
Modélisation multi-échelle des propriétés optiques de systèmes hybrides nanoparticule/photochrome: de la TD-DFT au couplage Mécanique Quantique/Electrodynamique

Arnaud Fihey*^{†1}, Aurélie Perrier¹, and François Maurel¹

¹Interfaces, Traitements, Organisation et Dynamique des Systèmes (ITODYS) – CNRS : UMR7086, Université Paris VII - Paris Diderot – Université Paris Diderot, Bâtiment Lavoisier, 15 rue Jean de Baïf, case postale 7090, 75205 Paris Cedex 13, France

Résumé

L'immobilisation de composés photochromes sur des nanoparticules métalliques (NP) constitue un élément essentiel dans le design de nouveaux dispositifs photoactifs à l'échelle nanométrique. Accéder de façon théorique aux propriétés optiques de tels objets hybrides permettrait de mettre en évidence des possible interactions entre la résonance plasmon de la NP et la résonance moléculaire de l'unité photoactive, ou des transferts d'électrons/d'énergie entre ces deux entités. Malheureusement, la modélisation des propriétés optiques de tels systèmes reste aujourd'hui difficile en raison du nombre considérable d'électrons à traiter. Pour outrepasser ces limitations, on peut alors considérer : i) un point de vue réductionniste, où seulement une partie de la NP est modélisée¹, ou ii) un schéma de calcul approximé, (DFT tight-binding (DFTB) ou QM/QM'). Ces différentes méthodes sont généralement cantonnées à l'étude de l'état fondamental et accéder aux états excités reste un réel challenge, encore inédit dans la littérature pour ce type de composés.

Dans cette présentation seront discutées les propriétés optiques de systèmes NP/photochrome obtenues à l'aide des différents schémas de calculs en cours de développement. Les résultats obtenus à l'aide d'un modèle réductionniste de méthodes TD-DFT standard seront d'abord présentés. Ensuite, le développement d'une méthode DFTB adaptée apporte des informations sur la la structure électronique de systèmes de taille nanométrique, à l'échelle du matériau. Enfin, nous nous intéresserons à une méthode QM/ED (Electrodynamics) pour accéder au couplage entre le plasmon de la NP et l'excitation moléculaire. Nous montrerons que les propriétés photochromiques de la molécule ne sont pas toujours conservées une fois celle-ci insérée dans le dispositif hybride, ceci en accord avec des résultats expérimentaux.²

¹Kudernac, T., van der Molen, S.J., van Wees, B.J., Feringa, B.L., Chemical Communications, **2006**, 3597.

² Fihey, A., Maurel, F. & Perrier, A. , J. Phys. Chem. C, **2014**, 118, 4444–4453 .

Mots-Clés: photochromisme, Nanoparticule, TD, DFT, Plasmonique, Electrodynamique

*Intervenant

[†]Auteur correspondant: arnaud.fihey@etu.univ-paris-diderot.fr