



Soutenance de thèse

Ahmed GHALGAOUI

Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay (ISMO), Orsay - France

Adsorption et dynamique femtoseconde de molécules de CO adsorbées sur des nanoparticules épitaxiées : sonde optique non linéaire, effet de taille et de support

Nous avons étudié la spectroscopie et la dynamique d'excitation d'un système hybride constitué de molécules et de nanoparticules (NP) sur couche isolante, qui est aussi un catalyseur modèle (NP de Pd épitaxiées sur une couche mince de MgO sur Ag(100)). Nous avons mis en évidence le rôle de la forme et de la taille des NP, et de l'épaisseur de la couche d'oxyde, sur l'interaction entre NP et molécule de CO, par des expériences fondamentales capables de différencier les sites d'adsorption (spectroscopie laser vibrationnelle par somme de fréquences (SFG)). De plus, des expériences pompe-sonde nous ont permis de sonder la dynamique d'interaction des électrons excités dans les NP avec les molécules.

Une analyse combinée par LEED et STM nous a permis de déterminer les meilleures conditions de croissance du film de MgO. Par la suite des NP de palladium ont été épitaxiées sur ce film avec une densité et une distribution de taille satisfaisantes. La SFG montre une forte dépendance de la fréquence de vibration et de la polarisabilité vibrationnelle avec la taille des NP, qui traduit la diminution de la force de la chimisorption de CO sur NP quand la taille des NP diminue dans une gamme d'épaisseur des NP de 7 à 3 plans atomiques. L'excitation des électrons des NP et du substrat d'Ag se manifeste par une réponse spectroscopique et par la photodésorption de CO. On observe le découplage de l'excitation produite dans l'argent quand l'épaisseur de la couche d'oxyde dépasse quelques plans atomiques. On observe alors que l'efficacité de l'excitation pour la photodésorption décroît quand la taille des NP diminue, ce qui montre que le confinement des électrons dans la particule a plutôt pour effet d'augmenter la vitesse de relaxation électronique que d'exciter plus efficacement les molécules adsorbées.

Nous présenterons les résultats préliminaires d'une modélisation des effets de taille, à partir d'un modèle optique de double couche (NP / MgO) et d'un modèle à deux températures (électrons et phonons). Ce modèle montre une variation très forte de l'absorption optique avec la taille des NP, et indique la nécessité de prendre en compte l'effet balistique des électrons excités dans l'argent.

Mots clé : Nanoparticule, couche mince d'oxyde, SFG, femtoseconde, polarisabilité vibrationnelle, pompe sonde, chimisorption, photodésorption

ATTENTION JOUR ET HEURE INHABITUELLES

Mercredi 25 janvier 2012 à 10h

Bât 210 – Amphi 1

Université Paris-Sud 91405 ORSAY Cedex

La soutenance sera suivie d'un pot auquel vous êtes chaleureusement conviés.