

Titre en français : Transport quantique d'excitons dans des réseaux bio-inspirés de colorants assemblés sur ADN

Titre en anglais : Exciton quantum transport in DNA-templated bioinspired dye networks

Nom de la directrice de thèse : Fabienne Michelini

Co-directeur de thèse : Mario Barbatti, professeur à l'ICR

Tel : 04 13 94 53 17

E-Mail : fabienne.michelini@univ-amu.fr

Laboratoire : Institut de Matériaux Microélectronique et Nanosciences de Provence

Financement : demandé

Type de financement : contrat doctoral

Résumé en français :

La photosynthèse recueille l'énergie lumineuse sous la forme d'excitations électroniques (excitons) dans des antennes photoréceptrices [Bla2021]. Ces antennes sont des complexes fait de chromophores structurellement bien organisés dans un échafaudage de protéines, et capables de transporter ces excitons avec une efficacité remarquable jusqu'au centre de réaction où se produit la conversion photochimique de l'énergie. De telles performances ont motivé la conception de réseaux de colorants bio-inspirés dans lesquels les chromophores sont organisés par greffage régulier le long des doubles brins d'ADN utilisés comme échafaudage structurel [Har202].

Le projet de thèse vise à étudier théoriquement le transport des excitons dans de telles structures et à optimiser leur fonctionnalité. La méthodologie sera basée sur le formalisme des fonctions de Green hors-équilibre (NEGF), jusque dans le régime dépendant du temps [Mic2019], maîtrisé par le groupe NQS, <https://www.nqs-group.com>. Les enjeux sont de développer un cadre théorique pour le transport quantique des excitons, qui fait encore défaut, et de construire une collaboration interdisciplinaire avec une équipe de chimistes théoriciens de l'ICR, <http://barbatti.org>, experts en calculs de chimie quantique/mécanique moléculaire (QM/MM) non-adiabatiques [Hui2020, Bon2022].

Les résultats de la modélisation et de la simulation devraient contribuer à démêler les mécanismes fondamentaux toujours débattus concernant la façon dont les propriétés dynamiques électroniques et structurelles se combinent dans les antennes naturelles pour rendre le transport de l'énergie si robuste contre la décohérence [Eng2007]. L'objectif final de la thèse est d'utiliser cette compréhension pour concevoir des nanodispositifs innovants à base d'ADN pour des applications dans l'énergie solaire, la détection moléculaire, l'optoélectronique, ou même l'informatique à l'échelle nanométrique utilisant des états excitoniques.

Résumé en anglais :

Photosynthesis collects light energy in the form of electronic excitations (excitons) inside light-harvesting antennas [Bla2021]. These antennas are structurally well-organized, protein-chromophore complexes able to transport these excitons with outstanding efficiency to the reaction center where the photochemical energy conversion occurs. Such performances have motivated the design of bio-

inspired dye networks in which chromophores are organized upon regular grafting along DNA double strands used as a structural scaffold [Har2021].

The thesis project targets to theoretically investigate the transport of excitons in such structures and optimize their functionality. The methodology will be based on the non-equilibrium Green's function formalism (NEGF), up to in the time-dependent regime [Mic2019], mastered by the NQS group, <https://www.nqs-group.com>. The challenges are to develop a theoretical framework for the quantum transport of excitons, which is still missing, and to build an interdisciplinary collaboration with a team of theoretical chemists at ICR, <http://barbatti.org>, expert in nonadiabatic quantum chemical/molecular mechanics (QM/MM) calculations [Hui2020, Bon2022].

The modelling and simulation results should contribute to unravel fundamental mechanisms still open to debate regarding how electronic and structural dynamic properties combine in natural antennae to make the energy transport so robust against decoherence [Eng2007]. The final thesis objective is to use this understanding to design innovative DNA-based nanodevices for applications in solar energy, molecular detection, optoelectronics, and nanoscale computing using excitonic states.

Publications sur le sujet :

- [Bla2021] [Robert E. Blankenship, *Molecular mechanisms of photosynthesis*. Third Edition, Wiley 2021.](#)
- [Bon2022] [M. Bondanza, B. Demoulin, F. Lipparini, M. Barbatti, B. Mennucci. Trajectory Surface Hopping for a Polarizable Embedding QM/MM Formulation. *J. Phys. Chem. A* 126, 6780 \(2022\).](#)
- [Eng2007] [G. S. Engel et al., *Evidence for wavelike energy transfer through quantum coherence in photosynthetic systems*. *Nat. Lett.* 446, 782 \(2007\)](#)
- [Hart2021] [S. M. Hart et al., *Engineering couplings for exciton transport using synthetic DNA scaffolds*. *Chem* 7, 752-773 \(2021\)](#)
- [Hui2020] [M. Huix-Rotllant, N. Ferré and M. Barbatti. Time-Dependent Density Functional Theory: from the Fundamentals to Nonadiabatic Dynamics. In *Quantum Chemistry and Dynamics of Excited States: Methods and Applications*, L. Gonzalez and R. Lindh, Eds. John Wiley.](#)
- [Mic2019] [F. Micheli and K. Beltako, *Asymmetry induces long-lasting energy current transients inside molecular loop circuits*. *Phys. Rev. B* 100, 024308 \(2019\)](#)

Profil du candidat recherché : Le candidat recherché devra posséder des connaissances en physique de la matière condensée ou chimie moléculaire, ayant bénéficié d'une formation en mécanique ou chimie quantique, et avec un savoir-faire en calculs numériques.

Insertion professionnelle après thèse : dans la recherche académiques ou des départements de recherche et d'innovation du secteur industriel pour le développement de modélisation et simulations visant de nouvelles technologies hybrides.