



GEMaC

Groupe d'Étude
de la Matière Condensée

NANOSTRUCTURES SEMICONDUCTRICES COLLOÏDALES

Études sur les propriétés photophysiques de nanostructures colloïdales

1. Les nanocristaux (NCx) de CdSe/CdS

Depuis plusieurs années, nous collaborons avec l'équipe Parisian Quantum Dots du LPEM (ESPCI). Cette équipe maîtrise la synthèse des NCx CdSe/CdS avec une coque épaisse cristalline pouvant dépasser 10 nm. Conjointement avec l'équipe du LPEM, nous avons montré la suppression quasi-complète du scintillement pour ces objets et l'existence d'un niveau émetteur de basse intensité, un état « gris » d'efficacité quantique proche de 30 % (les recombinaisons non radiatives correspondent à des recombinaisons par effet Auger). Toujours en collaboration avec l'ESPCI mais aussi avec des théoriciens et le groupe de M. Bayer à Dortmund, nous avons montré que ces recombinaisons étaient activées thermiquement [1] et étudié la dynamique de spin du trion [2]. En dessous de 30 K, les processus Auger sont supprimés et le rendement de fluorescence

est proche de 100 %. Toujours à basse température, nous avons aussi montré la suppression du scintillement [3] et examiné en détail la cohérence de l'émission des NCx à coquille de CdS par une méthode originale de spectroscopie de Fourier par corrélation de photons [4].

2. Nanosources de lumière colloïdales à la structure hybride or/NCx

En collaboration avec le Laboratoire Charles Fabry et le Laboratoire de Physique et d'Etude des matériaux, nous avons développé et étudié un nouveau type d'émetteurs fluorescents hybrides associant des NCx colloïdaux couplés à des nanorésonateurs plamoniques. Il s'agit d'agrégats compacts de NCx de 300 nm de diamètre environ encapsulés dans une coquille de silice (épaisseur d'environ 20 nm) et une coquille d'or (épaisseur d'environ 30 nm).

Nous avons mené une étude approfondie des propriétés optiques complexes de ces superparticules (SPs) à l'ambiante ou à des températures cryogéniques (4K). En l'absence de coquille d'or, les SPs présentent une grande photostabilité, une efficacité quantique radiative supérieure à 40 % en moyenne et une absence totale de scintillement. L'analyse des spectres de fluorescence et des expériences de spectroscopie résolues en temps montrent que ces objets présentent un transfert non radiatif entre NCx voisins (FRET pour *Förster resonant energy transfer*) que nous avons caractérisé en détail et qui en accord avec la haute compacité de l'agrégat (mesures SAXs) [5].

Le phénomène de FRET constitue une interaction dipolaire incohérente entre NCx qui réduit les interactions cohérentes recherchée en particulier pour la superradiance. En ajoutant un résonateur d'or (on parle de GSPs pour *golden supraparticles*), on accélère l'émission et on réduit simultanément l'efficacité du FRET d'un facteur d'environ 3 pour les GSPs de dimension totale inférieure à 300 nm [6]. L'accélération de l'émission observée expérimentalement est en accord avec des simulations numériques

Dans une approche pouvant être généralisée à d'autres structures constituées d'un nombre mésoscopique d'émetteurs et basée sur l'étude de la cohérence de l'émission, nous avons enfin montré que la structure du spectre d'émission de ces systèmes mésoscopiques permettait d'évaluer le nombre d'émetteurs actifs dans une GSP individuelle de façon bien plus précise que la mesure de ses paramètres géométriques par microscopie à force atomique ou microscopie électronique [7].

[1] C. Javaux *et al.*, Nature Nanotechnology **8**, 206 (2013)

- [2] F. Liu *et al.*, Phys. Rev. B **88**, 035302 (2013)
- [3] D. Canneson *et al.*, Phys. Rev. B **89**, 035303 (2014)
- [4] L. Biadala *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 085416 (2015)
- [5] V. Blondot *et al.*, New J. Phys. **22**, 113026 (2020)
- [6] V. Blondot *et al.*, arXiv:2207.03135 (2022)
- [7] A. Delteil *et al.*, Phys. Rev. B. **106**, 115302 (2022)

Contact

Jean-Pierre Hermier