

Proposition de thèse : septembre 2016 (36 mois)

Date de la proposition : 15 mars 2015

Responsable / supervisor:	
Nom / name: DOWEK	Prénom/ first name : Danielle
Tél : 33 (0)1 6915 7672	Fax :
Courriel / mail: danielle.dowek@u-psud.fr	
Nom du Laboratoire / laboratory name: Institut des Sciences Moléculaires d'ORSAY (ISMO)	
Code d'identification :UMR 8214	Organisme :CNRS Université Paris-Sud
Site Internet / web site: http://www.ismo.u-psud.fr/	
Adresse / address: ISMO, Bat. 350 Université Paris-Sud, Orsay	
Lieu du stage / internship place: Bat. 350 Université Paris-Sud, Orsay et CEA-Saclay et/ou SOLEIL	

Titre / title: Dynamique ultra-rapide électron-noyaux sondée par photoionisation des molécules
Probing ultrafast electronic and nuclear dynamics in molecules by spectrally and time resolved molecular frame photoelectron angular distributions
Résumé / summary L'irradiation d'une molécule par un rayonnement XUV induit une excitation électronique à l'origine d'un ensemble de réactions incluant l'ionisation (éjection d'un ou de plusieurs électrons dans le continuum), la propagation de paquets d'onde électroniques (migration de charge), ou la mise en mouvement des noyaux (excitation vibrationnelle et rotationnelle, dissociation), qui constituent autant d'étapes intervenant dans la compréhension des mécanismes et le contrôle des réactions chimiques. Les premières étapes qui suivent l'excitation photonique sont ultra-rapides, le temps caractéristique du mouvement électronique se situant typiquement dans la gamme attoseconde (<i>as</i>) à femtoseconde : le réarrangement nucléaire subséquent met lui en jeu des échelles de temps pouvant aller de la dizaine de femtosecondes (<i>fs</i>) à la milliseconde. Dans ce domaine de recherche, la photoionisation (PI) joue un rôle essentiel, soit comme étape première résultant de l'absorption de rayonnement XUV, soit comme sonde de la dynamique gouvernant la relaxation d'un état neutre excité. Le sujet de thèse proposé vise à caractériser au meilleur niveau la dynamique électronique et nucléaire induite par photoexcitation de petites molécules dans un programme expérimental qui réunit deux méthodes très performantes développées sur le campus de Paris-Saclay. D'une part, l'accès à des sources d'impulsions lumineuses XUV ultra-brèves et cohérentes, basées notamment sur le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG) mis en jeu par interaction entre un laser <i>fs</i> IR intense et un gaz par exemple, qui permet la mise en œuvre d'expériences résolues en temps de type « pompe-sonde » à l'échelle sub-femtoseconde (équipex ATTOLAB, lidex OPT2X). D'autre part la spectroscopie d'impulsions en coïncidence électron-ion qui conduit à la mesure du diagramme d'émission des photoélectrons dans le référentiel moléculaire (MFPAD), pour toute orientation de la molécule par rapport à la polarisation du rayonnement : cette observable « complète » donne accès aux modules et aux phases des éléments de matrice dipolaires décrivant la dynamique de PI, pour chaque onde partielle de la fonction d'onde électronique dans le continuum, comme à l'état complet de polarisation du rayonnement ionisant sous la forme des paramètres de Stokes. Cette spectroscopie 3D, qui utilise des techniques avancées de détection sensible en temps et en position, d'acquisition et d'analyse des données multidimensionnelles, est aussi utilisée de façon très complémentaire auprès du rayonnement synchrotron SOLEIL. Le projet de thèse consistera à implémenter le dispositif de spectroscopie d'impulsions en coïncidence électron-ion sur la ligne de lumière FAB-10 de ATTOLAB délivrant des impulsions XUV-HHG ultra-brèves avec un taux de répétition de 10 kHz (800nm, 2mJ, 15 fs) qui entrera en fonctionnement en automne 2016. L'objectif sera de réaliser les premières mesures de MFPADs dans des expériences de PI de petites molécules (O ₂ , NO, NO ₂ ...) résolues en temps (XUV-IR) aux échelles de temps femtoseconde et attoseconde, en vue de caractériser la dynamique de relaxation d'états moléculaires excités bien identifiés, mettant en jeu corrélation électronique et couplages vibroniques. Ce sujet de thèse inclura aussi un travail d'interprétation des expériences, en collaboration étroite avec des groupes de théoriciens.

Financement de thèse envisagé/ financial support for the PhD: Ce projet fait partie du réseau Marie Sklodowska Curie ITN Early Stage Researcher : ASPIRE (Angular studies in innovative research environments) : www.ASPIRE-ITN.eu . Voir annonces jointes au projet (see attached flyer and information).
--