



Résumé du sujet de thèse

Le développement de techniques basées sur une seule molécule au cours des dernières décennies a permis de sélectionner, de suivre et de mesurer directement une molécule individuelle. La spectroscopie à une seule molécule permet d'observer directement les propriétés de molécules individuelles généralement cachées dans les moyennes d'ensemble. Dans cette thèse, la dynamique structurale d'un seul émetteur quantique, servi par l'hypericine, est caractérisée. L'hypericine, isolée du millepertuis, n'a pas seulement un grand potentiel en médecine moderne, mais présente également une dynamique structurale fascinante, comme la dissociation, la conformation et la tautomérie.

En utilisant la microscopie à balayage confocale combinée à des modes laser polarisés radialement/azimutalement, on observe une réorientation tridimensionnelle du moment dipolaire de transition d'une seule molécule, en raison de la redistribution de charge pendant la tautomérie. La réorientation transitoire est détectée dans une trace temporelle de fluorescence comme une fluctuation soudaine. Pour quantifier les propriétés temporelles de la tautomérie, la fonction d'autocorrélation des photons est utilisée pour extraire les fluctuations d'intensité. Les résultats montrent l'influence distincte de l'environnement local, comme la matrice PVA et l'effet de deutération.

L'environnement photonique local d'une molécule est modifié par la microcavité/nanocavité. Les principes théoriques et les résultats expérimentaux sont présentés pour une molécule couplée. Un changement significatif du taux d'émission radiatif et des spectres de fluorescence est discuté. Il nous permet de mesurer le rendement quantique absolu en utilisant une microcavité accordable. Les résultats montrent la possibilité de contrôler la tautomérisation en modifiant l'environnement photonique. Par la suite, la dissociation moléculaire est discutée par des spectres Raman améliorés en surface à molécule unique bénéficiant de l'amélioration en champ proche de la nanocavité. De plus, le modèle théorique révèle l'importance du rayon des nanoparticules et de la distance entre elles afin d'obtenir une amélioration maximale des émissions. Une stratégie d'optimisation expérimentale rapide vers une amélioration optimale de la fluorescence est décrite.



Université
franco-allemande
Deutsch-Französische
Hochschule

Mots-clés: Molécule unique, Fluorescence, Hypéricine, Fabry-Pérot, Interféromètres de, Résonance plasmonique de surface, Raman, Effet augmenté en surface