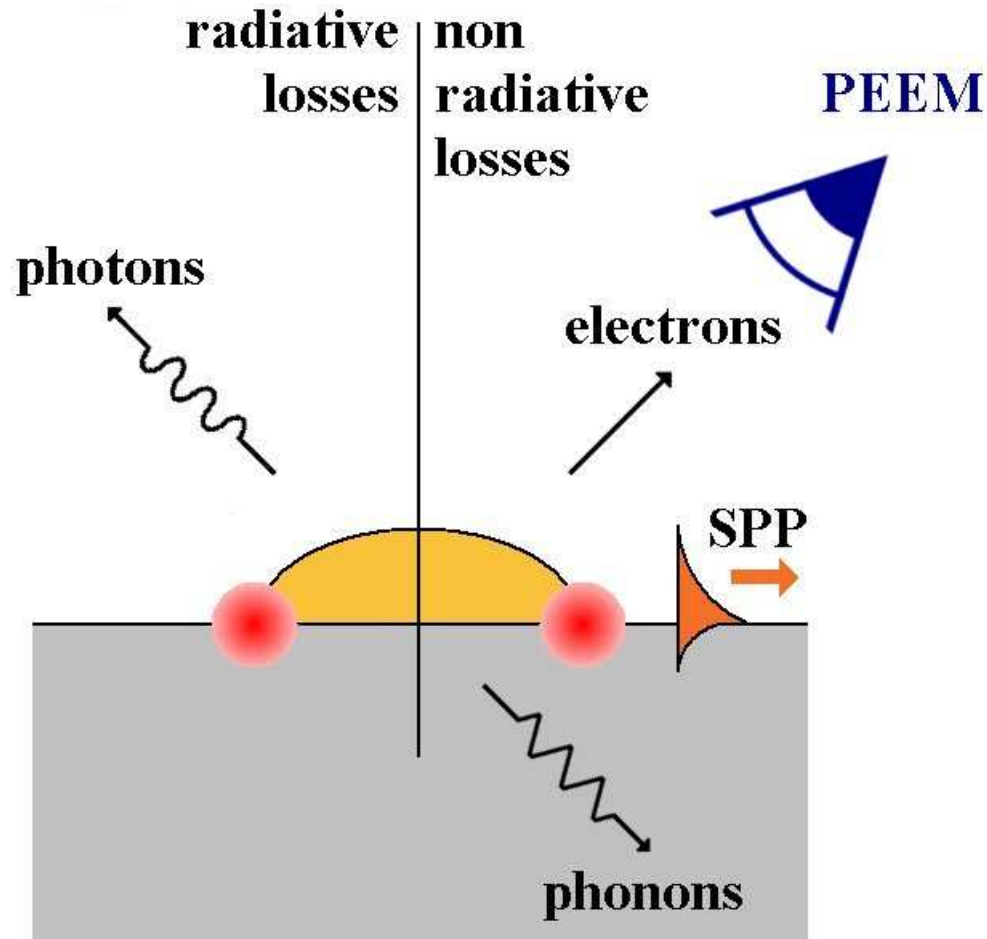


# Microscopie de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique



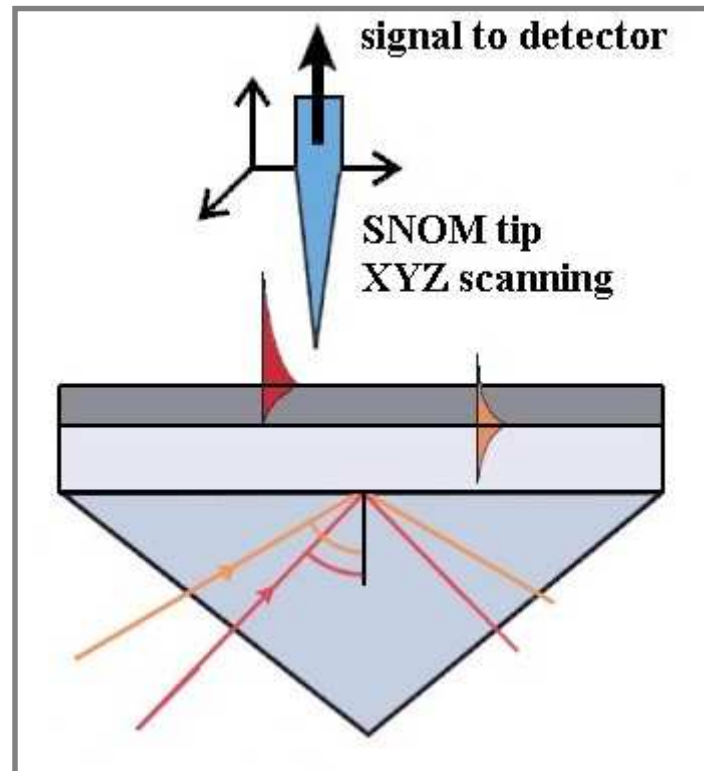
Ludovic Douillard, Fabrice Charra

CEA Saclay Bât. 466  
F-91191 Gif sur Yvette, France

DSM / IRAMIS / SPCSI  
Groupe de NanoPhotonique

# Cartographie du champ proche à l'échelle du nanomètre

SNOM - scanning near-field optical microscopy (1984...)



## ➤ Principe

.microscopie à balayage de sonde (SPM)

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

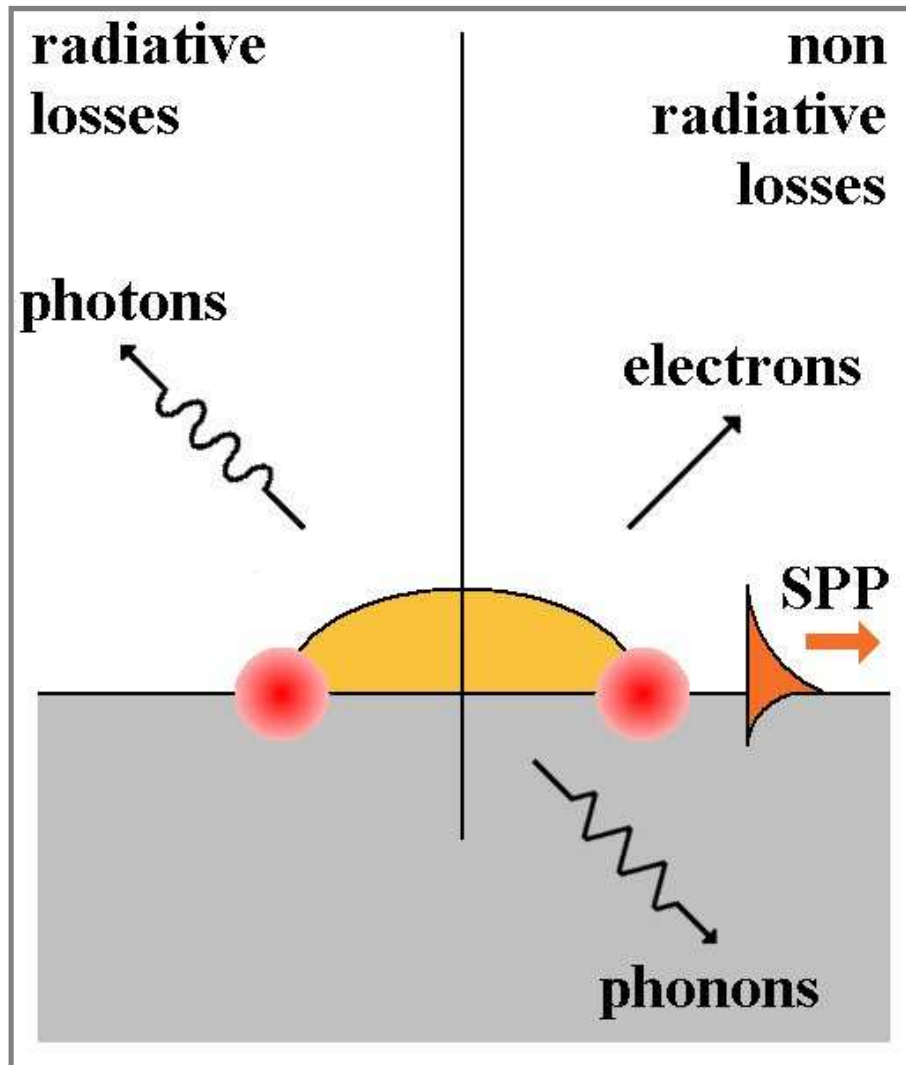
**.résolution latérale 50 - 100 nm**

.nombreuses variantes

- 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

## Canaux de désexcitation d'un plasmon de surface



➤ Canaux de désexcitation d'un plasmon de surface

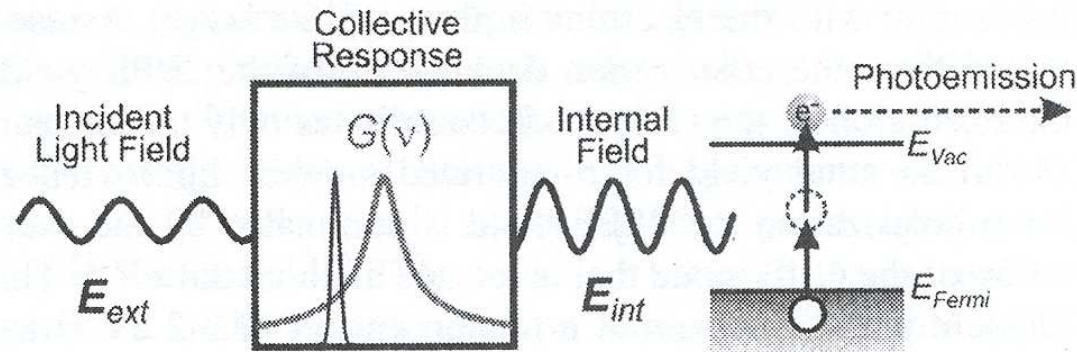
.pertes radiatives (photons),

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

...

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

# Microscopie de photoémission d'électrons, un outil pour la plasmonique – Principe physique



(i) Réponse collective des e- (plasmon)

(ii) Photoémission non linéaire

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

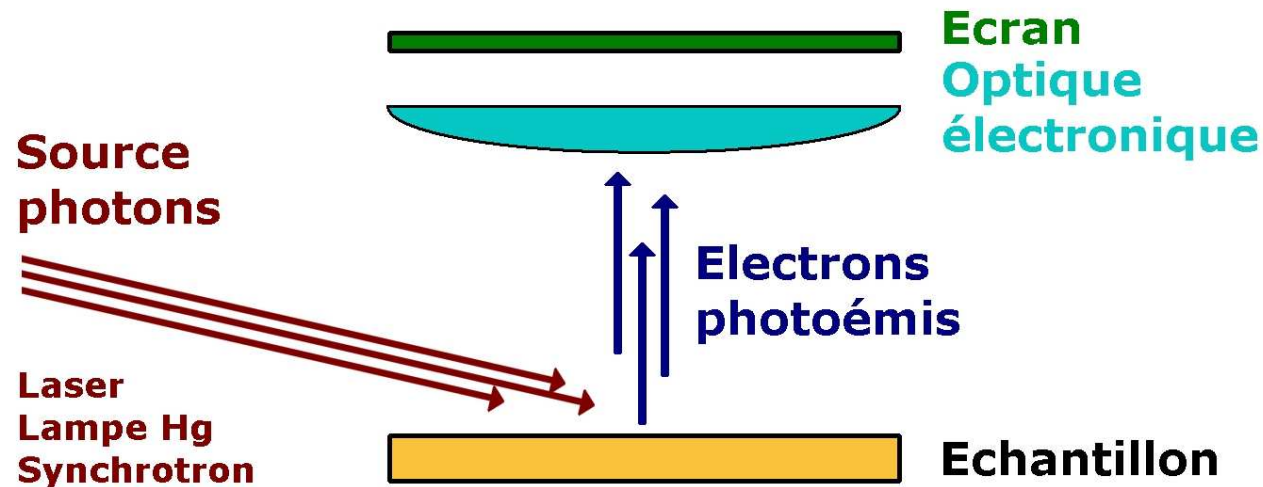
$$n \cdot h\nu > \Phi_{Métal}$$

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

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

# PEEM – photoemission electron microscopy

## Instrumentation



### ➤ Principe. Cartographie 2D de la distribution des électrons photoémis.

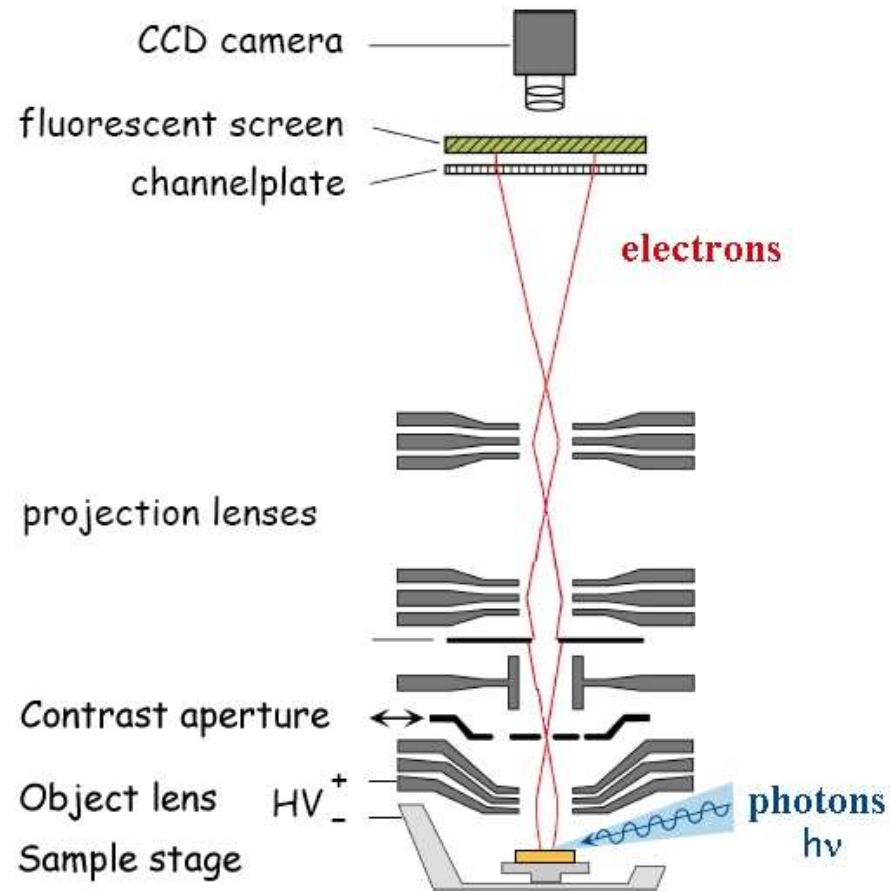
- .optique électronique standard (lentilles magnétiques)
- .microscopie plein champ (pas de balayage de sonde)
- .aucune sonde physique dans l'espace de mesure ( $\neq$  SNOM)**

- .contraste par travail de sortie  $\Phi$  (petits  $h\nu$ ), raies de photoémission (grands  $h\nu$ )
- .résolution latérale (critère  $16\sqrt{\lambda}$ , petits  $h\nu$ ) 25 - 50 nm
- .sensibilité de surface ~ libre parcours moyen inélastique

E. Brüche, Z. Phys. **86** (1933) 448, J. Pohl, Zeitschr. f. techn. Physik **12** (1934) 579

# PEEM – photoemission electron microscopy (1962...)

## Schematics of an electrostatic PEEM



adapted from W. Kuch Freie Universität Berlin

➤ Principe. Cartographie 2D de la distribution des électrons photoémis.

.lentille cathodique (échantillon intégré à la lentille objective)

.fort champ accélérateur 1-10 MV/m

E. Bauer *Rep. Prog. Phys.* **57** (1994) 895

.**résolution latérale** ultime ~ libre parcours moyen inélastique (1 nm), en pratique limitée par **aberrations sphérique, chromatique et diff.**

.résolution latérale (16\84) 25-50 nm

.résolution AC (16\84) < 3 nm

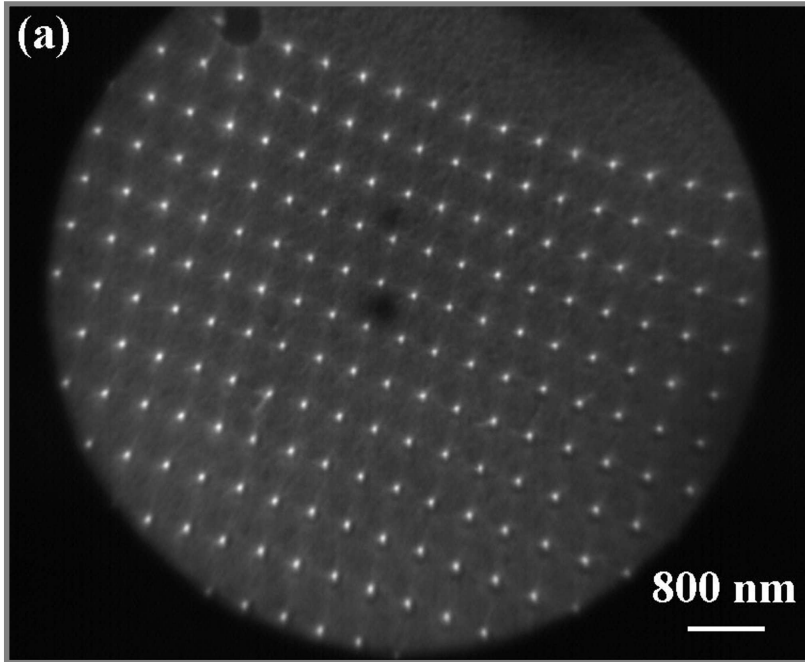
Conditions d'imagerie

.absence de charge

.faible rugosité (~1/10 résol. visée)

# Cartographie du champ proche optique – PEEM

## Assemblages d'objets nanométriques - LSP

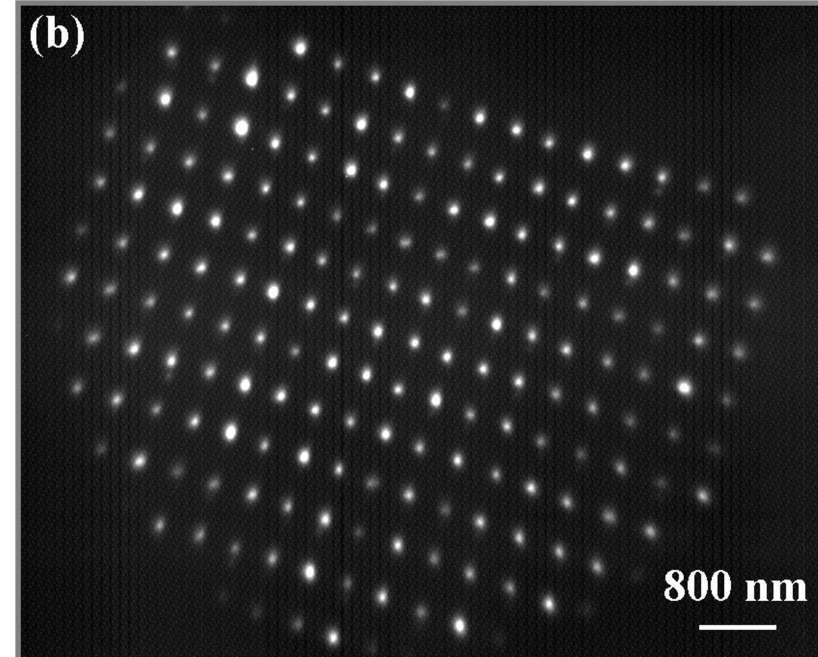


Au/ITO disques  $\varnothing$ 120 nm, pas 400 nm

➤ **Image LEEM (mode topographique)**

Excitation = électrons (pas de LASER),

Signal = électrons rétrodiffusés.



Au/ITO incidence rasante p pol. 150 MW/cm<sup>2</sup>

➤ **Image PEEM sous illumination LASER**

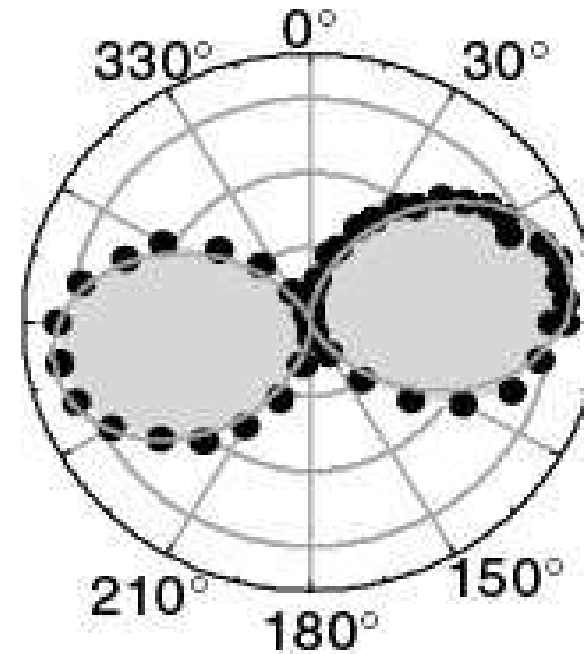
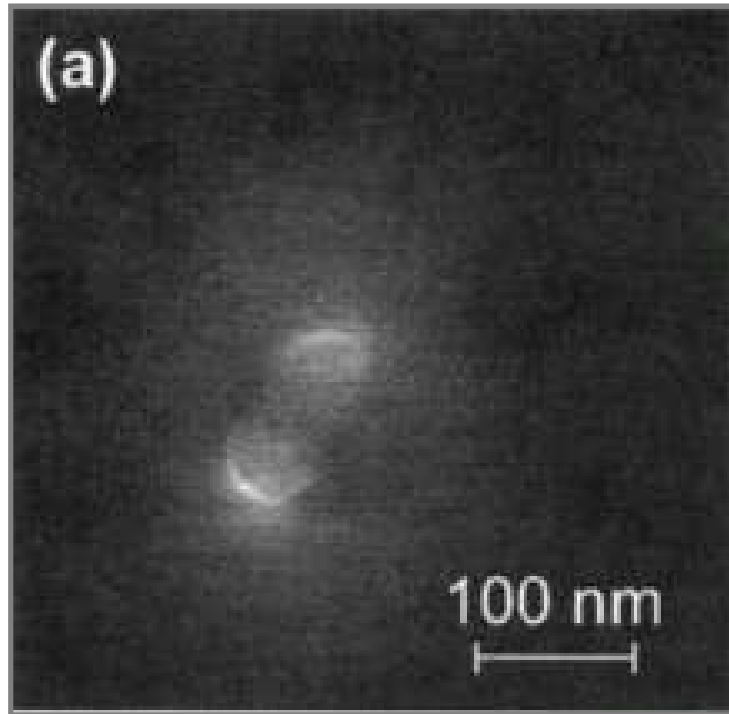
Excitation = 766 nm photons,  
 $h\nu$  (1.62 eV) <  $\Phi_{\text{Au}}$  (4.6 - 5.1 eV),  
Signal = photoelectrons !

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

- **Cartographie du champ proche optique aux échelles nanométriques**
- **Dynamique de plasmons-polaritons (nanomètre, femtoseconde)**
- **Manipulation du champ proche optique (contrôle cohérent)**



## Cartographie du champ proche – Photoluminescence Nanoantenne – Mode dipolaire

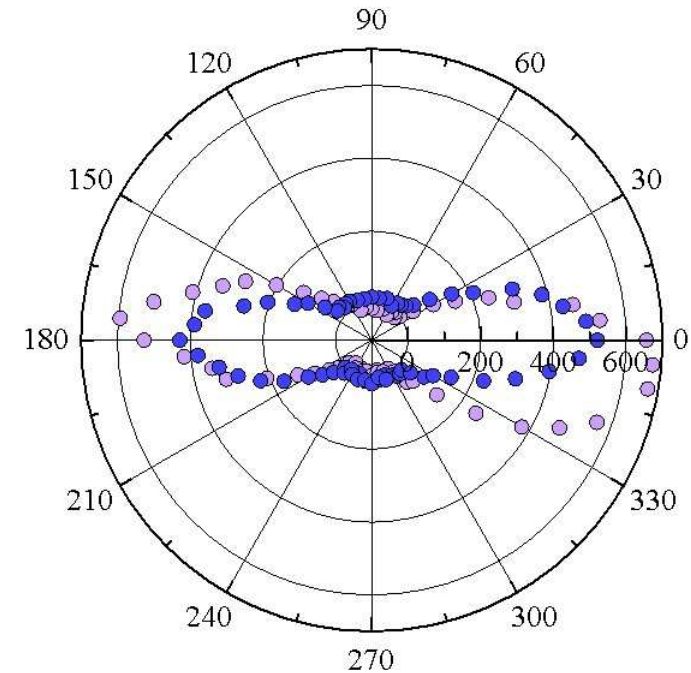
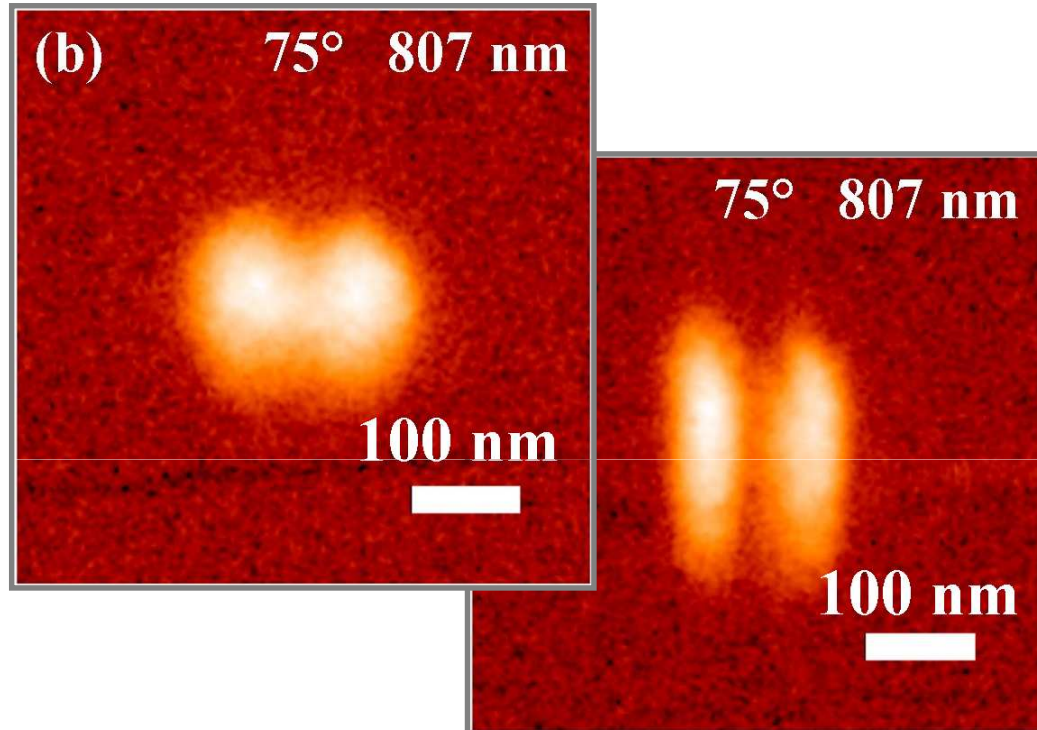


- Microscopie de photoluminescence à balayage  
Bâtonnet = dimère de sphères Au,  $\varnothing$  40 nm.

- Diagramme polaire de la lumière diffusée par un bâtonnet Au monocristallin ( $100 \times 20 \times 20 \text{ nm}^3$ ).
- Mode dipolaire ( $\mu$  champ sombre)

# Cartographie du champ proche optique – PEEM

## Nanoantenne – Mode dipolaire



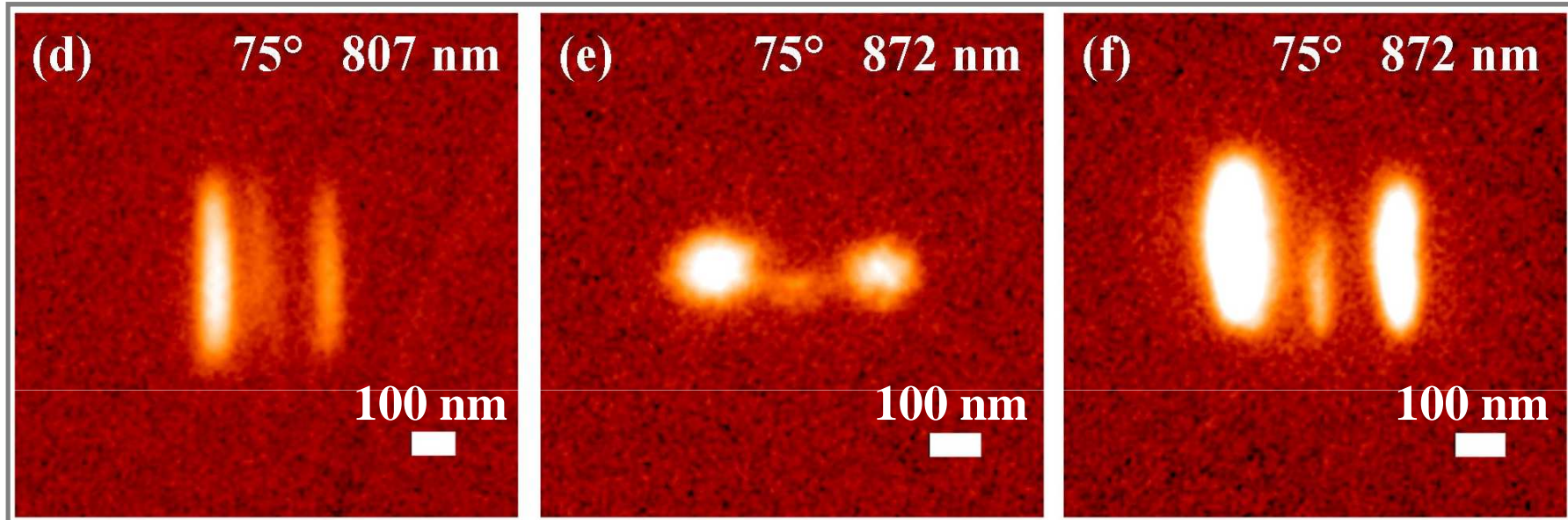
• rod 100 nm • rod 125 nm

- PEEM. Bâtonnet Au polycristallin ( $100 \times 35 \times 30 \text{ nm}^3$ ), résolutions latérales 40 & 21 nm  
longueur d'onde photon  $\lambda_{hv} = 807 \text{ nm}$ ,  
champ exciteur // axe bâtonnet.

- Diagramme polaire du signal de photoémission
- Mode dipolaire  
 $m = 1 \Leftrightarrow L = \frac{1}{2} * \lambda_{SPP}$

L. Douillard *et al.* *Nano Lett.* **8** (2008) 935

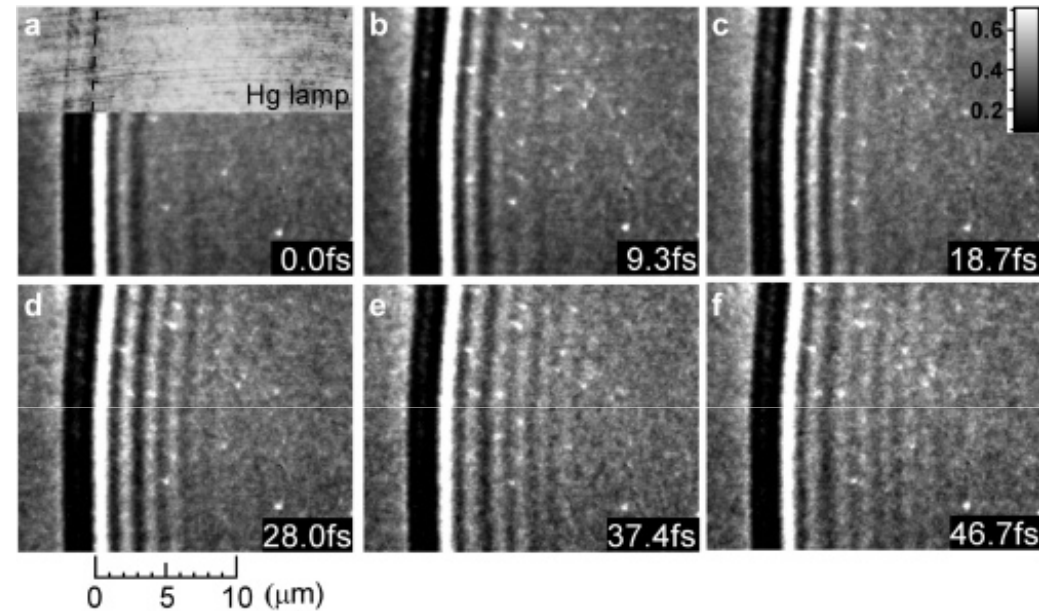
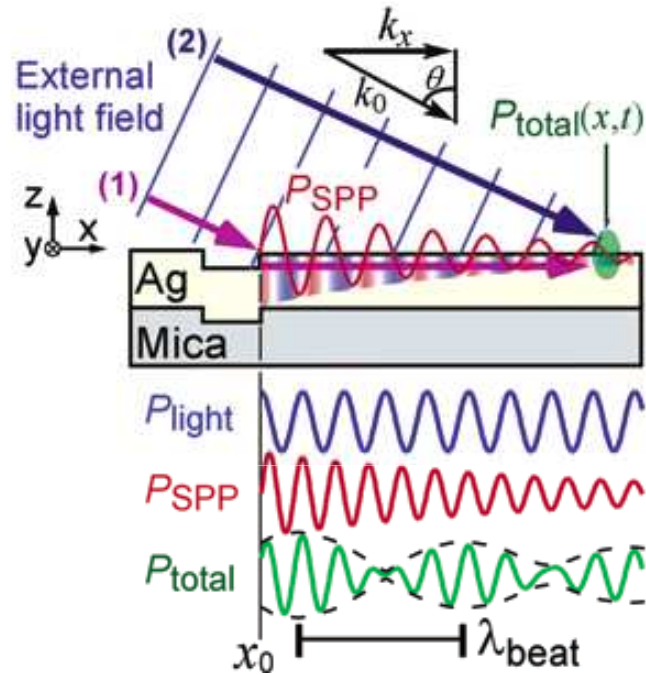
## Cartographie du champ proche optique – PEEM Nanoantenne – Mode quadrupolaire



- PEEM bâtonnet Au polycristallin = résonateur plasmon  
dimensions  $250 \times 35 \times 30 \text{ nm}^3$  (d),  $325 \times 35 \times 30 \text{ nm}^3$  (e,f)  
résolutions latérales 40 & 21 nm  
champ excitateur // axe bâtonnet
- Mode quadrupolaire  $m = 2 \Leftrightarrow L = \lambda_{\text{SPP}}$

# Propagation de plasmons-polaritons – PEEM

## Interface Ag / vide



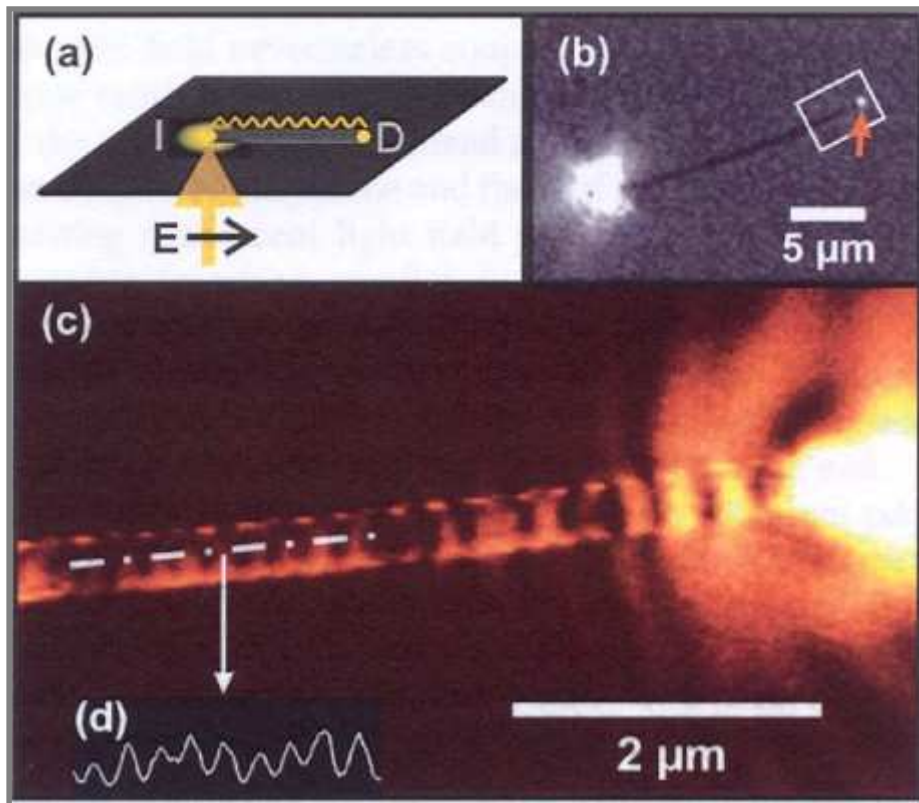
(i) Interface Ag/vide (ii) Excitation 400 nm@100 mW, 10 fs, incidence 65° ⊥, pol. p (iii) PEEM focus GmbH

### ➤ 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  $\approx 1 \text{ fs}$ , spatiale  $\approx 10 \text{ nm}$

## Propagation de plasmons-polaritons – SNOM Nanofils monocristallins



### Légende figures

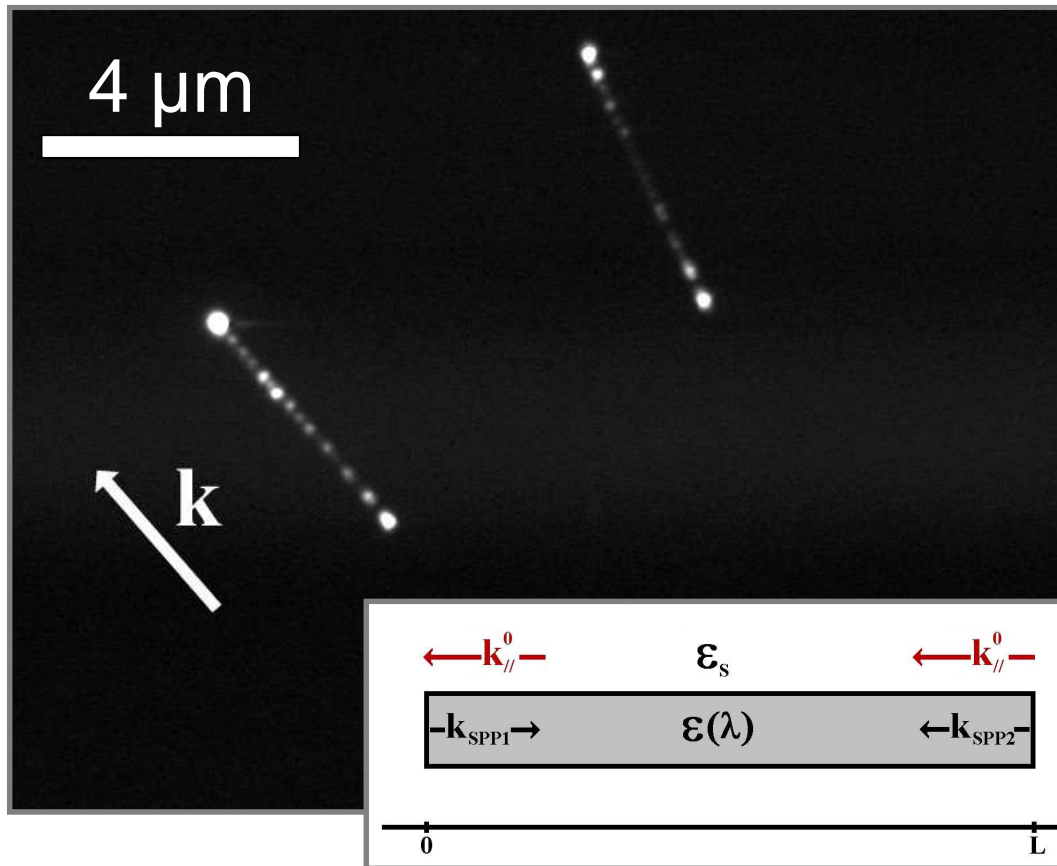
Nanofil Ag monocristallin sous excitation LASER (Long. 18.6 μm, diamètre 120 nm).

- (a) excitation optique,
- (b) image topographique,
- (c) image SNOM zone de sélection (b),
- (d) Profil du signal SNOM suivant l'axe du nanofil

➤ Propagation d'un plasmon polariton le long d'un nanofil Ag

# Propagation de plasmons-polaritons – PEEM

## Nanofils lithographiés



### Légende figure

Nanofils Au polycristallin sous excitation LASER (Long. 4  $\mu\text{m}$ , diamètre 30 nm).

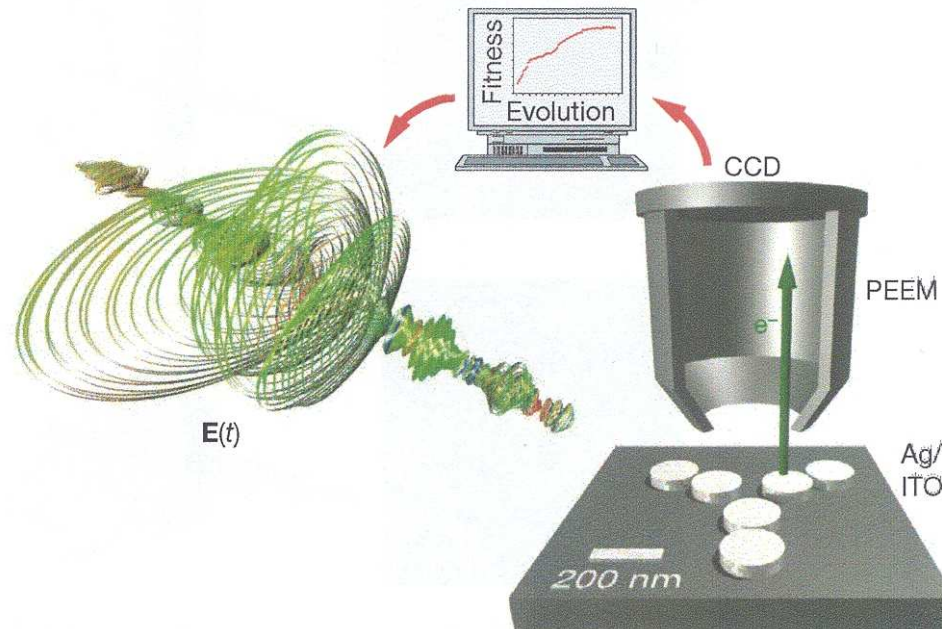
long. onde photon  $\lambda_{\text{hv}} = 800 \text{ nm}$ ,  
 incidence rasante angle  $15^\circ$ ,  
 polarisation p,  
 puissance / S  $\sim 150 \text{ MW/cm}^2$

Imagerie PEEM grand champ  
 basse résolution

➤ **Propagation d'un plasmon polariton le long de nanofils Au.** Long. d'onde plasmon  $\lambda_{\text{SPP}} = 335 \text{ nm}$ , distance d'atténuation  $L_{\text{SPP}} = 3300 \text{ nm}$ .

L. Douillard *et al.* *Nano Lett.* **8** (2008) 935

## Manipulation du champ proche optique – PEEM Objets nanométriques – disques Ag



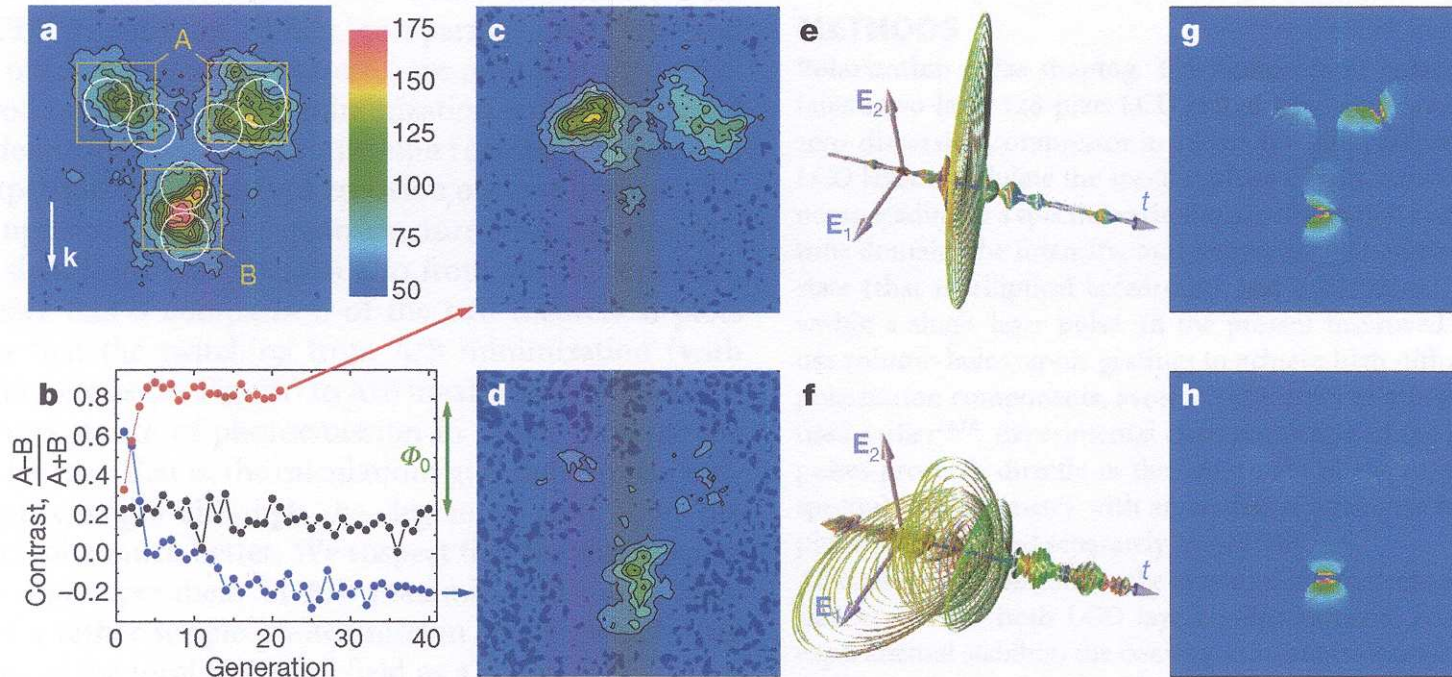
### ➤ Manipulation du champ proche optique aux échelles nanométriques par mise en forme d'impulsions

Mise en forme adaptative d'impulsions picoseconde  $\approx 1$  ps

Cartographie du champ proche optique par microscopie de photoémission à 2 photons, résolution sub longueur d'onde  $\approx 50$  nm

# Manipulation du champ proche optique – PEEM

## Objets nanométriques – disques Ag



(a) Référence. polarisation p, incidence 65°,  $\lambda_{nv} = 790$  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**



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

- **PEEM** = Une alternative aux variantes SNOM pour la plasmonique

Microscopie plein champ  
Haute résolution 20 nm  
Pas de pointe-sonde

Haute tension statique  
Réservoir d'électrons  
Substrat conducteur

- **Un outil pour la *plasmonique***

Cartographie du champ proche optique aux échelles nanométriques d'objets individuels, d'assemblage d'objets,

Dynamique de plasmons-polaritons (nanomètre, femtoseconde)

Manipulation du champ proche optique (contrôle cohérent)

# Cartographie du champ proche optique à l'échelle du nanomètre par microscopie de photoémission

CEA Saclay Bât. 466  
DSM IRAMIS SPCSI Groupe de NanoPhotonique (F. Charra)  
F-91191 Gif sur Yvette, France  
<http://www-iramis.cea.fr/>



## Collaborations:

Laboratoire de Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique LNIO (P. Royer)  
Université de Technologie de Troyes, ICD CNRS-FRE 2848  
F-10010 Troyes, France  
<http://www-lnio.utt.fr/>



Laboratoire Charles Fabry (J.-J. Greffet),  
Institut d'Optique Graduate School (LCFIO)  
F-91127 Palaiseau, France  
<http://www.institutoptique.fr/>



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

## ➤ Cartographie du champ proche optique aux échelles nanométriques

« The spatial distribution of non linear-effects in multi-photon photoemission from metallic adsorbates on Si(111) » O. Schmidt, G. Fecher, Y. Hwu, G. Schönhense *Surf. Sci.* **482** (2001) 687

« Photoemission electron microscopy as a tool for the investigation of optical near fields » M. Cinchetti, A. Gloskovskii, S. Nepjiko, G. Schönhense *Phys. Rev. Lett.* **95** (2005) 047601

« *In Situ* monitoring of surface plasmons in single-crystalline Ag-nanowires » L. Chelaru, F. Meyer zu Heringdorf *Surf. Sci.* **601** (2007) 4541

« Short range plasmon resonators probed by photoemission electron microscopy » L. Douillard, F. Charra, Z. Korczak, R. Bachelot, S. Kostcheev, G. Lerondel, P.-M. Adam, P. Royer *Nanoletters* **8** (2008) 935

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

## Dynamique de plasmons-polaritons (nanomètre, femtoseconde)

« Femtosecond imaging of surface plasmon dynamics in a nanostructured silver film » A. Kubo, K. Onda, H. Petek, Z. Sun, Y. Jung, H. Koo Kim *Nanoletters* **5** (2005) 1123

« Femtosecond microscopy of surface plasmon polariton wave packet evolution at the silver/vacuum interface » A. Kubo, N. Pontius, H. Petek *Nanoletters* **7** (2007) 470

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

## ➤ Manipulation du champ proche optique par mise en forme d'impulsions

« Adaptive subwavelength control of nano-optical fields » M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, F. Javier Garcia de Abajo, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Spindler, F. Steeb *Nature* **446** (2007) 301

« Attosecond nanoplasmonic-field microscope » M. Stockman, M. Kling, U. Kleineberg, F. Krausz *Nature Photonics* **1** (2007) 539