



Université Claude Bernard



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **25 septembre 2019**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Simon THEBAUD**

Titre de la thèse : « *Transport d'électrons et de phonons dans les matériaux thermoélectriques désordonnés : confinement dimensionnel, diffusion résonante et localisation* »



Résumé

Ces dernières décennies, l'urgence croissante de la crise énergétique et la prise de conscience qu'une grande partie de l'énergie utilisée dans le monde est dissipée sous forme de chaleur ont provoqué un engouement pour le développement de modules thermoélectriques performants. Ces dispositifs pourraient récupérer la chaleur provenant de procédés industriels ou d'autres sources, transformant un gradient de température en voltage grâce à l'effet Seebeck. Les matériaux thermoélectriques performants doivent posséder une faible conductivité thermique, une haute conductivité électrique et un grand coefficient Seebeck. L'optimisation simultanée de ces paramètres est un défi majeur pour la physique de la matière condensée et la science des matériaux. Dans l'optique d'améliorer les propriétés thermoélectriques de plusieurs matériaux prometteurs, nous explorons plusieurs stratégies dans laquelle les défauts (substitutions atomiques, lacunes...), le désordre et le confinement dimensionnel jouent un rôle central.

Nous réalisons des calculs en théorie de la fonctionnelle densité et des projections sur des orbitales de Wannier afin de construire des Hamiltonian tight-binding et des matrices dynamiques réalistes décrivant leur structure électronique et vibrationnelle. Ces paramètres sont ensuite utilisés pour calculer les propriétés de transport thermoélectrique en utilisant l'équation de Boltzmann, le formalisme de Landauer et la méthode Chebyshev polynomial Green's function, qui permet un traitement exact du désordre.

Nous étudions les propriétés de transport électronique et les performances thermoélectriques de deux matériaux prometteurs pour la production d'énergie à hautes températures, le titanate de strontium et l'oxyde de titane rutile. Nous obtenons un très bon accord entre nos prédictions et un grand nombre de données expérimentales. Nous montrons que l'augmentation du coefficient Seebeck observée dans les superlayers de titanate de strontium, jusque là attribuée à des effets de confinement quantique, est en réalité très bien expliquée par l'hypothèse d'électrons délocalisés.

Nous explorons les effets généraux des états résonant sur le transport électronique dans le cadre d'une étude modèle, et nous trouvons une augmentation d'un facteur six des performances thermoélectriques. Nous examinons ensuite le cas particulier du titanate de strontium, et nous montrons que les performances sont détruites par des effets de localisation si des atomes de Vanadium sont introduits comme impuretés résonantes.

Nous étudions l'influence des défauts dans les matériaux bidimensionnels. Contrairement aux adatoms, nous montrons que les substitutions dans les dichalcogénides de métaux de transition ont pour effet de localiser les porteurs de charge. Nous étudions l'effet des lacunes sur le transport de phonons dans le graphène, et nous déterminons les taux de diffusion phonon-lacune. Nous obtenons un très bon accord entre notre théorie et des mesures de conductivité thermique dans des échantillons de graphène irradiés et de tailles finies.