

Sujet de thèse pour la rentrée 2014 (financement : Allocation de Recherche du Ministère)

Laboratoire : MOLTECH-Anjou

Titre du sujet de thèse : Spectroscopie moléculaire de haute sensibilité dans des gaz à effet de serre

Directeur de thèse : Michel Chrysos – michel.chrysos@univ-angers.fr – 02-41-73-54-35

Co-directeur de thèse : Florent Rachet – florent.rachet@univ-angers.fr – 02-41-73-53-60

Présentation du sujet :

Spécialisée dans les interactions moléculaires en milieux dilués, notre équipe est depuis plusieurs années leader sur le plan international pour ce qui est de la détection et de l'interprétation théorique des très faibles signaux lumineux qu'induisent les collisions entre molécules d'un gaz [Phys. Rev. Lett. 84, 2120-2123 (2000), Phys. Rev. Lett. 100, 133007 (2008)]. Ce savoir-faire permet aujourd'hui d'accéder à des propriétés électro-optiques, inaccessibles par d'autres techniques, qui s'avèrent essentielles dans le cas de gaz d'intérêt environnemental d'aussi grande actualité que le CO₂ [J. Chem. Phys. 134, 044318 (2011), J. Chem. Phys. 134, 104310 (2011), J. Chem. Phys. 134, 194305 (2011), J. Chem. Phys. 134, 224301 (2011)] et le SF₆ [J. Chem. Phys. 138, 174308 (2013), J. Chem. Phys. 140, 034308 (2014), J. Chem. Phys. 140, 124308 (2014)]. Sur un plan pratique, nous mettons en évidence des modes de vibration de systèmes moléculaires hautement symétriques au moyen d'un montage de diffusion du rayonnement d'une sensibilité tellement extrême qu'il permet l'analyse de signaux lumineux aussi faibles que quelques photons par semaine, l'équivalent de la lumière que l'on recevrait d'une bougie allumée sur la lune [Phys. Rev. A 61, 062501 (2000)]. Ces modes peuvent parfois relever de bandes qui sont interdites par des mécanismes conventionnels de polarisation. Certains d'entre eux, non-linéaires, ont déjà été révélés expérimentalement par notre équipe [Phys. Rev. A 75, 012707 (2007)], confirmant les prédictions que nous avons émises au moyen d'une théorie diagrammatique dont l'inspiration a été puisée dans le domaine de l'électrodynamique quantique [Phys. Rev. A 74, 012723 (2006)].

C'est dans cette optique que s'inscrit le travail proposé qui portera sur l'étude de molécules à effet de serre, à étudier aussi bien en gaz purs qu'en mélanges avec d'autres gaz. Plus précisément, dans la continuité d'un travail actuellement en cours de finalisation, nous nous proposons d'effectuer une étude exhaustive des modes de vibration du SF₆ et de leurs combinaisons. Au vu de la littérature actuelle, ce domaine apparaît quasi inexploité alors que les enjeux relatifs à ce gaz sont majeurs et d'une grande actualité en raison de l'impact qu'a cette molécule sur l'environnement, son forçage radiatif étant quatre ordres de grandeur supérieur à celui d'une molécule de CO₂. Il est par ailleurs envisagé, dans la continuité d'un travail récent sur les rotateurs linéaires, d'étendre le formalisme que nous avons développé dans le cas du CO₂ au problème de l'absorption infrarouge induite par deux molécules du type toupie symétrique. Une telle étude revêt une grande importance : si le CO₂ est une molécule linéaire dont la linéarité est conservée dans deux de ses modes vibrationnels propres, il en va tout autrement de son mode de fléchissement qui modifie profondément la structure moléculaire ; il en est de même de la molécule d'eau dont la forme coudée exige, en absorption induite, un traitement particulier. Ces molécules étant sur Terre les principaux gaz à effets de serre, il est urgent de calculer de façon exacte les mécanismes de leur spectroscopie induite. La réalisation de ce projet s'appuiera sur l'extensibilité de notre formalisme, qui devrait permettre d'utiliser des matrices de Wigner à la place d'harmoniques sphériques. Ce faisant, nous disposerons d'un outil encore plus performant, destiné au traitement théorique de toute bande d'absorption induite.