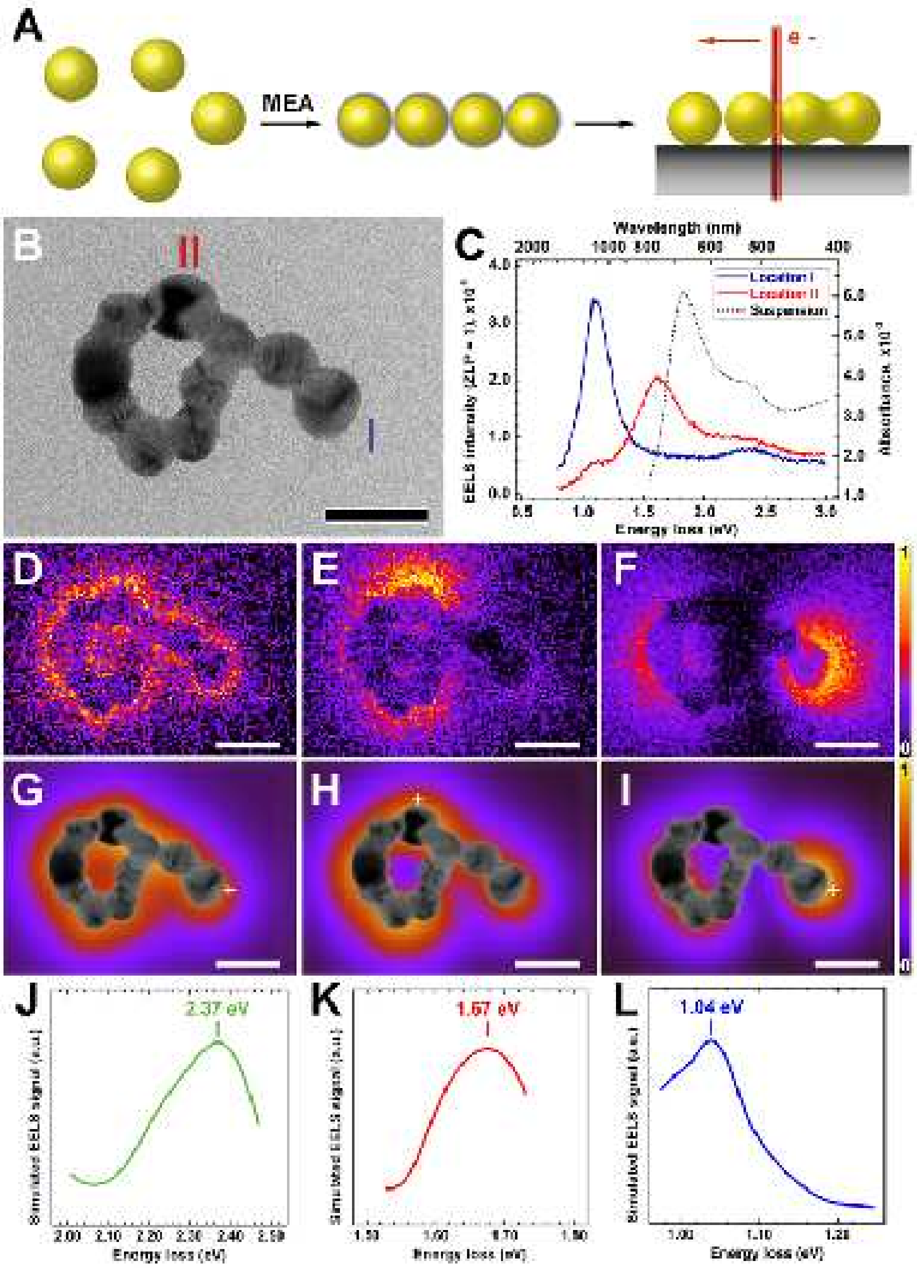


TAUX DE PERTE

$$\Delta E_{EELS}(\omega_0) = \frac{e^2\hbar^2\mathcal{A}^2}{8m^2\omega_0}\Im\{\mathbf{S}_{zz}(\mathbf{R}_0, \mathbf{R}_0, \omega_0)\}, \qquad (17)$$



CAS D'UNE NANOBOUCLE DE PARTICULES D'OR SOUDEES[3]



[3]Les signaux EELS ont été mesurés à l'IMRE de Singapour (Michel Bosman).

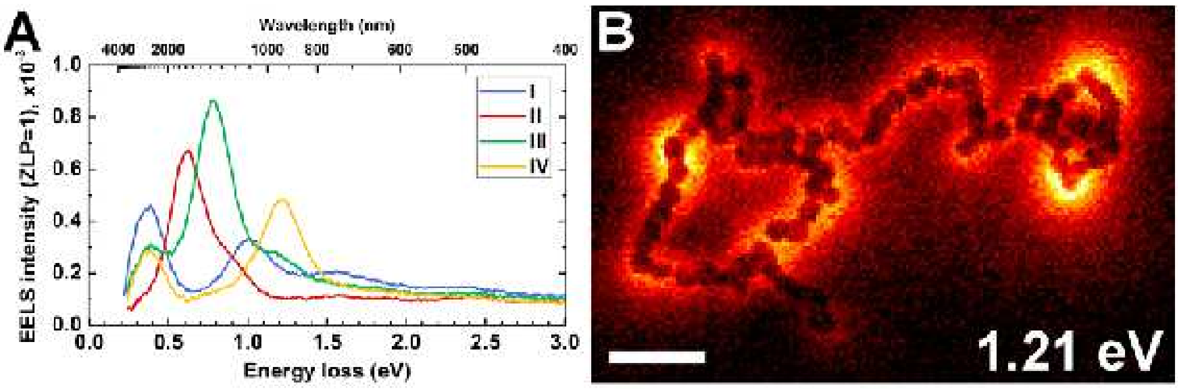
CONCLUSIONS

• L'énergie dissipée par effet Joule, à partir d'un faisceau laser, dans le métal d'une nanostructure plasmonique permet de :

(1) créer des nanosources de chaleur accordables en polarisation et en longueur d'onde.

(2) ou de $<<$ *photographier* $>>$, dans le cas de systèmes planaires, la carte de densité d'états des plasmons à une longueur d'onde choisie.

• Ce même type de dépot d'énergie, lorqu'il est effectué avec un mince faiscaux d'électrons accélérés, peut conduire à une fusion locale suivie d'un soudage *bord à bord* des particules de métal. Dans le cas de chaines de particules d'or, on obtient alors des structures plasmoniques multimodales présentant des signatures spectrales qui s'étendent du visible à l'infrarouge.



Références bibliographiques

(1) A. O. Govorov, W. Zhang, T. Skeini, H. H. Richardson, J. Lee, and N. A. Kotov, Nanoscale Res. Lett. **1**, 84 (2006).

(2) A. O. Govorov and H. H. Richardson, Nanotoday **2**, 30 (2007).

(3) H. H. Richardson, M. T. Carlson, P. J. Tandler, P. Hernandez, and A. O. Govorov, NanoLetters, **9**, 1139 (2009).

(4) G. Baffou and R. Quidant, Laser Photonics Rev. **7**, 171 (2013)

(5) G. Baffou, R. Quidant, and Ch. Girard, Appl. Phys. Lett., **94**, 153109 (2009).

(6) G. Baffou, M. P. Kreuzer , F. Kulzer , and R. Quidant, Optics Express, **17**, 3291 (2009).

(7) Ch. Girard, E. Dujardin, G. Baffou, and R. Quidant, New Journal of Physics, **10**, 105016 (2008).

(8) *Plasmonic Nanoparticle Networks*, Erik Dujardin and Christian Girard, "Handbook of Nanophysics" (K. Sattler, ed.), Taylor & Francis, London 2010, Chapter 27.

(9) Plasmonic Gold Nanocrosses with Multidirectional Excitation and Strong Photothermal Effect Enyi Ye, Khin Yin Win, Hui Ru Tan, Ming Lin, Choon Peng Teng, Adnen Mlayah and Ming-Yong Han J. Am. Chem. Soc., 133, 8506 (2011).

(10) G. Baffou, P. Berto, E. Bermudez Urena, R. Quidant, S. Monneret, J. Polleux, and H. Rigneault, ACS Nano, **7**, 6478 (2013).

(11) M. Essone Mezeme and C Brosseau, Phys. Rev. E **87**, 012722 (2013).

(12) Plasmonic Hot Printing in Gold Nanoprisms, Sviatlana Viarbitskaya, Aurélien Cuche, Alexandre Teulle, Jadab Sharma, Christian Girard, Arnaud Arbouet, and Erik Dujardin. ACS-Photonics, **2**, 744-751 (2015),

(13) Multimodal plasmonics in fused colloidal networks, Alexandre Teulle, Michel Bosman, Christian Girard, Kargal L. Gurunatha, Mei Li, Stephen Mann and Erik Dujardin, Nature Materials, **14**, 87–94 (2015),

(14) Electron energy losses and cathodoluminescence from complex plasmonic nanostructures: spectra, maps and radiation patterns from a generalized field propagator, Arnaud Arbouet, Adnen Mlayah, Christian Girard, and Gérard Colas des Francs, New Journal of Physics, **16**, 113012–14 (2014).