
Etude de clusters d'eau par dynamique directe Born-Oppenheimer

Yann Cornaton^{*1}, Vladimir Rybkin², Simen Reine², and Kenneth Ruud¹

¹Center for Theoretical and Computational Chemistry (Universitetet i Tromsø) (CTCC (UiT)) –
Institutt for kjemi – Universitetet i Tromsø, Norvège

²Center for Theoretical and Computational Chemistry (Universitetet i Oslo) (CTCC (UiO)) – Institutt
for kjemi – Universitetet i Oslo, Norvège

Résumé

La molécule d'eau joue un rôle important dans de nombreux problèmes de différents domaines de la chimie, que ce soit physique, biologique, atmosphérique, interstellaire. Il en va de même concernant l'importance de ses clusters. Ceux-ci constituent un lien direct entre phases gaz et condensées. En étudiant différents clusters de taille croissante, il est ainsi possible d'étudier progressivement la transition entre comportement gazeux et comportement en phase condensé [1]. Expérimentalement, l'étude par spectroscopie infrarouge, notamment de l'élongation OH, permet de suivre ce comportement en sondant directement le réseau de liaisons hydrogène [2].

Des simulations de dynamique moléculaire Born-Oppenheimer avec calcul à la volée de la surface de potentiel électronique en DFT ont été réalisées pour l'étude de larges clusters d'eau. Le calcul de trajectoires relativement longues sur des clusters de grande taille a pu être réalisé en faisant appel à des avancées récentes quant à la réduction du coût de calcul de la structure électronique et de techniques d'intégration de trajectoires [3].

Ces simulations ont permis d'obtenir des spectres infra-rouges basés sur une vision dynamique du système et tenant compte de l'agitation thermique. La spectroscopie infrarouge permet ainsi d'observer la différence de comportement entre les molécules au sein des différents clusters.

Dans cette contribution, la théorie sous-tendant ces calculs sera présentée brièvement, ainsi que les performances en terme de coût calcul. Les travaux réalisés dans le cadre de cette étude seront également présentés et commentés.

U. Buck, C.C. Pradzynski, T. Zeuch, J.M. Dieterich, B. Hartke, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **16**, 6859-6871 (2014)

A. Fujii, K. Mizuse, *Int. Rev. Phys. Chem.* **32**, 266-307 (2013)

V.V. Rybkin, A.O. Simakov, V. Bakken, S. Reine, T. Kjærgaard, T. Helgaker, E. Uggerud, *J. Comput. Chem.* **34**, 533-544 (2013)

Mots-Clés: dynamique directe Born, Oppenheimer, clusters d'eau, spectroscopie infrarouge, DFT

*Intervenant