

## HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

Date de la soutenance : **21 octobre 2025**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Monsieur LORiot Vincent**

Titre des travaux : « *Dynamiques moléculaires aux échelles de temps courtes* »



### Résumé

Cette HDR retrace les principales avancées en physique moléculaire attoseconde ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ) développées à l'institut Lumière Matière (iLM) au cours de cette dernière décennie. Les impulsions d'extrême Ultra-Violet (XUV) ultracourtes sont créées par génération de hautes harmoniques et permettent d'initier des dynamiques électroniques ultra-rapides dans la matière à un instant bien défini. En effet, l'XUV peut ioniser et la placer les ions moléculaires dans un état excité hors équilibre. D'une part, les dynamiques d'excursions de sortie des électrons ionisés, et d'autre part, l'évolution de la restructuration de l'ion résiduel peuvent alors être observées à travers des schémas 'pompe-sonde'.

La ligne de lumière XUV-attoseconde développée pour les expériences de physique moléculaire résolue en temp est tout d'abord présentée. Cette ligne est injectée par des impulsions de quelques dizaines de femtosecondes ( $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$ ) dans le proche infra-rouge venant d'un laser commercial. La science attoseconde nécessite une caractérisation fine du profil temporel des impulsions et une stabilité sur des dizaines d'heures. Différentes méthodes de métrologie d'impulsion ont été développées afin d'extraire ces propriétés. Pour éviter les limitations liées à la résolution temporelle, un dispositif de post-compression a été développé afin de réduire à moins de deux cycles optiques les impulsions. Ce système est composé d'un capillaire rempli d'un gaz rare et suivi de miroirs chirpés. Ces impulsions deviennent alors sensibles à la CEP (Carrier Envelope Phase) qui peut être stabilisé de manière simple et robuste grâce au développement d'une solution logiciel. Ces impulsions préparées sont injectées dans la ligne de lumière attoseconde composée d'un interféromètre stabilisé où les harmoniques d'ordres élevés sont générées sur l'un des bras afin de produire un train d'impulsions attoseconde. Après recombinaison des deux bras de l'interféromètre, ces impulsions sont focalisées dans la zone d'interaction d'un spectromètre d'électron/ion résolu en angle (Velocity Map Imaging). Le train d'impulsion attoseconde est alors caractérisé par la méthode RABBITT (Reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions) et ses variantes et ce qui fournit les mesures de référence pour l'analyse des expériences de physique moléculaire attoseconde.

La méthode RABBITT est sensible à la phase d'ionisation des électrons. Ces phases sont issues de la diffusion des électrons dans le potentiel ionique parent (lors de leurs excursions de sortie). Suivant l'approche de Wigner, ces phases peuvent semi-classiquement être interprétées comme des retards à l'ionisation. Dans les molécules diatomiques, cette métrologie a permis de mettre en évidence la dynamique d'ionisation à travers une résonance de forme où l'électron est 'capturé' par la barrière de potentiel centrifuge. Dans les molécules de plusieurs dizaines d'atomes, de nombreux canaux d'ionisation sont *a priori* possibles, rendant difficile l'interprétation. Cependant, plus le potentiel moléculaire est étendu, plus les retards à l'ionisation doivent être importants. Cette vision classique est en accord avec les observations dans les molécules où les atomes sont distribués selon les trois dimensions de l'espace. Les molécules planaires ont quant-à-elles leurs atomes distribués selon deux dimensions. Cette forme de potentiel peut être décrite par l'addition d'un terme quadripolaire qui représente la surface de la molécule et modifie significativement la dynamique d'ionisation. Différentes molécules de plusieurs dizaines d'atomes ont alors

été comparées avec la méthode RABBITT démontrant la relation entre la spectroscopie de photoionisation attoseconde et les propriétés du potentiel des molécules 2D.

A l'échelle femtoseconde, l'émission d'un électron venant des couches internes de la bande de valence d'une molécule complexe peut placer l'ion produit dans un état excité hors équilibre impliquant fortement la corrélation électronique. Les processus de relaxation qui en découlent font intervenir une dynamique couplée entre celle des atomes et des électrons (dynamiques Post-Born-Oppenheimer). Une étude systématique a été réalisée sur de nombreux systèmes moléculaire mettant en évidence le rôle central des bandes de corrélation dans le processus de relaxation des molécules de plusieurs dizaines d'atomes.