



GEMaC

Groupe d'Étude
de la Matière Condensée

PROPRIÉTÉS OPTIQUES DE NANOSOURCES DE LUMIÈRE HYBRIDES OR/SEMI-CONDUCTEUR

Présentée par Victor Blondot

Thèse réalisée sous la co-direction de Jean-Pierre Hermier et Stéphanie Buil

Résumé :

Les nanocristaux semi-conducteurs colloïdaux constituent des nanoémetteurs synthétisables par voie chimique. Ils sont prometteurs pour des applications très diverses allant des dispositifs optoélectroniques et photovoltaïques, la génération d'états quantiques de la lumière ou encore le biomarquage. L'objectif de la thèse est de produire une structure basée sur ce type d'émetteurs qui pallie certaines de leurs limitations comme le scintillement de leur fluorescence. Pour y parvenir, des modes d'émission collective comme la superradiance, théorisée par Dicke en 1954, peuvent être mis à profit. Ils permettent d'accélérer le taux d'émission spontané par un facteur d'autant plus grand que le nombre d'émetteurs considérés est important. Il est ainsi possible

d'augmenter la brillance d'un ensemble de nanosources de lumière en diminuant l'importance relative des effets non radiatifs. A cause de la dispersion de leurs propriétés spectrales d'émission, les nanocristaux ne constituent pas a priori de bons candidats pour atteindre ce type de régime. Cependant, des travaux théoriques ont montré que leur couplage avec une nanostructure d'or peut engendrer un nouveau régime d'émission collective.

Après une présentation générale des propriétés des nanocristaux colloïdaux au cœur de CdSe, nous examinons les caractéristiques principales de différents régimes d'émission collective. La suite de la thèse est consacrée aux résultats d'expériences de photoluminescence menées à température ambiante ou cryogénique grâce à des microscopes confocaux associés à divers dispositifs de comptage de photons ou de spectroscopie. Dans un premier temps, nous avons caractérisé les nanocristaux individuels afin de connaître le taux de déclin de leur fluorescence et leurs propriétés spectrales. Les expériences ont ensuite été réalisées sur des agrégats de nanocristaux entourés d'une coque de silice. Ils présentent une émission particulièrement photostable dans le temps et ne scintillent pas. Nous avons mis en évidence et étudié en détail d'importants transferts d'énergie entre émetteurs de type FRET (Förster Resonance Energy Transfer). Nous avons aussi observé que les agrégats présentent un comportement particulier dans les conditions cryogéniques, avec l'apparition d'une dynamique de luminescence plus lente. La dernière partie du manuscrit est consacrée à l'étude des agrégats recouverts d'une couche d'or servant de résonateur plasmonique. Nous avons tout d'abord mis en évidence une relation entre taux de déclin de la photoémission et diamètre des agrégats. Les résultats expérimentaux sont en accord avec les prévisions théoriques d'un modèle permettant de simuler l'effet des modes plasmoniques en fonction de la géométrie du résonateur. Nous avons aussi démontré une réduction de l'efficacité des transferts de type FRET dans ces structures. Enfin, des mesures résolues en temps de la fonction d'autocorrélation de l'intensité menées à 4K à l'aide d'un montage Hanbury-Brown et Twiss nous ont permis de démontrer un résultat important : l'émission présente un groupement des photons qui correspond à une émission collective des agrégats. Nos résultats montrent que ce sont bien les modes plasmoniques qui exaltent cet effet.

```
/**/
```

auto; mso-font-pitch:variable; mso-font-signature:-520092929 1073786111 9 0 415 0;} /*
Style Definitions */p.MsoNormal, li.MsoNormal, div.MsoNormal {mso-style-unhide:no;
mso-style-qformat:yes; mso-style-parent:""; margin-top:0cm; margin-right:0cm; margin-
bottom:10.0pt; margin-left:0cm; line-height:115%; mso-pagination:none; 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;}.
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: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;}--> /**/