

Modélisation de spectroscopie moléculaire par paquets d'électrons attosecondes

Contexte de la thèse

Lorsqu'une cible atomique ou moléculaire neutre est soumise à un champ laser intense et court, un électron est arraché à la cible; on dit qu'il est éjecté dans le continuum. Sous l'action du champ laser, cet électron s'éloigne dans un premier temps de l'ion parent avant d'y être ramené lors du demi-cycle laser suivant, *i.e.* en un temps extrêmement court, de l'ordre de quelques centaines d'attosecondes (10^{-18} s). L'électron ramené sur l'ion se recombine alors dans l'état fondamental qui n'est rien d'autre que l'état lié dans lequel il était avant l'interaction. Il émet alors une radiation VUV (Ultraviolet du vide) de façon à respecter le principe de conservation de l'énergie totale. Ce processus d'émission radiative est connu sous le nom de génération d'harmoniques d'ordre élevé [1].

Il a récemment été remarqué que la radiation VUV émise encode les informations liées au milieu générateur; en effet, le processus de recombinaison à la source de la génération d'harmoniques dépend non seulement du paquet d'onde électronique décrivant le retour de l'électron sur l'ion, mais aussi de la fonction d'onde liée sur laquelle l'électron vient finalement se recombinaison. En d'autres termes, le paquet d'onde électronique vient sonder la structure du milieu générateur, et est à même de révéler les dynamiques électronique et nucléaire se produisant entre l'ionisation et la recombinaison, *i.e.* à l'échelle attoseconde. Cela a conduit à l'émergence de la spectroscopie dite de génération d'harmoniques (voir, e.g., [2,3]). Dans cet objectif, le groupe 'Harmoniques' du CELIA a développé un ensemble d'outils expérimentaux novateurs, inspirés des techniques conventionnelles utilisées en spectroscopie non-linéaire, et a utilisé ces outils pour imager les comportements électronique et nucléaire de systèmes allant de l'atome aux réactions chimiques (voir [4,5] et le site Web <http://harmodyn.celia.u-bordeaux1.fr>). Cependant la complexité et la variété des informations obtenues au cours de ces études rendent leurs interprétations délicates et font émerger de nouvelles interrogations quant à la modélisation du processus de génération.

Objectif de la thèse

Le but de ce projet est de développer des simulations numériques fiables pour la génération d'harmoniques permettant de décrire correctement les observations expérimentales. Nous nous attacherons à développer un modèle versatile, qui puisse être employé dans des contextes aussi différents que les spectroscopies atomique et moléculaire. Nous avons récemment introduit un modèle semi-classique qui a été employé avec succès dans le cas atomique [6,7]; ce modèle servira de base au développement d'approches plus élaborées. Des simulations semi-classiques de dynamique moléculaire seront aussi entreprises dès lors que l'on s'intéressera à des processus de réaction moléculaire photo-induits. En définitive, ce travail théorique, en lien étroit avec l'expérience, devrait permettre une meilleure compréhension des propriétés fondamentales des électrons et noyaux au sein de la matière.

Environnement de travail et directeurs de thèse

La thèse s'effectuera dans le cadre de la collaboration entre le CELIA (Centre Lasers Intenses et Applications) et l'ISM (Institut des Sciences Moléculaires) sous la direction de :

Bernard Pons – CELIA – Université de Bordeaux – 05 40 00 61 80 - pons@celia.u-bordeaux1.fr

Philippe Halvick – ISM – Université de Bordeaux – 05 40 00 83 77 – p.halvick@ism.u-bordeaux1.fr

Financement

Agence Nationale de la Recherche (ANR) – 1450 euros net par mois, pour une durée de 3 ans, débutant de préférence en Septembre ou Octobre 2015.

Compétences requises et candidature

Le candidat, sortant récemment d'un Master 2 de physique ou chimie-physique, devra avoir des connaissances solides en mécanique quantique. Des connaissances de base en théorie des collisions et chimie quantique seront aussi appréciées. Enfin, étant donné que la thèse consistera à coupler descriptions théoriques et simulations numériques, un goût prononcé pour la programmation est requis.

Le candidat devra envoyer par courrier électronique à B. Pons et P. Halvick un CV, une lettre de motivation et un relevé des notes des Master 1 et 2. Le candidat donnera aussi les noms de 2 personnes (ou plus) à contacter pour avis.

Références

[1] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett **71**, 1994 (1993).

[2] J. Itatani *et al.*, Nature **432**, 867 (2004)

[3] S. Hässler *et al.*, Nature Physics **6**, 200 (2010).

[4] Y. Mairesse *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 213601 (2010)

[5] H. Ruf *et al.*, J. Chem. Phys. **137**, 224303 (2012)

[6] F. Cloux *et al.*, Phys. Rev. A **83**, 053401 (2015)

[7] D. Shafir *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 203001 (2012)