

ÉTUDE DE LA LUMINESCENCE DE NANOCRISTAUX SEMI-CONDUCTEURS ET COUPLAGE AVEC DES STRUCTURES PLASMONIQUES

Présentée par monsieur Fabien Éloi
Discipline : physique
Laboratoire : Groupe d'étude de la matière condensée

Résumé :
Les nanocristaux semi-conducteurs colloïdaux possèdent des propriétés photo-physiques qui en font des objets de choix pour des applications variées, comme le marquage biologique, le photovoltaïque ou encore l'optique quantique. Dans cette thèse, nous étudions les modifications, introduites par des réseaux d'or, de la fluorescence de nanocristaux CdSe/CdS à coquille épaisse. Nous présentons tout d'abord les propriétés fondamentales de ces nanocristaux de CdSe/CdS puis la manière dont leurs propriétés

d'émission peuvent être contrôlées par l'environnement électromagnétique, en détaillant en particulier le cas d'un couplage avec des plasmons de surface. Des simulations réalisées par nos collaborateurs du LICB dans le cadre d'un projet ANR sont ensuite comparées à nos mesures expérimentales. Nous observons que le couplage des nano-émetteurs individuels au réseau d'or permet à la fois d'accélérer l'émission spontanée et de mieux la collecter. Les structures métalliques sont optimisées pour que les améliorations détectées soient peu sensibles à la position de l'émetteur. Un effet supplémentaire est le contrôle de la polarisation de l'émission qui se révèle être fixée pa r le réseau. Nous rapportons également des changements dans la statistique temporelle d'émission des photons et notamment la suppression totale du scintillement. Les métaux étant connus pour leurs pertes ohmiques, des expériences ont été réalisées pour montrer que les pertes non radiatives qu'elles entraînent peuvent être réduites à basse température. Nous avons examiné le cas d'une surface d'or plane ainsi que des réseaux linéaires et circulaires. Enfin, une nouvelle méthode de post-traitement a été développée en parallèle. Elle permet par exemple d'étudier les variations de l'efficacité quantique bi-excitonique dans des nanocristaux enrobés d'or suivant l'état de charge de l'émetteur.

Abstract:
Colloidal semiconductor nanocrystals are fluorescent nano-objects exhibiting discrete energy levels which justify their second appellation: quantum dots (QDs). Due to their high efficiency and ease of use, they find potential applications in a wide range of fields. Their usefulness for biological labeling, optoelectronic components in flat screens, light harvesting or quantum optics has been demonstrated by many studies. In this thesis, we use gold gratings in order to modify the emission properties of CdSe/CdS core-shell nanocrystals. After a brief presentation of their electronic and fluorescence properties, we explain how those properties can be modified by the control of the electromagnetic environment with particular care to the case of surface plasmons. We then show through experiment and simulations that those plasmons enable better collection efficiency, faster photo-luminescence decay rates, and polarized emission without being particularly restricting towards QD positioning. Changes in the emission statistics are also observed, notably total suppression of the blinking in the fluorescence intensity. Further experiments at low temperature have been realized in order to assess the importance of the gold ohmic losses. We investigated the case of a flat gold film as well as linear and circular gratings. A new post-selection method is also introduced and used to study the variations of the bi-excitonic quantum yield for nanocrystals embedded in a gold nano-resonator as a function of the ionization state of the emitter.

Jury :

M. Jean-Pierre HERMIER, professeur des universités, université de Versailles-Saint-Quentin-en-Yvelines - directeur de thèse
M. Xavier QUÉLIN, maître de conférences, université de Versailles-Saint-Quentin-en-Yvelines - codirecteur de these
M. Stéphane BERCIAUD, maître de conférences, université de Strasbourg - rapporteur
M. Jean-Philippe POIZAT, directeur de recherche CNRS, institut Néel - rapporteur
M. Gérard COLAS DES FRANCS, professeur des universités, université de Bourgogne - examinateur
M. Loïc LANCO, maître de conférences, université Paris-Diderot - examinateur
M. Philippe TAMARAT, professeur des universités, université de Bordeaux - examinateur
M. Gérald DUJARDIN, directeur de recherche CNRS, ISMO - examinateur

Avis de soutenance (PDF)