

Nanoptique avec des électrons rapides : métamatériaux, formulation modale de la EMLDOS pour des systèmes plasmoniques

Bouharham Guillaume

Laboratoire de Physique des Solides

07 juillet 2011

PLAN

Partie expérimentale

I) Introduction à la partie expérimentale

- 1) Techniques utilisées pour étudier les nanoparticules à l'échelle du nm
- 2) Brève description de l'EELS dans un STEM

II) Métamatériaux et intérêts d'étudier les atomes photoniques dans le visible

III) Imagerie spectrale d'atomes photoniques individuels

- 1) Technique de lithographie électronique compatible avec une étude l'EELS
- 2) Dépouillement des données
- 3) Simulations numériques utilisées
- 4) Résultats expérimentaux : EELS sur des SRRs individuels

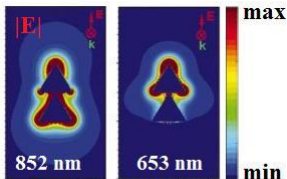
Introduction générale

Propriétés optiques des nanoparticules et plasmons de surface

- Propriétés optiques des nanoparticules métalliques caractérisées par la présence de SPs (visible-NIR)

Propriétés des SPs : $\left\{ \begin{array}{l} \text{taille/forme} \\ \text{nature de la particule} \\ \text{environnement diélectrique} \end{array} \right.$

- Champ EM des SPs confiné sur quelques nm



E. Hao *et al* (2004)

- Exaltation du champ EM sur quelques nm \Rightarrow $\left\{ \begin{array}{l} \text{bio-capteurs} \\ \text{thérapie cancéreuse...} \end{array} \right.$

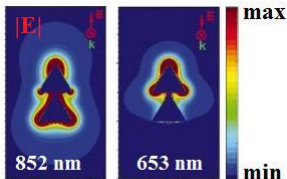
Introduction générale

Propriétés optiques des nanoparticules et plasmons de surface

- Propriétés optiques des nanoparticules métalliques caractérisées par la présence de SPs (visible-NIR)

Propriétés des SPs : $\left\{ \begin{array}{l} \text{taille/forme} \\ \text{nature de la particule} \\ \text{environnement diélectrique} \end{array} \right.$

- Champ EM des SPs confiné sur quelques nm



E. Hao *et al* (2004)

- Exaltation du champ EM sur quelques nm \Rightarrow $\left\{ \begin{array}{l} \text{bio-capteurs} \\ \text{thérapie cancéreuse...} \end{array} \right.$

Exploration des SPs à l'échelle du nm nécessaire \Rightarrow quelle(s) technique(s) utiliser ?

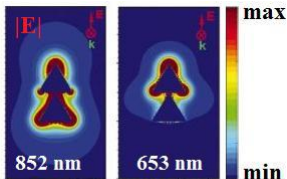
Introduction générale

Propriétés optiques des nanoparticules et plasmons de surface

- Propriétés optiques des nanoparticules métalliques caractérisées par la présence de SPs (visible-NIR)

Propriétés des SPs : $\left\{ \begin{array}{l} \text{taille/forme} \\ \text{nature de la particule} \\ \text{environnement diélectrique} \end{array} \right.$

- Champ EM des SPs confiné sur quelques nm



E. Hao *et al* (2004)

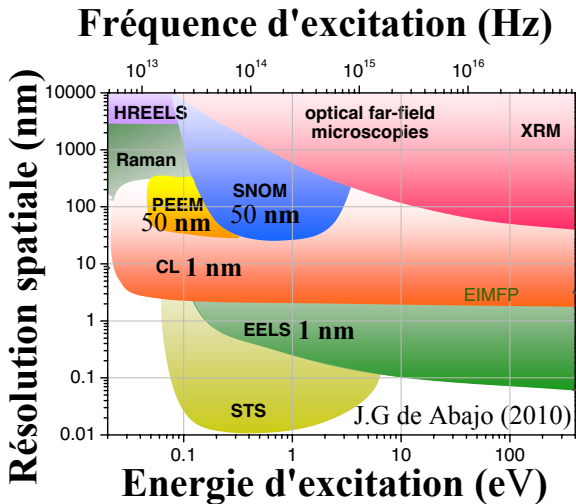
- Exaltation du champ EM sur quelques nm \Rightarrow $\left\{ \begin{array}{l} \text{bio-capteurs} \\ \text{thérapie cancéreuse...} \end{array} \right.$

Exploration des SPs à l'échelle du nm nécessaire \Rightarrow quelle(s) technique(s) utiliser ?

Quelle quantité électromagnétique décrit le mieux un SP : champ électrique, potentiel, charge ?

Introduction générale

Techniques utilisées pour étudier les SPs à l'échelle du nm



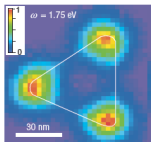
Introduction générale

EELS avec des électrons rapides : principe général

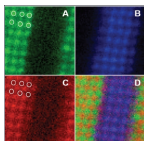
faisceau d'électrons rapides
(100 keV) issu d'un STEM



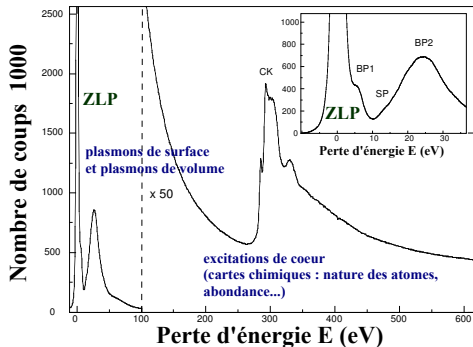
"low loss"



"core loss"



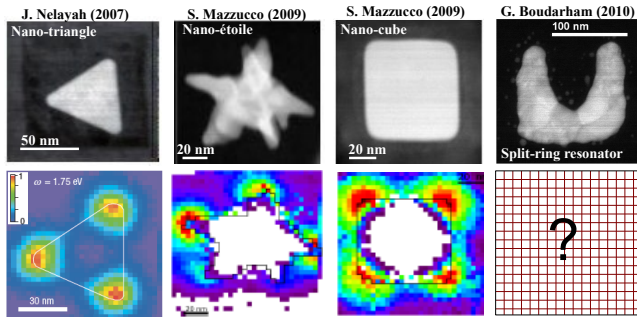
Nelayah *et al* (2007) Muller *et al* (2007)



Introduction générale

Développements expérimentaux par le groupe STEM

- EELS sur des nanoparticules fabriquées par voie chimique
⇒ Peut-on faire de l'EELS sur des nanoobjets lithographiés et si oui comment ?



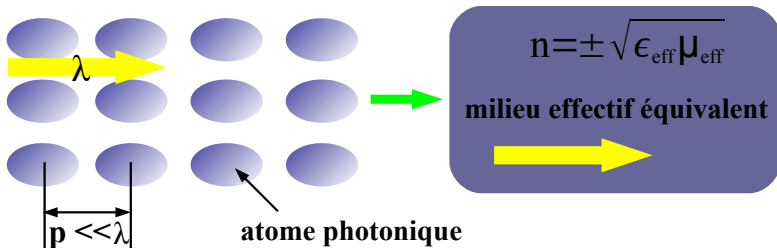
- Développement instrumental (STEM, EELS) et outil de dépeuillement des données
⇒ Manque un outil de simulation numérique dédié à l'EELS disponible pour le groupe STEM

Les métamatériaux

Définition générale des métamatériaux

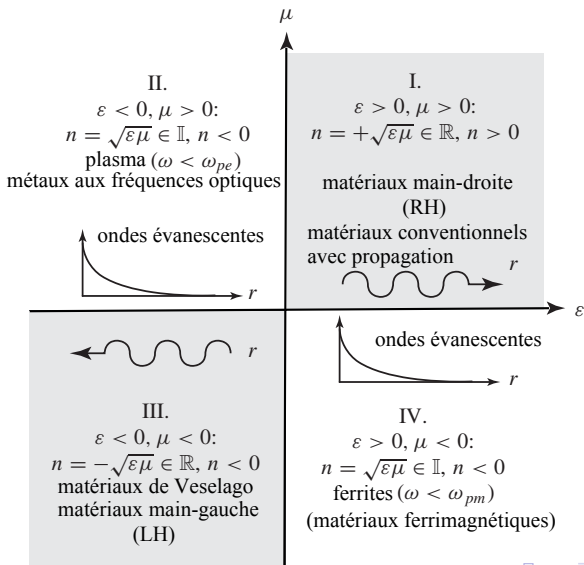
- Structures artificielles avec des propriétés très différentes de celles que l'on peut trouver dans les matériaux conventionnels :
 - grande réponse magnétique
 - perméabilité négative aux fréquences optiques...
- Par analogie avec les atomes réels qui composent la matière "naturelle", on appelle *atomes photoniques* les "constituants élémentaires" des métamatériaux

Milieus effectifs



Les métamatériaux

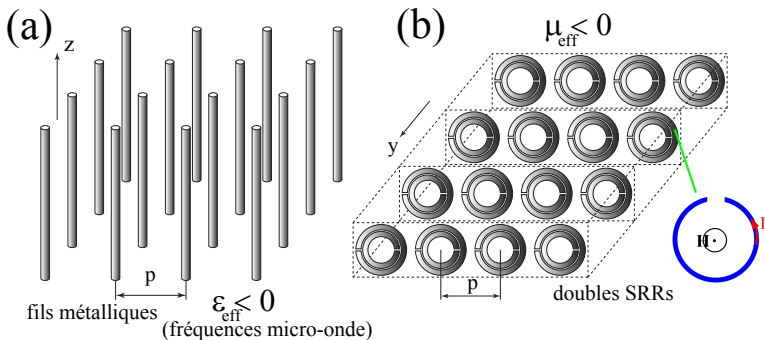
Les différents types de matériau selon le signe du couple (ϵ, μ)



Les métamatériaux

Prédiction théorique des matériaux $\Rightarrow n < 0$

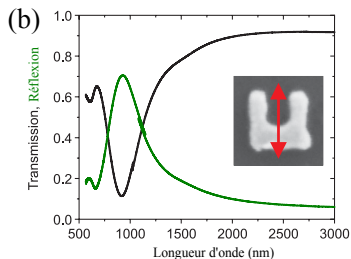
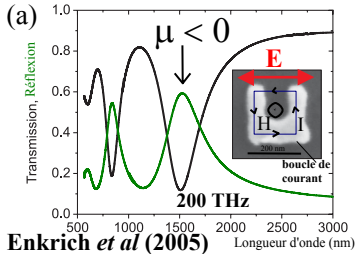
- 1967 : V. Veselago prédit théoriquement l'existence de matériaux ayant simultanément $\epsilon_{\text{eff}} < 0$ et $\mu_{\text{eff}} < 0 \Rightarrow n < 0$
- Fin des années 90 : J. Pendry proposa une réalisation de ces métamatériaux à l'aide d'une structure périodique métallique formée d'anneaux concentriques fendus, appelés *split-ring resonators* (SRRs) et de fils métalliques



Les métamatériaux

Réalisation des matériaux $n < 0$: des micro-ondes aux fréquences optiques

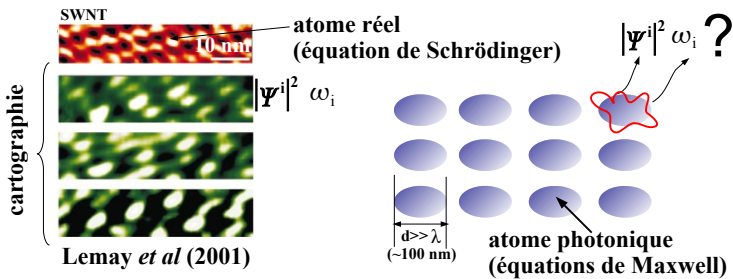
- En 2000 : fabrication du premier prototype de métamatériau $n < 0$ dans le domaine des micro-ondes en combinant un réseau de fils métalliques avec un réseau de SRRs par D.R. Smith *et al*
- Quelques années après, différentes études ont confirmé l'existence et les propriétés des matériaux $n < 0$ jusqu'aux domaines des très hautes fréquences (fréquences telecom, THz)



Etude d'atomes photoniques

Application au cas des split-ring resonators (SRRs)

Analogie entre les atomes réels et les atomes photoniques

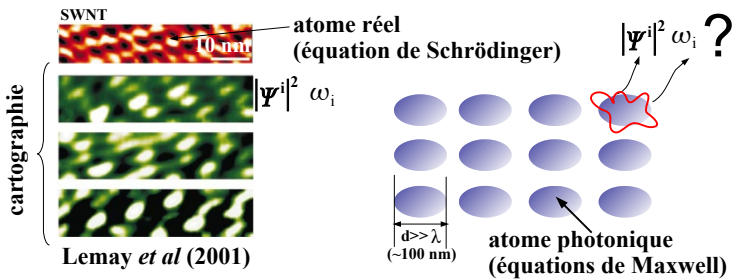


- Accès expérimental à la variation des fonctions d'onde à différentes énergies sur des atomes réels (Lemay *et al* en 2001)
- Avant nos travaux, pas d'étude analogue sur des atomes photoniques dans le visible, bien que la taille de ces atomes soit environ 1000 fois plus grande que celle des atomes réels

Etude d'atomes photoniques

Application au cas des split-ring resonators (SRRs)

Analogie entre les atomes réels et les atomes photoniques



- Accès expérimental à la variation des fonctions d'onde à différentes énergies sur des atomes réels (Lemay *et al* en 2001)
- Avant nos travaux, pas d'étude analogue sur des atomes photoniques dans le visible, bien que la taille de ces atomes soit environ 1000 fois plus grande que celle des atomes réels

⇒ Afin de pallier ce manque, nous avons considéré l'exemple des SRRs qui appartient à une classe importante d'atomes photoniques

Etude d'atomes photoniques

Application au cas des split-ring resonators (SRRs)

Nécessité d'une étude expérimentale des SRRs dans le visible

Caractérisation expérimentale complète de ces atomes photoniques dans le visible particulièrement importante puisque dans ce domaine spectral :

- excitations associées aux SPs et de volume du métal ;
- inertie des électrons importante ;
- relations de dispersion différentes de celles de la lumière dans le vide et dépendent des rapports d'aspect de la nanostructure ;
- dissipation d'énergie dans le métal à prendre en compte

Etude d'atomes photoniques

Application au cas des split-ring resonators (SRRs)

Nécessité d'une étude expérimentale des SRRs dans le visible

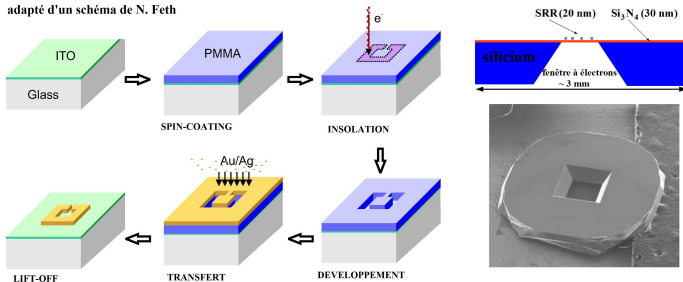
Caractérisation expérimentale complète de ces atomes photoniques dans le visible particulièrement importante puisque dans ce domaine spectral :

- excitations associées aux SPs et de volume du métal ;
- inertie des électrons importante ;
- relations de dispersion différentes de celles de la lumière dans le vide et dépendent des rapports d'aspect de la nanostructure ;
- dissipation d'énergie dans le métal à prendre en compte

⇒ Travail réalisé sur des échantillons d'argent lithographiés par une technique compatible avec une étude EELS

Fabrication des échantillons (N. Feth, Allemagne)

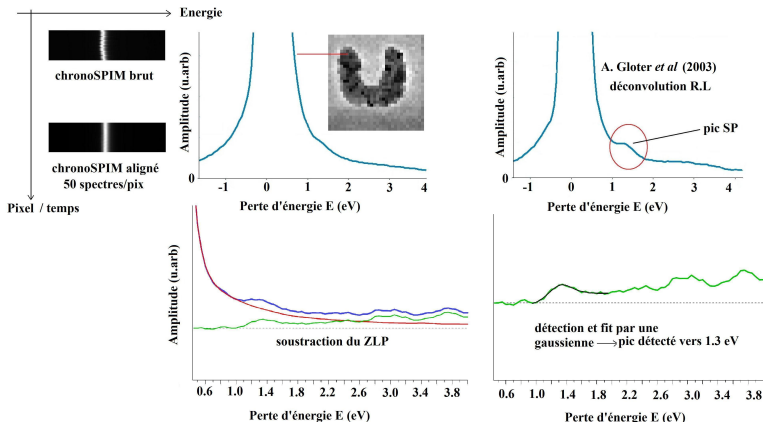
adapté d'un schéma de N. Feth



- SRRs fabriquées par une technique de lithographie électronique compatible avec une étude EELS

⇒ Echantillons déposés sur une membrane de Si_3N_4 transparente aux électrons
⇒ Membrane suspendue sur un wafer de silicium
⇒ Fenêtre pour laisser passer les électrons issus du STEM

Post-traitement des données après acquisition (G. Boudarham)



- Augmentation de la résolution en énergie à environ 0.2 eV (largeur à mi-hauteur du ZLP)
- Suppression d'une partie du fond due aux diffusions élastiques des e^- dans le matériau
- Meilleure détection des pics proches du ZLP et de faible amplitude

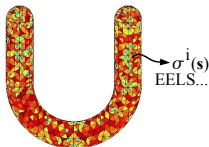
Procédure numérique utilisée en complément des expériences

- Connaissance de la phase des excitations SPs nécessaire pour comprendre la nature des excitations créées \Rightarrow Phase inaccessible en EELS

\rightarrow Cependant, on peut faire des simulations numériques \Rightarrow boundary element method (BEM) implémentée dans COMSOL

\rightarrow Aucune application dédiée à l'EELS n'existe dans COMSOL

$$2\pi\lambda_i\sigma^i(\mathbf{s}) = PP \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}')\sigma^i(\mathbf{s}')$$



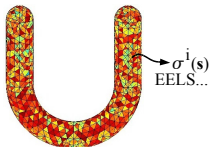
Procédure numérique utilisée en complément des expériences

- Connaissance de la phase des excitations SPs nécessaire pour comprendre la nature des excitations créées \Rightarrow Phase inaccessible en EELS

\rightarrow Cependant, on peut faire des simulations numériques \Rightarrow boundary element method (BEM) implémentée dans COMSOL

\rightarrow Aucune application dédiée à l'EELS n'existe dans COMSOL

$$2\pi\lambda_i\sigma^i(\mathbf{s}) = PP \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}')\sigma^i(\mathbf{s}')$$



\Rightarrow Travail entier d'implémentation (traitement des singularités ...) mais solveurs, algorithmes de maillage déjà disponibles

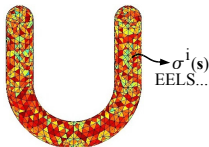
Procédure numérique utilisée en complément des expériences

- Connaissance de la phase des excitations SPs nécessaire pour comprendre la nature des excitations créées \Rightarrow Phase inaccessible en EELS

\rightarrow Cependant, on peut faire des simulations numériques \Rightarrow boundary element method (BEM) implémentée dans COMSOL

\rightarrow Aucune application dédiée à l'EELS n'existe dans COMSOL

$$2\pi\lambda_i\sigma^i(\mathbf{s}) = PP \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}')\sigma^i(\mathbf{s}')$$



\Rightarrow Travail entier d'implémentation (traitement des singularités ...) mais solveurs, algorithmes de maillage déjà disponibles

\Rightarrow Discrétisation en surface uniquement \rightarrow gain de temps / DDA (approximation des dipôles discrets)

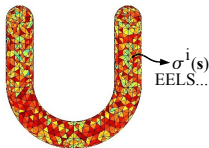
Procédure numérique utilisée en complément des expériences

- Connaissance de la phase des excitations SPs nécessaire pour comprendre la nature des excitations créées \Rightarrow Phase inaccessible en EELS

\rightarrow Cependant, on peut faire des simulations numériques \Rightarrow boundary element method (BEM) implémentée dans COMSOL

\rightarrow Aucune application dédiée à l'EELS n'existe dans COMSOL

$$2\pi\lambda_i\sigma^i(\mathbf{s}) = PP \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}')\sigma^i(\mathbf{s}')$$

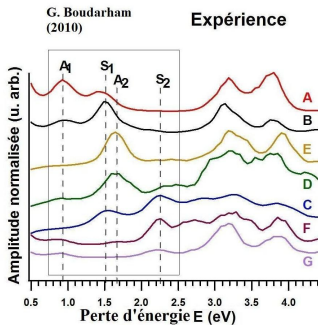
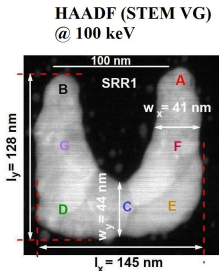


\Rightarrow Travail entier d'implémentation (traitement des singularités ...) mais solveurs, algorithmes de maillage déjà disponibles

\Rightarrow Discrétisation en surface uniquement \rightarrow gain de temps / DDA (approximation des dipôles discrets)

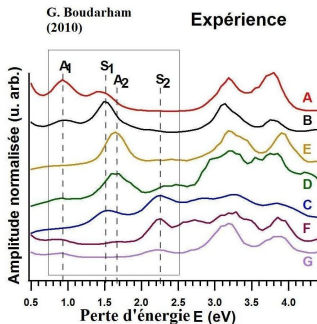
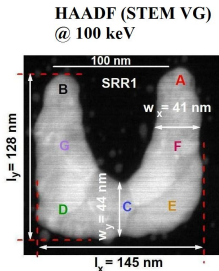
\Rightarrow Un outil "clé en main" dédié à l'EELS désormais disponible pour le groupe STEM

Imagerie spectrale de SRRs individuels



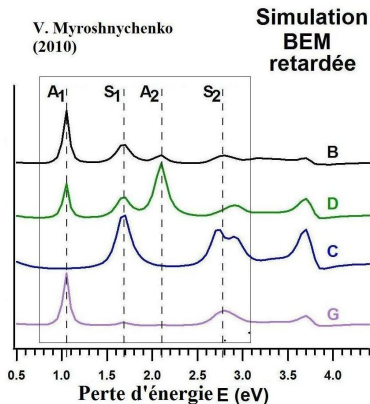
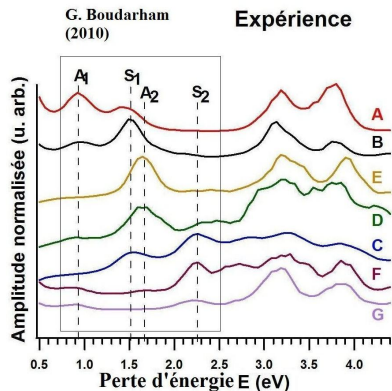
- Détection de pics notés A_1 , A_2 , S_1 et S_2 (vis-NIR) et pics de plus haute énergie $> 2.5 \text{ eV}$
- En accord avec les expériences optiques mais nous mesurons tous les modes simultanément
- S_2 jamais été observé dans de précédentes expériences

Imagerie spectrale de SRRs individuels



- Détection de pics notés A_1 , A_2 , S_1 et S_2 (vis-NIR) et pics de plus haute énergie $> 2.5 \text{ eV}$
- En accord avec les expériences optiques mais nous mesurons tous les modes simultanément
- S_2 jamais été observé dans de précédentes expériences
- Simulations numériques des spectres pour confirmer la présence de ces pics

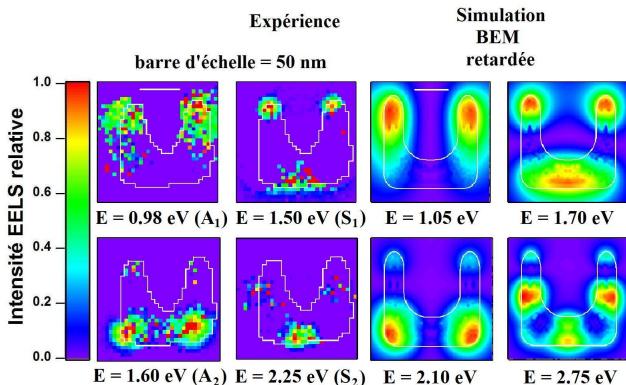
Imagerie spectrale de SRRs individuels



→ Pics bien reproduits dans les simulations numériques retardées

→ Pour chaque pic détecté, cartes EELS en amplitude générées automatiquement

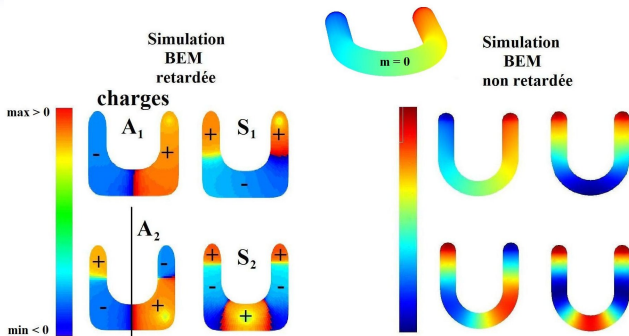
Distribution spatiale du signal EELS



- La distance, mesurée le long du SRR, entre les maxima résolus diminue lorsque l'énergie augmente \Rightarrow en accord avec les simulations numériques retardées
- Les cartes EELS reflètent-elles l'oscillation d'ondes stationnaires plasmoniques dans le SRR ?

\Rightarrow Simulations numériques de la densité de charges

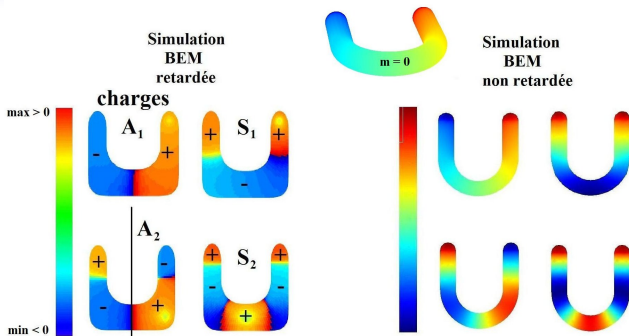
Densités de charges calculées



Classification des modes selon la symétrie des oscillations

- A_1 : "mode magnétique" (boucle de courant dans le SRR $\Rightarrow \mu < 0$)
- S_1 , A_2 et S_2 , alternent entre une distribution de charges symétrique puis antisymétrique par rapport à l'axe central du SRR
- Les modes A et S ont la symétrie azimutale ($m = 0$) (souvent observé dans les minces nanoparticules et nanoantennes dans le cas non retardé)

Densités de charges calculées

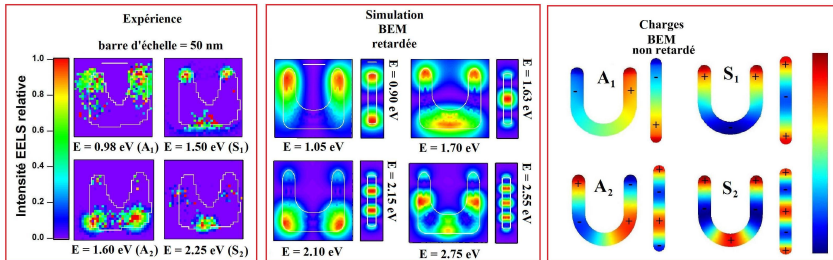


Classification des modes selon la symétrie des oscillations

- A₁ : "mode magnétique" (boucle de courant dans le SRR $\Rightarrow \mu < 0$)
- S₁, A₂ et S₂, alternent entre une distribution de charges symétrique puis antisymétrique par rapport à l'axe central du SRR
- Les modes A et S ont la symétrie azimutale ($m = 0$) (souvent observé dans les minces nanoparticules et nanoantennes dans le cas non retardé)

\Rightarrow Cartes EELS interprétées comme reflétant l'oscillation des ondes stationnaires plasmoniques

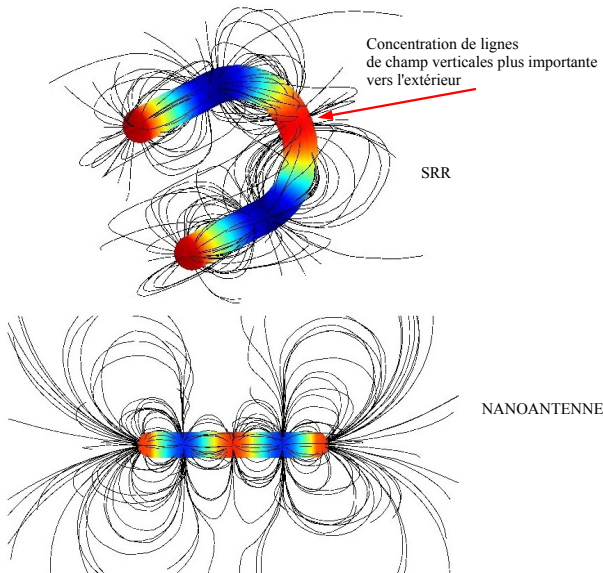
EELS sur des SRRs individuels : SRR vs nanoantenne



- Densités de charges presque identiques pour un SRR et une nanoantenne
- Cependant, pour un SRR : EELS concentré plutôt vers l'extérieur pour certains maxima

⇒ Comment expliquer cet effet ? ⇒ on calcule les lignes de champ électrique

Champ électrique calculé autour du SRR et d'une nanoantenne



EELS sur des SRRs individuels : SRR vs nanoantenne

SRR vs nanoantenne

- ⇒ Distribution spatiale de la densité de charges presque identique pour un SRR et une nanoantenne
- ⇒ Distribution spatiale de la densité de charges non influencée par la courbure du SRR
- ⇒ La forme du SRR explique pourquoi l'EELS (sensible à $|E_z(x, y, z_0)|^2$) est différent pour un SRR et une nanoantenne alors que la densité de charges est presque la même

EELS sur des SRRs individuels : SRR vs nanoantenne

SRR vs nanoantenne

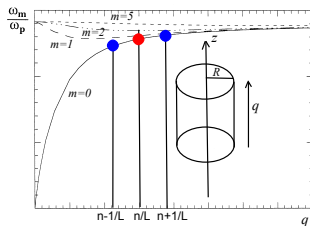
- ⇒ Distribution spatiale de la densité de charges presque identique pour un SRR et une nanoantenne
 - ⇒ Distribution spatiale de la densité de charges non influencée par la courbure du SRR
 - ⇒ La forme du SRR explique pourquoi l'EELS (sensible à $|E_z(x, y, z_0)|^2$) est différent pour un SRR et une nanoantenne alors que la densité de charges est presque la même
- Que dire de la distribution des énergies des modes d'un SRR par rapport à celle d'une nanoantenne ?

EELS sur des SRRs individuels : SRR vs nanoantenne

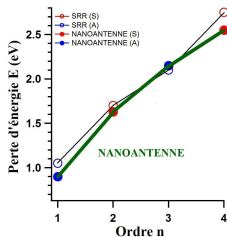
SRR vs nanoantenne

- ⇒ Distribution spatiale de la densité de charges presque identique pour un SRR et une nanoantenne
- ⇒ Distribution spatiale de la densité de charges non influencée par la courbure du SRR
- ⇒ La forme du SRR explique pourquoi l'EELS (sensible à $|E_z(x, y, z_0)|^2$) est différent pour un SRR et une nanoantenne alors que la densité de charges est presque la même
- Que dire de la distribution des énergies des modes d'un SRR par rapport à celle d'une nanoantenne ?
- ⇒ On trace les courbes de dispersion pour le SRR étudié et celle d'une nanoantenne

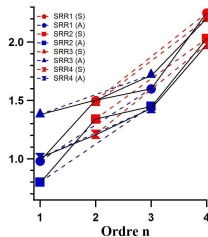
Courbes de dispersion des modes détectés



Simulation (BEM retardé)

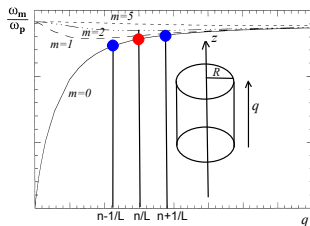


Expériences

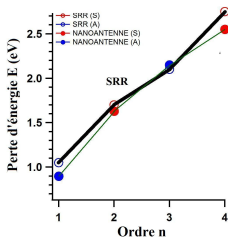


- Pour une nanoantenne \Rightarrow courbe de dispersion concave (branche $m = 0$ d'un cylindre infini) (c.f Kliewer)
- Pour un SRR \Rightarrow l'espacement des énergies des modes prises par ordre croissant n'est pas monotone (courbe en "escalier")

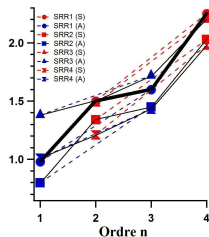
Courbes de dispersion des modes détectés



Simulation (BEM retardé)

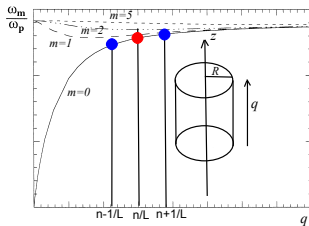


Expériences

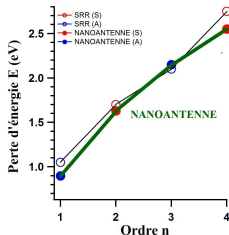


- Pour une nanoantenne \Rightarrow courbe de dispersion concave (branche $m = 0$ d'un cylindre infini) (c.f Kliewer)
- Pour un SRR \Rightarrow l'espacement des modes prises par ordre croissant n'est pas monotone (courbe en "escalier")

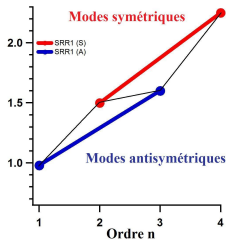
Courbes de dispersion des modes détectés



Simulation (BEM retardé)



Expériences



⇒ Séparation en énergie entre les modes S d'une part et les modes A d'autre part est presque la même

→ Couplage entre les deux pattes du SRR brise la dégénérescence de la relation de dispersion initiale qui serait associée à une nanoantenne (SRR déplié) sans affecter, au 1^{er} ordre, la distribution de charges

⇒ Apparition de deux courbes de dispersion presque parallèles

⇒ Modes S : branche de haute énergie et modes A : branche de basse énergie

Conclusions et perspectives à la partie expérimentale

- Ce travail devrait maintenant donner des renseignements utiles sur les métamatériaux constitués par ces SRRs
- Les développements expérimentaux et numériques proposés peuvent être étendus à toutes les structures fabriquées par lithographie électronique \Rightarrow caractérisation complète du champ proche d'un vaste ensemble de métamatériaux
- Utilisation possible d'un monochromateur pour éviter les effets de polychromaticité qui nécessitent une déconvolution des spectres après leur acquisition \rightarrow augmentation de la résolution en énergie et meilleure détection des pics de faible amplitude et proches du ZLP

PLAN

Partie théorique

- I) Introduction à la partie théorique
 - 1) Problème avec la EMLDOS plasmonique
 - 2) Définition des modes propres géométriques

- II) Expression universelle de la EMLDOS pour un système plasmonique et comparaison avec la EMLDOS photonique

- III) Expressions de l'EELS et du SNOM en terme des modes propres géométriques

- IV) Une LDOS pour les modes propres géométriques

Introduction générale

problème avec la EMLDOS plasmonique

- Lien entre EELS et EMLDOS (J. G de Abajo & M. Kociak, 2008)

$$\Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = 2\pi/\omega \rho_{\mathbf{z}}(\mathbf{R}_0, q, \omega)$$

- L'EELS semble donc être une bonne mesure des propriétés du champ électromagnétique

En photonique

$$\rho(\mathbf{r}, \omega) = \sum_i |\mathbf{E}^i(\mathbf{r}, \omega_i)|^2 \delta(\omega - \omega_i)$$

→ La EMLDOS évaluée à ω_j donne la distribution spatiale du mode propre photonique $\mathbf{E}^j(\mathbf{r}, \omega_j)$

Introduction générale

problème avec la EMLDOS plasmonique

- Lien entre EELS et EMLDOS (J. G de Abajo & M. Kociak, 2008)

$$\Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = 2\pi/\omega \rho_{\mathbf{z}}(\mathbf{R}_0, q, \omega)$$

- L'EELS semble donc être une bonne mesure des propriétés du champ électromagnétique

En photonique

$$\rho(\mathbf{r}, \omega) = \sum_i |\mathbf{E}^i(\mathbf{r}, \omega_i)|^2 \delta(\omega - \omega_i)$$

→ La EMLDOS évaluée à ω_j donne la distribution spatiale du mode propre photonique $\mathbf{E}^j(\mathbf{r}, \omega_j)$

→ Pas de décomposition modale universelle analogue en plasmonique

Introduction générale

problème avec la EMLDOS plasmonique

- Lien entre EELS et EMLDOS (J. G de Abajo & M. Kociak, 2008)

$$\Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = 2\pi/\omega \rho_{\mathbf{z}}(\mathbf{R}_0, q, \omega)$$

- L'EELS semble donc être une bonne mesure des propriétés du champ électromagnétique

En photonique

$$\rho(\mathbf{r}, \omega) = \sum_i |\mathbf{E}^i(\mathbf{r}, \omega_i)|^2 \delta(\omega - \omega_i)$$

→ La EMLDOS évaluée à ω_j donne la distribution spatiale du mode propre photonique $\mathbf{E}^i(\mathbf{r}, \omega_j)$

→ Pas de décomposition modale universelle analogue en plasmonique

→ L'interprétation de la EMLDOS photonique ne marche plus en plasmonique pour des structures dissipatives car modes propres mal définis

Introduction générale

problème avec la EMLDOS plasmonique

- Lien entre EELS et EMLDOS (J. G de Abajo & M. Kociak, 2008)

$$\Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = 2\pi/\omega \rho_{\mathbf{z}}(\mathbf{R}_0, q, \omega)$$

- L'EELS semble donc être une bonne mesure des propriétés du champ électromagnétique

En photonique

$$\rho(\mathbf{r}, \omega) = \sum_i |\mathbf{E}^i(\mathbf{r}, \omega_i)|^2 \delta(\omega - \omega_i)$$

→ La EMLDOS évaluée à ω_j donne la distribution spatiale du mode propre photonique $\mathbf{E}^i(\mathbf{r}, \omega_j)$

→ Pas de décomposition modale universelle analogue en plasmonique

→ L'interprétation de la EMLDOS photonique ne marche plus en plasmonique pour des structures dissipatives car modes propres mal définis

→ Quelles sont les quantités mesurées en EELS ?

Introduction générale

problème avec la EMLDOS plasmonique

- Lien entre EELS et EMLDOS (J. G de Abajo & M. Kociak, 2008)

$$\Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = 2\pi/\omega \rho_{\mathbf{z}}(\mathbf{R}_0, q, \omega)$$

- L'EELS semble donc être une bonne mesure des propriétés du champ électromagnétique

En photonique

$$\rho(\mathbf{r}, \omega) = \sum_i |\mathbf{E}^i(\mathbf{r}, \omega_i)|^2 \delta(\omega - \omega_i)$$

→ La EMLDOS évaluée à ω_j donne la distribution spatiale du mode propre photonique $\mathbf{E}^i(\mathbf{r}, \omega_j)$

→ Pas de décomposition modale universelle analogue en plasmonique

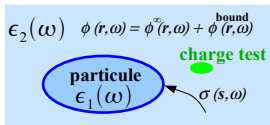
→ L'interprétation de la EMLDOS photonique ne marche plus en plasmonique pour des structures dissipatives car modes propres mal définis

→ Quelles sont les quantités mesurées en EELS ?

⇒ Introduction de nouveaux modes propres indépendants de la nature du milieu

Modes propres géométriques

Une équation intégrale pour la densité de charges



- Equation de Poisson $\nabla [\epsilon(\mathbf{r}, \omega) \nabla \phi(\mathbf{r}, \omega)] = -4\pi\rho^{\text{ext}}(\mathbf{r}, \omega) + \text{C.C}$ sur ϕ et de $-\epsilon \nabla \phi$

$$\Rightarrow \phi^{\text{bound}}(\mathbf{r}, \omega) = \oint d\mathbf{s} \frac{\sigma(\mathbf{s}, \omega)}{|\mathbf{r} - \mathbf{s}|} \quad (1)$$

avec (J.G de Abajo *et al*, 1997)

$$2\pi\lambda(\omega)\sigma(\mathbf{s}, \omega) = \underbrace{\mathbf{n} \cdot \nabla \phi^\infty(\mathbf{s}, \omega)}_{\text{terme source}} + PP \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}') \sigma(\mathbf{s}', \omega) \quad (2)$$

où

$$\lambda(\omega) = \frac{\epsilon_2(\omega) + \epsilon_1(\omega)}{\epsilon_2(\omega) - \epsilon_1(\omega)} \quad \text{et} \quad F(\mathbf{s}, \mathbf{s}') = -\frac{\mathbf{n} \cdot (\mathbf{s} - \mathbf{s}')}{|\mathbf{s} - \mathbf{s}'|^3} \quad (3)$$

Modes propres géométriques

Annulation du terme source \Rightarrow oscillations libres de la densité de charges

$$\boxed{2\pi\lambda_j\sigma^i(\mathbf{s}) = \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}')\sigma^i(\mathbf{s}')} \quad \text{où} \quad \boxed{\oint d\mathbf{s} \oint d\mathbf{s}' \frac{\sigma^i(\mathbf{s})\sigma^j(\mathbf{s}')^*}{|\mathbf{s} - \mathbf{s}'|} = \delta_{ij}} \quad (4)$$

\rightarrow Les $\sigma^i(\mathbf{s})$ sont définis quelque soit la nature des milieux (métaux dissipatifs, isolants...)

\rightarrow Les λ_j ne sont pas les énergies mais des quantités réelles ($|\lambda_j| < 1$) sans dimension indépendantes de la nature des milieux

\rightarrow Les $\sigma^i(\mathbf{s})$ sont bi-orthogonaux entre eux (inhabituel)

Modes propres géométriques

Annulation du terme source \Rightarrow oscillations libres de la densité de charges

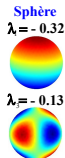
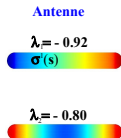
$$\boxed{2\pi\lambda_i\sigma^i(\mathbf{s}) = \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}')\sigma^i(\mathbf{s}')} \quad \text{où} \quad \boxed{\oint d\mathbf{s} \oint d\mathbf{s}' \frac{\sigma^i(\mathbf{s})\sigma^j(\mathbf{s}')^*}{|\mathbf{s} - \mathbf{s}'|} = \delta_{ij}} \quad (4)$$

\rightarrow Les $\sigma^i(\mathbf{s})$ sont définis quelque soit la nature des milieux (métaux dissipatifs, isolants...)

\rightarrow Les λ_i ne sont pas les énergies mais des quantités réelles ($|\lambda_i| < 1$) sans dimension indépendantes de la nature des milieux

\rightarrow Les $\sigma^i(\mathbf{s})$ sont bi-orthogonaux entre eux (inhabituel)

$\Rightarrow \sigma^i(\mathbf{s})$ et λ_i ne dépendent que de la forme du matériau \Rightarrow *modes propres géométriques*



EMLDOS en terme des modes propres géométriques

EMLDOS (généralisée) obtenue en prenant la partie imaginaire de la dyade de Green

$$\rho_{\alpha\beta}^{\text{EM}}(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \Im \left\{ \left[\overleftrightarrow{\mathbf{W}}_{\alpha\beta}^{\text{bound}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega) \right] \right\} \quad (\text{EMLDOS})$$

$$\Rightarrow \rho^{\text{EM}}(\mathbf{r}, \omega) \equiv \sum_{\alpha=x,y,z} \rho_{\alpha\alpha}^{\text{EM}}(\mathbf{r}, \omega) = \rho^{\text{SP}}(\mathbf{r}, \omega) + \rho^{\text{beg}}(\mathbf{r}, \omega)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho^{\text{SP}}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi^2\omega} \sum_{i=1}^N \Im [-g_i(\omega)] |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2 \quad (\text{terme dû aux excitations de surface}) \\ \rho^{\text{beg}}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi^2\omega} \sum_{i=1}^N \Im \left[\frac{1}{\epsilon_{\mu}(\omega)} \right] |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2 \quad \text{où } \mu = 1, 2 \quad (\text{termes begrenzung}) \end{array} \right.$$

où

$$g_i(\omega) = \frac{2}{\epsilon_1(\omega)(1 + \lambda_i) + \epsilon_2(\omega)(1 - \lambda_i)}$$

EMLDOS en terme des modes propres géométriques

L'intégration dans tout l'espace et sur ω donne le nombre total d'états de surface accessibles

$$\rho^{\text{SP}} = N \quad \text{et} \quad \rho^{\text{beg}} = -N$$

EMLDOS en terme des modes propres géométriques

Cas particulier du modèle de Drude dissipatif

Pour une particule plongée dans l'air et décrite par un modèle de Drude dissipatif

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)}$$

$$\rho^{\text{SP}}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi^2} \sum_{i=1}^N \frac{\Gamma \tilde{\omega}_i^2}{\Gamma^2 \omega^2 + (\omega^2 - \tilde{\omega}_i^2)^2} |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2 \xrightarrow{\Gamma \rightarrow 0} \frac{1}{4\pi} \sum_{i=1}^N \delta(\omega - \tilde{\omega}_i) |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2$$

$$\text{où } \tilde{\omega}_i = \frac{\omega_p}{\sqrt{2}} \sqrt{1 + \lambda_i}$$

EMLDOS en terme des modes propres géométriques

Cas particulier du modèle de Drude dissipatif

Pour une particule plongée dans l'air et décrite par un modèle de Drude dissipatif

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)}$$

$$\rho^{\text{SP}}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi^2} \sum_{i=1}^N \frac{\Gamma \tilde{\omega}_i^2}{\Gamma^2 \omega^2 + (\omega^2 - \tilde{\omega}_i^2)^2} |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2 \xrightarrow{\Gamma \rightarrow 0} \frac{1}{4\pi} \sum_{i=1}^N \delta(\omega - \tilde{\omega}_i) |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2$$

$$\text{où } \tilde{\omega}_i = \frac{\omega_p}{\sqrt{2}} \sqrt{1 + \lambda_i}$$

→ Expression de la EMLDOS non dissipative identique à celle obtenue en photonique

EMLDOS en terme des modes propres géométriques

Cas particulier du modèle de Drude dissipatif

Pour une particule plongée dans l'air et décrite par un modèle de Drude dissipatif

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)}$$

$$\rho^{\text{SP}}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi^2} \sum_{i=1}^N \frac{\Gamma \tilde{\omega}_i^2}{\Gamma^2 \omega^2 + (\omega^2 - \tilde{\omega}_i^2)^2} |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2 \xrightarrow{\Gamma \rightarrow 0} \frac{1}{4\pi} \sum_{i=1}^N \delta(\omega - \tilde{\omega}_i) |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2$$

$$\text{où } \tilde{\omega}_i = \frac{\omega_p}{\sqrt{2}} \sqrt{1 + \lambda_i}$$

→ Expression de la EMLDOS non dissipative identique à celle obtenue en photonique

→ Première décomposition modale universelle de la EMLDOS pour un système plasmonique écrite en terme des modes propres géométriques

EMLDOS en terme des modes propres géométriques

Cas particulier du modèle de Drude dissipatif

Pour une particule plongée dans l'air et décrite par un modèle de Drude dissipatif

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)}$$

$$\rho^{\text{SP}}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi^2} \sum_{i=1}^N \frac{\Gamma \tilde{\omega}_i^2}{\Gamma^2 \omega^2 + (\omega^2 - \tilde{\omega}_i^2)^2} |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2 \xrightarrow{\Gamma \rightarrow 0} \frac{1}{4\pi} \sum_{i=1}^N \delta(\omega - \tilde{\omega}_i) |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2$$

$$\text{où } \tilde{\omega}_i = \frac{\omega_p}{\sqrt{2}} \sqrt{1 + \lambda_i}$$

→ Expression de la EMLDOS non dissipative identique à celle obtenue en photonique

→ Première décomposition modale universelle de la EMLDOS pour un système plasmonique écrite en terme des modes propres géométriques

→ Fait nouveau : $\rho^{\text{beg}} = -N$ → états begrenzung ont été puisés dans une réserve d'états disponibles et leur nombre est égal à ceux des modes propres géométriques

Quantités mesurées en EELS et en SNOM ?

- Peut-on préciser la quantité qui est cartographiée en EELS ?

Quantités mesurées en EELS et en SNOM ?

- Peut-on préciser la quantité qui est cartographiée en EELS ?
→ Expression de l'EELS en terme des modes propres géométriques

Quantités mesurées en EELS et en SNOM ?

- Peut-on préciser la quantité qui est cartographiée en EELS ?
→ Expression de l'EELS en terme des modes propres géométriques
- Peut-on préciser la quantité qui est cartographiée en SNOM ?

Quantités mesurées en EELS et en SNOM ?

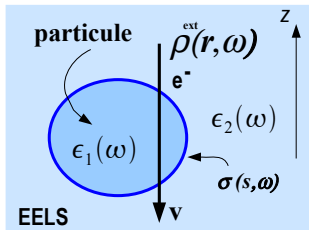
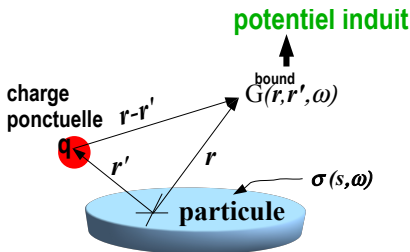
- Peut-on préciser la quantité qui est cartographiée en EELS ?
→ Expression de l'EELS en terme des modes propres géométriques
- Peut-on préciser la quantité qui est cartographiée en SNOM ?
→ Expression du SNOM en terme des modes propres géométriques

EELS : une décomposition modale

Probabilité de perte d'énergie des électrons obtenue à partir de la fonction de Green scalaire pour le potentiel (N. Zabala *et al*, 1993)

$$\Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\mathbf{r}' \int_{-\infty}^{\infty} d\mathbf{r} \Im [\rho^{\text{ext}}(\mathbf{r}, \omega) * G^{\text{bound}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \rho^{\text{ext}}(\mathbf{r}', \omega)],$$

où $\mathbf{r} = (\mathbf{R}, z)$ avec $\mathbf{R} = (x, y)$ et $\rho^{\text{ext}}(\mathbf{r}, \omega)$: densité de charges de l'électron incident

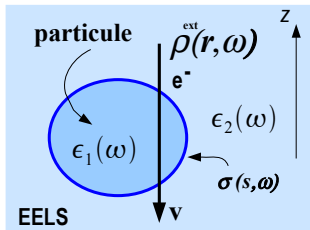
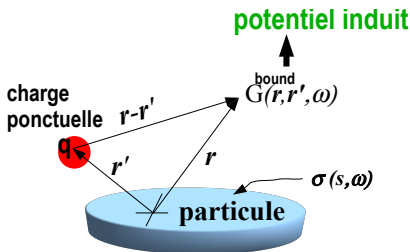


EELS : une décomposition modale

Probabilité de perte d'énergie des électrons obtenue à partir de la fonction de Green scalaire pour le potentiel (N. Zabala *et al*, 1993)

$$\Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\mathbf{r}' \int_{-\infty}^{\infty} d\mathbf{r} \Im [\rho^{\text{ext}}(\mathbf{r}, \omega) * G^{\text{bound}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \rho^{\text{ext}}(\mathbf{r}', \omega)],$$

où $\mathbf{r} = (\mathbf{R}, z)$ avec $\mathbf{R} = (x, y)$ et $\rho^{\text{ext}}(\mathbf{r}, \omega)$: densité de charges de l'électron incident



→ On exprime $G^{\text{bound}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ en terme des $\sigma^i(\mathbf{s})$

EELS : une décomposition modale

$$\left\{ \begin{array}{l} \Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{1}{\pi v^2} \sum_i \Im[-g_i(\omega)] |\phi^{\text{bound},i}(\mathbf{R}_0, q)|^2 \quad q = \omega/v \quad (6a) \\ \Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{4}{\pi v^2} \sum_i \Im[-g_i(\omega)] \left| \oint d\mathbf{s} \sigma^i(\mathbf{s}) e^{-i\omega/vs\|\|} K_0\left(\frac{\omega|\mathbf{R}_0 - \mathbf{s}^\perp|}{v}\right) \right|^2 \quad (6b) \\ \Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{1}{\pi\omega^2} \sum_i \Im[-g_i(\omega)] |E_z^{\text{bound},i}(\mathbf{R}_0, q)|^2 \quad (6c) \end{array} \right.$$

$$\text{où } g_i(\omega) = \frac{2}{\epsilon_1(\omega)(1 + \lambda_i) + \epsilon_2(\omega)(1 - \lambda_i)},$$

$$\phi^{\text{bound},i}(\mathbf{r}) = \oint d\mathbf{s} \frac{\sigma^i(\mathbf{s})}{|\mathbf{r} - \mathbf{s}|} \quad \text{et } \phi^{\text{bound},i}(\mathbf{R}_0, q) \text{ est sa TF en } z$$

EELS : une décomposition modale

$$\left\{ \begin{array}{l} \Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{1}{\pi v^2} \sum_i \Im[-g_i(\omega)] |\phi^{\text{bound},i}(\mathbf{R}_0, q)|^2 \quad q = \omega/v \quad (6a) \\ \Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{4}{\pi v^2} \sum_i \Im[-g_i(\omega)] \left| \oint d\mathbf{s} \sigma^i(\mathbf{s}) e^{-i\omega/vs} K_0\left(\frac{\omega|\mathbf{R}_0 - \mathbf{s}^\perp|}{v}\right) \right|^2 \quad (6b) \\ \Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) = \frac{1}{\pi \omega^2} \sum_i \Im[-g_i(\omega)] |E_z^{\text{bound},i}(\mathbf{R}_0, q)|^2 \quad (6c) \end{array} \right.$$

$$\text{où } g_i(\omega) = \frac{2}{\epsilon_1(\omega)(1 + \lambda_i) + \epsilon_2(\omega)(1 - \lambda_i)},$$

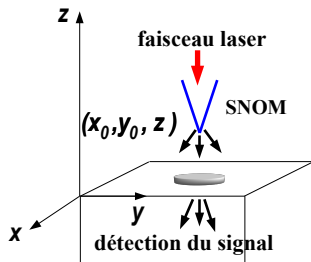
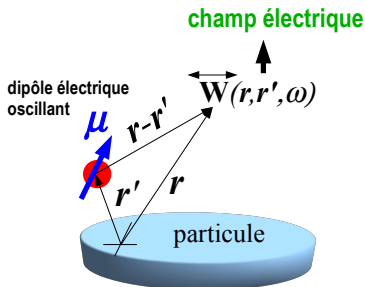
$$\phi^{\text{bound},i}(\mathbf{r}) = \oint d\mathbf{s} \frac{\sigma^i(\mathbf{s})}{|\mathbf{r} - \mathbf{s}|} \quad \text{et } \phi^{\text{bound},i}(\mathbf{R}_0, q) \text{ est sa TF en } z$$

⇒ Trois expressions différentes de l'EELS écrites en terme des modes propres géométriques

SNOM : une décomposition modale

Signal SNOM obtenu à partir de la dyade de Green pour le champ électrique (dipôle-sonde dans l'air et orienté suivant z en (x_0, y_0, z))

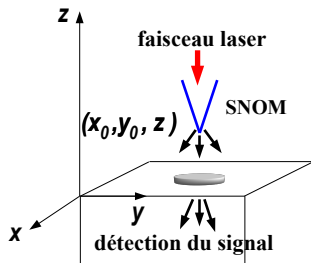
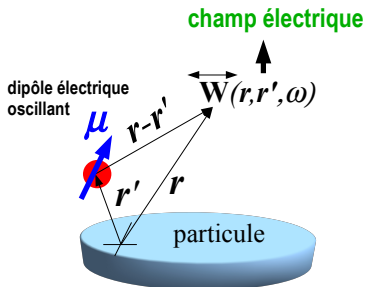
$$S^{\text{snom}}(\mathbf{r}, \omega) = -2\pi\omega^3 p_0^2 \Im \left[\overleftrightarrow{\mathbf{W}}_{zz}^{\text{bound}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega) \right]$$



SNOM : une décomposition modale

Signal SNOM obtenu à partir de la dyade de Green pour le champ électrique (dipôle-sonde dans l'air et orienté suivant z en (x_0, y_0, z))

$$S^{\text{snom}}(\mathbf{r}, \omega) = -2\pi\omega^3 p_0^2 \Im \left[\overleftrightarrow{\mathbf{W}}_{zz}^{\text{bound}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega) \right]$$



→ On exprime $\overleftrightarrow{\mathbf{W}}_{zz}^{\text{bound}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega)$ en terme des $\sigma^i(\mathbf{s})$

SNOM : une décomposition modale

SNOM en terme de champ électrique

$$S^{\text{snom}}(\mathbf{R}_0, z, \omega) = \frac{\omega}{2} p_0^2 \sum_i \Im [-g_i(\omega)] |E_z^{\text{bound},i}(\mathbf{R}_0, z)|^2 \quad (7)$$

\Rightarrow SNOM $\propto |E_z^{\text{bound},i}(\mathbf{R}_0, z)|^2$ et EELS $\propto |E_z^{\text{bound},i}(\mathbf{R}_0, q)|^2$, $q = \omega/v$

\Rightarrow Expression similaire à celle de la photonique et jamais exprimée avant en plasmonique en terme des modes propres géométriques

SNOM en terme de densité de charges

$$S^{\text{snom}}(\mathbf{R}_0, z, \omega) = \frac{\omega}{2} p_0^2 \sum_i \Im [-g_i(\omega)] \left| \oint d\mathbf{s} \frac{\sigma^i(\mathbf{s})(z - s^{\parallel})}{[|\mathbf{R}_0 - \mathbf{s}^{\perp}|^2 + (z - s^{\parallel})^2]^{3/2}} \right|^2 \quad (8)$$

avec $\mathbf{R}_0 = (x_0, y_0)$ et $\mathbf{s} = (\mathbf{s}^{\perp}, s^{\parallel})$

Quantités mesurées en EELS et en SNOM ?

⇒ Que mesurent l'EELS et le SNOM : une densité de charges, un potentiel ou un champ électrique ?

$$\left\{ \begin{array}{l} \Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) \propto \sum_i \Im[-g_i(\omega)] \left| \oint d\mathbf{s} \sigma^i(\mathbf{s}) K_0 \left(\frac{\omega |\mathbf{R}_0 - \mathbf{s}^\perp|}{v} \right) \right|^2 \quad (9a) \\ S^{\text{snom}}(\mathbf{R}_0, z, \omega) \propto \sum_i \Im[-g_i(\omega)] \left| \oint d\mathbf{s} \frac{\sigma^i(\mathbf{s})(z - s_{\parallel})}{[|\mathbf{R}_0 - \mathbf{s}^\perp|^2 + (z - s_{\parallel})^2]^{3/2}} \right|^2 \quad (9b) \end{array} \right.$$

→ Signal mesuré en EELS et en SNOM est une "image" de $\sigma^i(\mathbf{s})$ convoluée par un noyau différent pour l'EELS et le SNOM (interprétation de la délocalisation inélastique)

→ Résonances au même endroit en EELS et en SNOM données par les maxima de $\Im[-g_i(\omega)]$

→ Interférences non triviales entre différentes parties de $\sigma^i(\mathbf{s}) \Rightarrow$ déplacement des maxima dans les cartes EELS (SNOM) filtrées en énergie / maxima de $\sigma^i(\mathbf{s})$ (cf SRR)

Quantités mesurées en EELS et en SNOM ?

⇒ Que mesurent l'EELS et le SNOM : une densité de charges, un potentiel ou un champ électrique ?

$$\left\{ \begin{array}{l} \Gamma^{\text{eels}}(\mathbf{R}_0, \omega) \propto \sum_i \Im[-g_i(\omega)] \left| \oint d\mathbf{s} \sigma^i(\mathbf{s}) K_0 \left(\frac{\omega |\mathbf{R}_0 - \mathbf{s}^\perp|}{v} \right) \right|^2 \\ S^{\text{snom}}(\mathbf{R}_0, z, \omega) \propto \sum_i \Im[-g_i(\omega)] \left| \oint d\mathbf{s} \frac{\sigma^i(\mathbf{s})(z - s_{\parallel})}{[|\mathbf{R}_0 - \mathbf{s}^\perp|^2 + (z - s_{\parallel})^2]^{3/2}} \right|^2 \end{array} \right. \quad (9a)$$

(9b)

→ Signal mesuré en EELS et en SNOM est une "image" de $\sigma^i(\mathbf{s})$ convoluée par un noyau différent pour l'EELS et le SNOM (interprétation de la délocalisation inélastique)

→ Résonances au même endroit en EELS et en SNOM données par les maxima de $\Im[-g_i(\omega)]$

→ Interférences non triviales entre différentes parties de $\sigma^i(\mathbf{s}) \Rightarrow$ déplacement des maxima dans les cartes EELS (SNOM) filtrées en énergie / maxima de $\sigma^i(\mathbf{s})$ (cf SRR)

→ **Limitation à comparer l'EELS directement à la densité de charges**

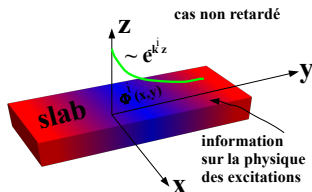
Quantités mesurées en EELS et en SNOM

- SNOM $\sim |E_z^i(x, y, z)|^2$ (espace réel) \rightarrow bonne mesure du champ électrique
- EELS $\sim |E_z^i(x, y, q)|^2 \sim |\phi^i(x, y, q)|^2$ (espace des moments / z)

Cependant, (cf J. G de Abajo, 2008 puis U. Hohenester, 2009) :

$$\text{EELS} \sim |E_z^i(x, y, z_0)|^2 \sim |\phi^i(x, y, z_0)|^2$$

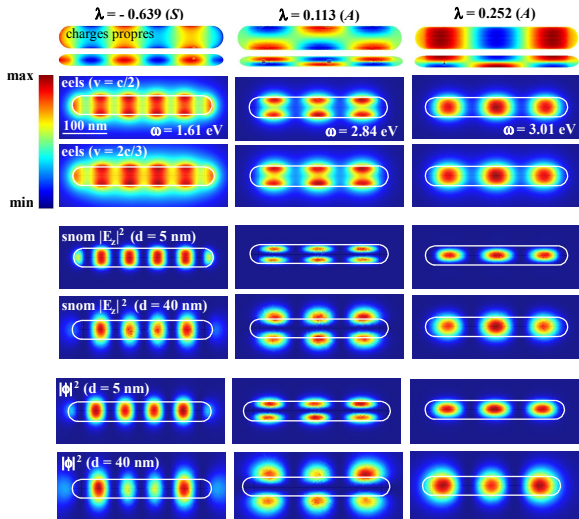
\rightarrow Explication à l'aide de la décomposition modale pour un slab



- ϕ^i est exponentiellement décroissante suivant z : $\phi^i(x, y, z) \sim \Phi^i(x, y)e^{-k^i z}$

\Rightarrow Pour des particules plates, EELS (ou SNOM) filtrées à une énergie propre donnée sont une bonne mesure de $|\phi^i|^2$ ou de $|E_z^i|^2$ dans l'espace réel ou dans l'espace des moments / z

Illustration dans le cas d'un slab



Discussion sur la cohérence

Perte de cohérence spatiale des modes propres géométriques

$$2\pi\lambda_i\sigma^i(\mathbf{s}) = \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}')\sigma^i(\mathbf{s}')$$

→ λ_i et $\sigma^i(\mathbf{s})$ ne dépendent que de la forme du matériau : indépendants du type d'excitations et de la nature des milieux

→ **Contradiction avec les expériences dont les résultats dépendent de la nature du milieu étudié et pas seulement de sa géométrie ?**

$$\rho^{\text{EM}}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi^2\omega} \sum_i \underbrace{\Im[-g_i(\omega)]}_{\text{poinds du mode } i} |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2$$

Discussion sur la cohérence

Perte de cohérence spatiale des modes propres géométriques

$$2\pi\lambda_i\sigma^i(\mathbf{s}) = \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}')\sigma^i(\mathbf{s}')$$

→ λ_i et $\sigma^i(\mathbf{s})$ ne dépendent que de la forme du matériau : indépendants du type d'excitations et de la nature des milieux

→ **Contradiction avec les expériences dont les résultats dépendent de la nature du milieu étudié et pas seulement de sa géométrie ?**

$$\rho^{\text{EM}}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi^2\omega} \sum_i \underbrace{\Im[-g_i(\omega)]}_{\text{poinds du mode } i} |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2$$

- Pour un matériau donné et à ω donnée, si le poids du mode i domine sur les poids des autres modes ($i-1, i+1, \dots$) ⇒ mode i clairement identifié dans la EMLDOS filtrée à ω

Discussion sur la cohérence

Perte de cohérence spatiale des modes propres géométriques

$$2\pi\lambda_i\sigma^i(\mathbf{s}) = \oint d\mathbf{s}' F(\mathbf{s}, \mathbf{s}')\sigma^i(\mathbf{s}')$$

→ λ_i et $\sigma^i(\mathbf{s})$ ne dépendent que de la forme du matériau : indépendants du type d'excitations et de la nature des milieux

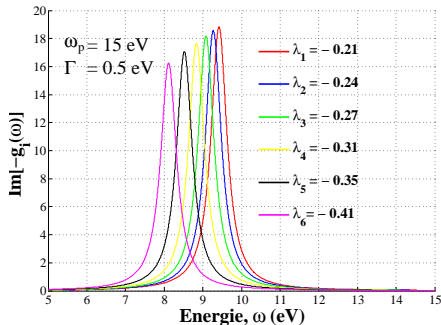
→ **Contradiction avec les expériences dont les résultats dépendent de la nature du milieu étudié et pas seulement de sa géométrie ?**

$$\rho^{\text{EM}}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi^2\omega} \sum_i \underbrace{\Im[-g_i(\omega)]}_{\text{poids du mode } i} |\mathbf{E}^{\text{bound},i}(\mathbf{r})|^2$$

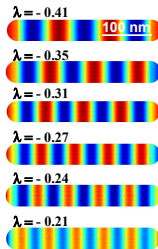
- Pour un matériau donné et à ω donnée, si le poids du mode i domine sur les poids des autres modes ($i-1, i+1, \dots$) ⇒ mode i clairement identifié dans la EMLDOS filtrée à ω
- Si deux ou plusieurs modes se recouvrent, les distributions spatiales s'additionneront de façon incohérente → brouillage du signal

Exemple : matériau sans transition interbande

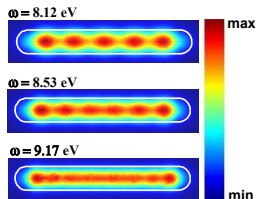
$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)}$$



charges propres



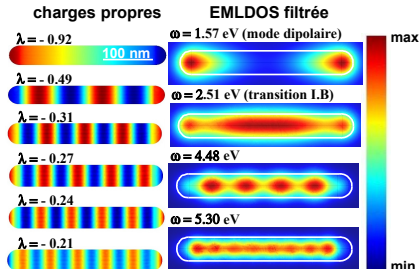
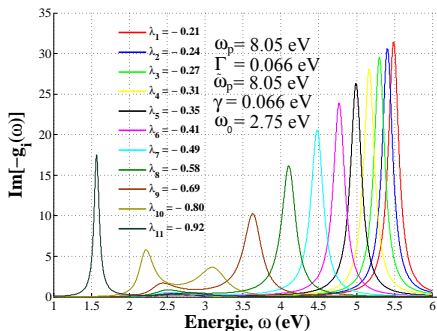
EMLDOS filtrée



- ⇒ Brouillage de la EMLDOS vers les hautes énergies, là où la densité de mode diverge (même pour un matériau non dissipatif)
- ⇒ Dissipation dans le matériau (élargissement de $\Im[-g_i(\omega)]$) induit une perte de cohérence spatiale
- ⇒ Relation de dispersion $\epsilon(\omega)$ déterminant la forme de $\Im[-g_i(\omega)] \rightarrow$ différence entre différents types de matériaux

Exemple : matériau avec une transition interbande

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)} + \underbrace{\frac{\tilde{\omega}_p^2}{(\omega_0^2 - \omega^2) - i\gamma\omega}}_{\epsilon_{\text{interbande}}(\omega) - 1}$$



⇒ Brouillage de la EMLDOS vers les hautes énergies et à l'énergie du pic dû à la transition interbande

Densité locale d'états géométriques (GLDOS)

→ La EMLDOS "standard" dépend de l'énergie et de la nature des milieux mis en jeu

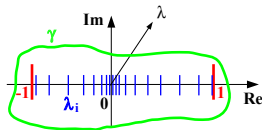
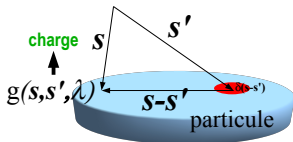
→ Peut t-on définir une LDOS indépendante de la nature des milieux ?

→ Construire une LDOS pour les modes propres géométriques à partir de la fonction de Green géométrique de l'équation BEM

$$\rho^{\text{GEO}}(\mathbf{s}) = \Im \left[\oint_{\gamma} d\lambda g(\mathbf{s}, \mathbf{s}, \lambda) \right] \quad \text{où} \quad g(\mathbf{s}, \mathbf{s}', \lambda) = \frac{1}{2\pi} \sum_i \frac{\sigma^i(\mathbf{s})\tau^i(\mathbf{s}')}{\lambda - \lambda_i}$$

avec

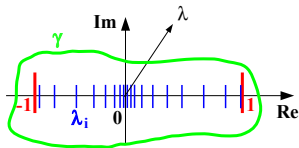
$$\oint d\mathbf{s} \sigma^i(\mathbf{s})\tau^j(\mathbf{s}) = \delta_{ij} \quad \text{et} \quad \oint d\mathbf{s} \rho^{\text{GEO}}(\mathbf{s}) = N$$



→ intégration sur $\omega \in \mathcal{R}$ remplacée par intégration dans le plan complexe sous-tendu par $\lambda \in \mathcal{C}$

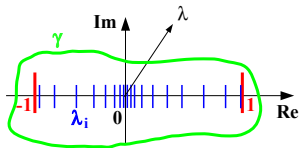
Densité locale d'états géométriques (GLDOS)

$$\rho^{\text{GEO}}(\mathbf{s}) = \Im \left[\oint_{\gamma} d\lambda g(\mathbf{s}, \mathbf{s}, \lambda) \right] \quad \text{où} \quad g(\mathbf{s}, \mathbf{s}', \lambda) = \frac{1}{2\pi} \sum_i \frac{\sigma^i(\mathbf{s})\tau^i(\mathbf{s}')}{\lambda - \lambda_i}$$



Densité locale d'états géométriques (GLDOS)

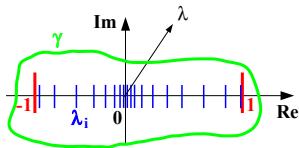
$$\rho^{\text{GEO}}(\mathbf{s}) = \Im \left[\oint_{\gamma} d\lambda g(\mathbf{s}, \mathbf{s}, \lambda) \right] \quad \text{où} \quad g(\mathbf{s}, \mathbf{s}', \lambda) = \frac{1}{2\pi} \sum_i \frac{\sigma^i(\mathbf{s})\tau^i(\mathbf{s}')}{\lambda - \lambda_i}$$



→ Quantité géométrique, purement surfacique et intrinsèquement liée aux excitations de surface de la particule

Densité locale d'états géométriques (GLDOS)

$$\rho^{\text{GEO}}(\mathbf{s}) = \Im \left[\oint_{\gamma} d\lambda g(\mathbf{s}, \mathbf{s}, \lambda) \right] \quad \text{où} \quad g(\mathbf{s}, \mathbf{s}', \lambda) = \frac{1}{2\pi} \sum_i \frac{\sigma^i(\mathbf{s})\tau^i(\mathbf{s}')}{\lambda - \lambda_i}$$

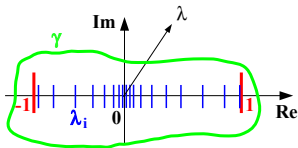


→ Quantité géométrique, purement surfacique et intrinsèquement liée aux excitations de surface de la particule

→ Interprétation en terme de nombre de modes propres géométriques accessibles par unité de surface

Densité locale d'états géométriques (GLDOS)

$$\rho^{\text{GEO}}(\mathbf{s}) = \Im \left[\oint_{\gamma} d\lambda g(\mathbf{s}, \mathbf{s}, \lambda) \right] \quad \text{où} \quad g(\mathbf{s}, \mathbf{s}', \lambda) = \frac{1}{2\pi} \sum_i \frac{\sigma^i(\mathbf{s})\tau^i(\mathbf{s}')}{\lambda - \lambda_i}$$



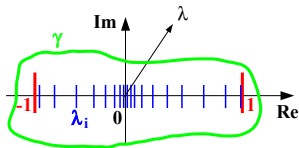
→ Quantité géométrique, purement surfacique et intrinsèquement liée aux excitations de surface de la particule

→ Interprétation en terme de nombre de modes propres géométriques accessibles par unité de surface

→ Utilisation de $\lambda \in \mathcal{C}$ par analogie avec $\omega \in \mathcal{R}$

Densité locale d'états géométriques (GLDOS)

$$\rho^{\text{GEO}}(\mathbf{s}) = \Im \left[\oint_{\gamma} d\lambda g(\mathbf{s}, \mathbf{s}', \lambda) \right] \quad \text{où} \quad g(\mathbf{s}, \mathbf{s}', \lambda) = \frac{1}{2\pi} \sum_i \frac{\sigma^i(\mathbf{s})\tau^i(\mathbf{s}')}{\lambda - \lambda_i}$$



- Quantité géométrique, purement surfacique et intrinsèquement liée aux excitations de surface de la particule
- Interprétation en terme de nombre de modes propres géométriques accessibles par unité de surface
- Utilisation de $\lambda \in \mathcal{C}$ par analogie avec $\omega \in \mathcal{R}$
- GLDOS définie dans le plan complexe sous-tendu par λ

Conclusions générales et perspectives

Partie expérimentale : imagerie spectrale de SRRs individuels

- Densités de charges (SP) non influencées par la courbure du SRR (identiques à celles d'une nanoantenne)
- Par rapport à une nanoantenne, le couplage entre les pattes du SRR introduit un espacement en énergie \neq
- Espacement en énergie des modes A et S d'une nanoantenne maintenu dans un SRR

Partie théorique : EMLDOS pour des systèmes plasmoniques

- Introduction des modes propres géométriques
- Expression universelle de la EMLDOS pour des systèmes plasmoniques
- Interprétation de la délocalisation inélastique en terme d'une convolution de la densité de charges (EELS et SNOM)
- Introduction d'une LDOS pour les modes propres géométriques définie dans le plan complexe

Conclusions générales et perspectives

Perspectives à la partie théorique

- Extension du développement théorique précédent dans le cas retardé
- Application aux milieux aléatoires (thèse de A. Losquin)
- Quantification des SPs dans un milieu dissipatif

Conclusions générales et perspectives

Perspectives à la partie théorique

- Extension du développement théorique précédent dans le cas retardé
- Application aux milieux aléatoires (thèse de A. Losquin)
- Quantification des SPs dans un milieu dissipatif

MERCI