



GEMaC

Groupe d'Étude
de la Matière Condensée

DYNAMIQUE DE RECOMBINAISON ET PROPRIÉTÉS EXCITONIQUES DANS LES PÉROVSKITES HYBRIDES 2D

Présentée par Gabriel CHEHADE

thèse réalisée sous la direction de Damien GARROT et Emmanuelle DELEPORTE

Résumé :

Les pérovskites hybrides 2D constituent une classe de matériaux semiconducteurs aux propriétés prometteuses pour la conversion de l'énergie solaire, la réalisation de diodes laser ou de photodétecteurs. Ces matériaux sont synthétisés en solution par voie chimique, à basse température. Ils s'auto-assemblent en une alternance de feuillets inorganiques, séparés par de larges cations organiques. Ce travail de thèse porte sur l'approfondissement de la compréhension des propriétés fondamentales de ces composés, par des techniques de spectroscopie optique. Dans une première partie, nous avons étudié à température ambiante la dynamique de recombinaison dans les composés mono-feuillets en fonction de la densité d'excitons en photoluminescence

résolue en temps. Nous avons observé une dynamique complexe, non exponentielle, présentant une composante longue, avec un temps caractéristique de plusieurs dizaines de nanosecondes. Nous avons développé une simulation des déclins basée sur un modèle cinétique. Nous mettons en évidence l'influence du piégeage des excitons dans un régime de fluence intermédiaire. A haute densité d'excitation, nous révélons l'influence d'un processus de recombinaison non-radiatif, l'annihilation exciton-exciton. Dans une deuxième partie, nous avons étudié l'influence de la dimensionnalité sur les processus de recombinaison. L'augmentation du nombre de feuillets inorganiques réduit les effets de confinement quantique et diélectrique. Nous observons la présence d'une fraction grandissante de porteurs libres en lien avec la diminution de l'énergie de liaison excitonique. De plus, la densité de pièges semble décroître lorsqu'on augmente le nombre de feuillets. A haute fluence, l'annihilation exciton-exciton domine les déclins et nous mesurons une diminution du taux d'annihilation avec l'effet de confinement. Enfin, nous avons également participé, dans le cadre d'une collaboration internationale, à une étude portant sur l'influence du couplage exciton-phonon dans les pérovskites 2D. Des mesures de spectroscopie à basse température, réalisées au LNCMI à Toulouse, nous permettent d'observer une série de transitions excitoniques. L'étude du décalage diamagnétique sous champ magnétique intense montre que ces transitions peuvent être attribuées aux répliques de phonon de la transition 1s de l'exciton, avec une énergie de phonon d'environ 40 meV. Des mesures de spectroscopie Raman à basse température réalisées à l'institut Weizmann des Sciences, révèlent l'existence de modes correspondant à cette énergie, associés à la partie organique.

```

/**/
```

ansi-font-size:11.0pt; mso-bidi-font-size:11.0pt; font-family:Calibri; mso-ascii-font-family:Calibri; mso-ascii-theme-font:minor-latin; mso-fareast-font-family:Calibri; mso-fareast-theme-font:minor-latin; mso-hansi-font-family:Calibri; mso-hansi-theme-font:minor-latin; mso-bidi-font-family:"Times New Roman"; mso-bidi-theme-font:minor-bidi; mso-ansi-language:EN-US; mso-fareast-language:EN-US;}.MsoPapDefault {mso-style-type:export-only; margin-bottom:10.0pt; line-height:115%; mso-pagination:none;}@page WordSection1 {size:596.0pt 842.0pt; margin:49.0pt 51.0pt 0cm 51.0pt; mso-header-margin:37.45pt; mso-footer-margin:36.0pt; mso-paper-source:0;}div.WordSection1 {page:WordSection1;}@page WordSection2 {size:596.0pt 842.0pt; margin:49.0pt 51.0pt 14.0pt 52.0pt; mso-header-margin:37.45pt; mso-footer-margin:0cm; mso-paper-source:0;}div.WordSection2 {page:WordSection2;}--> /**/ /**/<!-- /* Font Definitions */@font-face {font-family:Arial; panose-1:2 11 6 4 2 2 2 2 4; mso-font-charset:0; mso-generic-font-family:auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:-536859905 -1073711037 9 0 511 0;}@font-face {font-family:Times; panose-1:2 0 5 0 0 0 0 0 0; mso-font-charset:0; mso-generic-font-family:auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:3 0 0 0 1 0;}@font-face {font-family:"ＭＳ 明朝"; mso-font-charset:78; mso-generic-font-family:auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:-536870145 1791491579 18 0 131231 0;}@font-face {font-family:"Cambria Math"; panose-1:2 4 5 3 5 4 6 3 2 4; mso-font-charset:0; mso-generic-font-family:auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:-536870145 1107305727 0 0 415 0;}@font-face {font-family:Cambria; panose-1:2 4 5 3 5 4 6 3 2 4; mso-font-charset:0; mso-generic-font-family:auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:-536870145 1073743103 0 0 415 0;} /* Style Definitions */p.MsoNormal, li.MsoNormal, div.MsoNormal {mso-style-unhide:no; mso-style-qformat:yes; mso-style-parent:""; margin:0cm; margin-bottom:.0001pt; mso-pagination:widow-orphan; font-size:11.0pt; font-family:Cambria; mso-ascii-font-family:Cambria; mso-ascii-theme-font:minor-latin; mso-fareast-font-family:Cambria; mso-fareast-theme-font:minor-latin; mso-hansi-font-family:Cambria; mso-hansi-theme-font:minor-latin; mso-bidi-font-family:"Times New Roman"; mso-bidi-theme-font:minor-bidi; mso-fareast-language:EN-US;}.MsoChpDefault {mso-style-type:export-only; mso-default-props:yes; font-size:11.0pt; mso-ansi-font-size:11.0pt; mso-bidi-font-size:11.0pt; font-family:Cambria; mso-ascii-font-family:Cambria; mso-ascii-theme-font:minor-latin; mso-fareast-font-family:"ＭＳ 明朝"; mso-fareast-theme-font:minor-fareast; mso-hansi-font-family:Cambria; mso-hansi-theme-font:minor-latin; mso-bidi-font-family:"Times New Roman"; mso-bidi-theme-font:minor-bidi; mso-ansi-language:EN-GB; mso-fareast-language:JA;}@page WordSection1 {size:612.0pt 792.0pt; margin:70.85pt 70.85pt 70.85pt 70.85pt; mso-header-margin:36.0pt; mso-footer-margin:36.0pt; mso-paper-source:0;}div.WordSection1 {page:WordSection1;}--> /**/ /**/<!-- /* Font Definitions */@font-face {font-family:Arial; panose-1:2 11 6 4 2 2 2 2 4; mso-font-charset:0; mso-

generic-font-family:auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:-536859905-1073711037 9 0 511 0;}@font-face {font-family:"ＭＳ 明朝"; mso-font-charset:78; mso-generic-font-family:auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:-536870145 1791491579 18 0 131231 0;}@font-face {font-family:"ＭＳ 明朝"; mso-font-charset:78; mso-generic-font-family:auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:-536870145 1791491579 18 0 131231 0;}@font-face {font-family:Cambria; panose-1:2 4 5 3 5 4 6 3 2 4; mso-font-charset:0; mso-generic-font-family:auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:-536870145 1073743103 0 0 415 0;} /* Style Definitions */p.MsoNormal, li.MsoNormal, div.MsoNormal {mso-style-unhide:no; mso-style-qformat:yes; mso-style-parent:""; margin:0cm; margin-bottom:.0001pt; mso-pagination:widow-orphan; font-size:11.0pt; font-family:Cambria; mso-ascii-font-family:Cambria; mso-ascii-theme-font:minor-latin; mso-fareast-font-family:Cambria; mso-fareast-theme-font:minor-latin; mso-hansi-font-family:Cambria; mso-hansi-theme-font:minor-latin; mso-bidi-font-family:"Times New Roman"; mso-bidi-theme-font:minor-bidi; mso-fareast-language:EN-US;}.MsoChpDefault {mso-style-type:export-only; mso-default-props:yes; font-size:11.0pt; mso-ansi-font-size:11.0pt; mso-bidi-font-size:11.0pt; font-family:Cambria; mso-ascii-font-family:Cambria; mso-ascii-theme-font:minor-latin; mso-fareast-font-family:"ＭＳ 明朝"; mso-fareast-theme-font:minor-fareast; mso-hansi-font-family:Cambria; mso-hansi-theme-font:minor-latin; mso-bidi-font-family:"Times New Roman"; mso-bidi-theme-font:minor-bidi; mso-ansi-language:EN-GB; mso-fareast-language:JA;}@page WordSection1 {size:612.0pt 792.0pt; margin:70.85pt 70.85pt 70.85pt 70.85pt; mso-header-margin:36.0pt; mso-footer-margin:36.0pt; mso-paper-source:0;}div.WordSection1 {page:WordSection1;}--> /**/