

SOUTENANCE DE THESE

Stefano Mazzei

Lundi 13 décembre 2021 à 14h00

Amphi Poisson



Génération de seconde harmonique de surfaces de silicium fonctionnalisées par des bases d'ADN : une description ab initio

Comprendre les mécanismes d'interaction entre des acides aminés ou des peptides avec les surfaces ouvre de nouvelles perspectives. L'adsorption de molécules d'ADN sur des surfaces semiconductrices est régulièrement évoquée pour la conception de biosenseurs ou la production de bio-matériaux. La possibilité de fonctionnaliser des surfaces à l'aide de bio-molécules, de créer des structures ordonnées sur des distances de quelques nanomètres dépend de notre capacité à comprendre les phénomènes gouvernant la déposition de films moléculaires sur différents types de surfaces.

L'optique non-linéaire et plus précisément la génération de seconde harmonique (SHG) est particulièrement adaptée à l'étude des surfaces. Dans cette spectroscopie, deux photons de même énergie sont absorbés et un photon d'énergie double est émis. La description de ce phénomène physique passe par le calcul de susceptibilité d'ordre 2 : celle-ci étant nulle pour les matériaux centrosymétriques, la réponse ne peut provenir que de la surface, qui est à l'origine de la brisure de symétrie .

Pendant cette thèse, les surfaces fonctionnalisées ont été représentées par des couches introduites dans une supercellule, dans un formalisme en espace réciproque. Au delà de la suppression du vide introduit dans la supercellule, que nous traitons par la méthode Selected-G, nous avons également été amenés à nous interroger sur les propriétés optiques des systèmes 2D. Un formalisme en espace mixte - qui permet de traiter la direction orthogonale à la surface dans l'espace réel, et d'isoler la couche de ses répliques - a été mis au point, et les différences entre les réponses hors-plan et dans le plan d'une couche de silicium isolée ont été investiguées en détail. Le lien avec les grandeurs expérimentalement mesurées a également été fait. En particulier, alors que la fonction diélectrique macroscopique d'une couche mince est intrinsèquement difficile à définir, les quantités expérimentales telles que la réflectance et la transmittance ne sont pas affectées par cette ambiguïté. Les conditions du calcul pour modéliser une surface, c'est-à-dire un espace semi-infini ont été clarifiées.

Les spectres de SHG d'une surface de silicium (4x1) fonctionnalisées avec des molécules de thymine, uracil et cytosine ont été calculés en présence des champs locaux. Les différences entre les spectres ont été étudiées, et les potentialités de la SHG comme outil pour reconnaître la nature chimique de l'adsorbat ont été analysées. La sensibilité de la SHG à la configuration d'adsorption a également été évaluée, en comparant les spectres au second ordre générés par des surfaces fonctionnalisées à la thymine dans différentes géométries d'adsorption.

