

Dynamique et contrôle de systèmes quantiques ouverts : Transfert de charge à une hétérojonction et contrôle d'une isomérisation

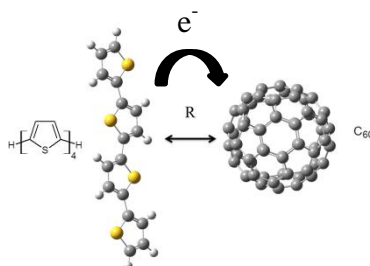
A. Chenel[†], C. Meier[§], M. Desouter-Lecomte[†]

[†] Laboratoire de Chimie Physique, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France
[§] LCAR-IRSAMC, Université Paul Sabatier, 31062 Toulouse, France

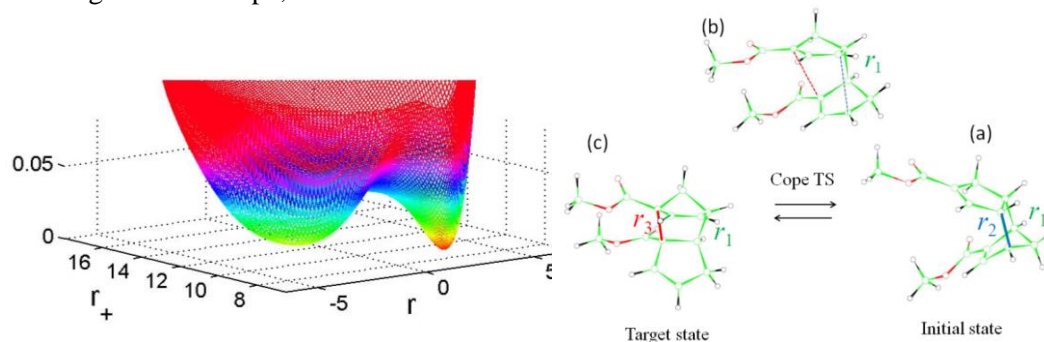
L'étude des effets quantiques, comme les cohérences quantiques, et leur exploitation en contrôle par pulse laser est encore un défi numérique pour les grands systèmes. Pour réduire la dimensionnalité du problème, la dynamique dissipative se focalise sur un sous-espace quantique couplé à un bain thermique d'oscillateurs harmoniques. L'outil essentiel est la densité spectrale du bain, qui contient toutes les informations sur le bain.

Plusieurs stratégies complémentaires existent. Nous adoptons une équation maîtresse non-markovienne pour l'évolution de la matrice densité associée au système quantique. Cette approche, proposée par Meier and Tannor^[1], est perturbative en fonction du couplage système-bain, mais pas en fonction de l'interaction avec un champ laser. Le but est de confronter cette méthodologie à des systèmes calibrés par des calculs *ab initio*.

Une première étude porte sur la modélisation du transfert d'électron ultrarapide à une jonction oligothiophène-fullerène, présente dans des cellules photovoltaïques organiques. L'utilisation de la représentation par un oscillateur brownien du modèle spin-boson^[2] permet de contourner la limitation du régime perturbatif.



La méthode de dynamique quantique décrite ci-dessus est ensuite combinée à la théorie du contrôle optimal (OCT), pour être appliquée au contrôle d'une isomérisation, le réarrangement de Cope, dans le contexte des réactions de Diels-Alder.



Nous montrons qu'inclure la dissipation dès l'étape d'optimisation du champ permet à l'algorithme de contrôle de contrer la décohérence induite par l'environnement et conduit à un meilleur rendement^[3,4].

References

1. C. Meier, D.J. Tannor, *J. Chem. Phys.* 111, 3365 (1999)
2. A. Chenel, E. Mangaud, I. Burghardt, C. Meier and M. Desouter-Lecomte, *J. Chem. Phys.* 140, 044104 (2014)
3. A. Chenel, G. Dive, C. Meier and M. Desouter-Lecomte, *J. Phys. Chem. A* 116, 11273 (2012)
4. G. Dive, R. Robiette, A. Chenel, M. Ndong, C. Meier and M. Desouter-Lecomte, *Theor. Chem. Acc.* 131, 1236 (2012)