

# Abstract

In the last few decades, plasmonic nanostructures have been studied and used vividly for numerous applications ranging from medicine and diagnostics to efficiency enhancement of solar cells. In line with this, the main focus of this thesis is to investigate the applicability of plasmonic nanostructures and develop new methodologies for improving their capabilities for certain specific physical and biological applications.

Biosensing is one of the areas which has benefited significantly from the plasmonic resonances supported by those nanostructures. Even though significant advances in sensing methods have been made, the detection of small molecules still remains a challenging task. The first part of the thesis investigates the possibility of exploiting coupling between the resonances of plasmonic nanostructures and absorbing molecules for sensing small biologically relevant species. Both the weak and strong coupling regimes between the plasmonic resonances and the absorption bands of molecules are studied.

Another principal application of plasmonic nanostructures lies in the field of medicine and diagnostics. The biocompatibility of plasmonic nanostructures is an important question that must be addressed for applications in this field. Furthermore, approaches which can improve or enhance the bio-compatibility properties of nanostructures are much sought after. It is now well known that the biocompatibility of plasmonic nanoparticles is closely associated with the coating of the molecules around the structure. A potential route for synthesis of plasmonic nanoparticles using human cells is studied in the second part of this thesis. The synthesized nanoparticles are shown to possess a rich protein coating, known as the protein corona. Preliminary experiments for understanding the uptake characteristics of the human cell synthesized nanoparticles are also performed.

The next application that is investigated is the detection of nanoparticles using plasmonic nanostructures, exploiting the coupling between two plasmonic resonances. This technique allows the detection of individual 30 nm particles. The data acquired from this method could, in future, be used to complement information obtained from the traditional nanoparticle analysis techniques.

On a different note, nonlinear optical processes can also be enhanced using the high near fields generated in plasmonic nanostructures. However, the conversion efficiency is strongly dependent on the modal properties of the nanostructures. For this reason, a technique for

## Abstract

---

calculating the eigenmodes of a plasmonic nanoclusters is developed. The modal structure computed using the developed method is then used for analyzing and understanding second harmonic generation from the nanoparticle clusters.

It is well known that the maximum obtainable enhancement of an optical process via the use of plasmonic nanostructure is limited by the amount of energy that can be trapped in its near-field. The final part of this thesis studies and exploits different ways for developing plasmonic nanostructures which absorb all the incident energy at a given wavelength. When a nanostructure is illuminated with two incident beams simultaneously, it is possible to exploit the phenomenon of destructive interference to achieve perfect absorption. This is demonstrated both theoretically and experimentally. A single beam analog is also presented and the corresponding near field enhancement is validated using SERS signals from molecules.

**Keywords:** Optics, plasmon, surface plasmon, localized plasmon, near field thin film, gold nanoparticle, nanostructure, chemical synthesis, strong coupling, anti-crossing, weak coupling, Hemoglobin, Cytochrome *c*, surface enhanced Raman scattering, plasmonic trapping, human cells, biosynthesis, protein corona, peroxide, glutathione, reactive oxygen species, cell membrane, cancer, metastasis, hybridization, extraordinary optical transmission, nanohole arrays, nanoparticle detection, size analysis, eigenmodes, nanoparticle clusters, eigenwavelength, eigenfrequency, field distribution, Green's tensor, second harmonic generation, circular polarization, perfect absorption, coupled plasmons, long range surface plasmon, short range surface plasmon, composite, waveguide, crescent array, critical coupling, anomalous scattering.

# Résumé

Durant la dernière décennie, les nanostructures plasmoniques ont été étudiées et utilisées pour des applications diverses et variées, allant des diagnostics médicaux aux cellules solaires. Cette thèse s'inscrit dans ce cadre, étudie la possibilité d'utiliser les nanostructures plasmoniques à des fins pratiques et discute le développement de nouvelles méthodes pour des applications spécifiques en physique et en biologie.

Le développement de biocapteurs est l'un des domaines qui a le plus profité des résonances de plasmon de surface dans les structures plasmoniques. Bien que des avancées significatives aient été faites, la détection de petites molécules avec cette approche reste une tâche difficile. La première partie de cette thèse se concentre sur la possibilité d'exploiter le couplage entre les résonances de plasmon de surface et des molécules absorbantes pour la détection de petites entités biologiques. Les régimes de couplage fort et faible sont étudiés en détails.

Une autre application importante rencontrée en plasmonique est le diagnostic médical. La compatibilité biologique des nanostructures plasmoniques est une question importante qui doit être posée pour le développement de telles applications. De plus, de nouvelles approches permettant d'augmenter leur biocompatibilité sont nécessaires. Il est bien connu que la biocompatibilité des nanoparticules métalliques dépend de la couche moléculaire les enrobant. Une voie possible pour la synthèse de nanoparticules en utilisant les cellules humaines est proposée et étudiée dans la deuxième partie de cette thèse. Les nanoparticules synthétisées de cette manière possèdent une couche protectrice riche en protéines. Des expériences préliminaires pour comprendre les caractéristiques de ces nanoparticules synthétisées par les cellules humaines ont été réalisées.

L'application étudiée ensuite est la détection de nanoparticules en utilisant des nanostructures plasmoniques et le couplage entre deux modes plasmoniques. Cette technique permet la détection de nanoparticules avec un diamètre de 30 nm. Les données collectées avec cette méthode permettront, dans le futur, d'obtenir des informations complémentaires à celles obtenues par les méthodes conventionnelles d'analyse.

Dans un autre registre, les processus optiques non linéaires peuvent être exaltés grâce au fort champ proche induit par les nanostructures plasmoniques. Cependant, cette exaltation dépend fortement des propriétés modales des nanostructures. Pour cette raison, une technique

## Abstract

---

numérique pour le calcul des modes propres d'une collection de nanoparticules a été développée. La structure modale calculée est utilisée pour analyser et comprendre la génération de seconde harmonique dans les nanoparticules métalliques.

Il est bien connu que l'exaltation maximale d'un processus optique par l'utilisation des structures plasmoniques est limitée par la quantité d'énergie qui peut être localisée dans le champ proche. La dernière partie de cette thèse étudie et exploite différentes approches pour le développement de nanostructures plasmoniques qui absorbent toute l'énergie incidente à une longueur d'onde donnée. Quand une nanostructure est éclairée simultanément par deux faisceaux lumineux, il est alors possible d'utiliser le phénomène d'interférence pour réaliser une absorption parfaite. Ceci est démontré à la fois expérimentalement et théoriquement. Une analogie utilisant un seul faisceau est aussi présentée et l'exaltation du champ proche est validée en utilisant le signal SERS provenant de molécules.

**Mots clefs :** optique, plasmon, plasmon de surface, plasmon localisé, champ proche, film fin, nanoparticule d'or, nanostructure, synthèse chimique, couplage fort, anti-crossing, couplage faible, hémoglobine, cytochrome *c*, diffusion Raman exaltée de surface, piégeage plasmonique, cellules humaines, biosynthèse, protéine corona, peroxyde, glutathion, oxygène, oxydation, Membrane cellulaire, cancer, métastases, hybridation, transmission optique extraordinaire, réseau de nano-ouvertures, détection de nanoparticules, analyse en taille, modes propres, agrégats de nanoparticules, longueur d'onde propre, fréquence propre, distribution du champ, tenseur de Green, génération de seconde harmonique, polarisation circulaire, absorption parfaite, plasmons couplés, surface plasmon propagatif, matériaux composites, guide d'onde, réseau de croissant, couplage critique, diffusion anormale.