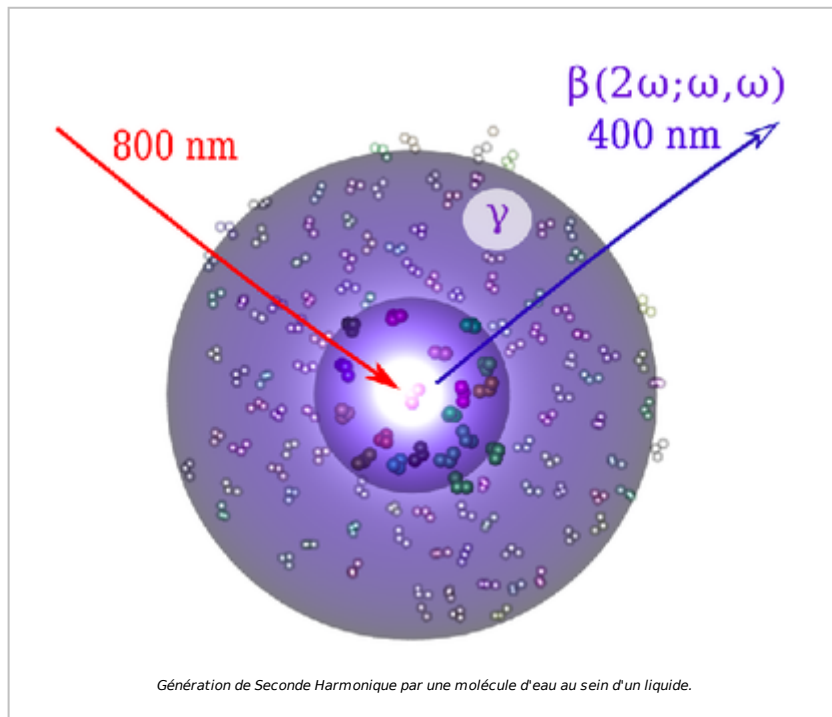


ETUDE DES PROPRIÉTÉS OPTIQUES NON LINEAIRES DE L'EAU SALÉE.

LABORATORY : Institut Lumière Matière
LEVEL : M2
TEAM(S) : THEOCHEM
CONTACT(S) : LOISON Claire
CONTACT(S) DETAILS: claire.loison[at]univ-lyon1.fr / Tel. 0472448314
KEYWORD(S) : Simulations Numériques / Eau liquide / Calculs Quantiques

SCIENTIFIC CONTEXT :

Lorsqu'un milieu matériel est mis en présence d'un champ électrique, une polarisation peut apparaître, et cette réponse du matériau dépend du champ électrique (E). Si ce champ est généré par un laser et est très intense, la polarisation peut avoir des composantes proportionnelles à E^2 ou E^3 : on observe une réponse optique non linéaire. A l'iLM, nos collègues expérimentateurs observent ainsi qu'un échantillon d'eau éclairé par un laser intense rouge peut diffuser de la lumière bleue, avec une intensité proportionnelle à E^2 . Cette transformation



de deux photons à 800 nm en un photon à 400 nm est un phénomène appelé la génération de seconde harmonique. Ces effets peuvent renseigner sur la structure moléculaire de liquides, c'est-à-dire comment les molécules sont agencées au sein du liquide [1]. Nous nous intéressons à l'agencement des molécules d'eau dans l'eau liquide, et comment il est perturbé par l'ajout de sels. Des différences dans les spectres de seconde harmonique sont observées expérimentalement, mais l'interprétation est encore discutée.

L'objectif du stage est d'aider à l'interprétation des signaux expérimentaux grâce à des simulations numériques. Il est possible de prévoir la réponse optique de molécules grâce à des calculs de chimie-physique quantique. Il s'agit de modéliser numériquement la génération de seconde harmonique par l'eau liquide, et d'étudier les effets de la présence de sels.

MISSIONS :

Après une étude bibliographique, l'étudiant.e fera des simulations numériques de la génération de seconde harmonique de molécules d'eau entourées d'eau. La structure du liquide sera connue grâce à des trajectoires de dynamique moléculaire. L'étudiant.e utilisera le logiciel DALTON pour effectuer des calculs de structure électronique basés sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) et la théorie de la réponse linéaire (LR-DFT). Ils permettent d'obtenir la polarisabilité des molécules (réponse optique linéaire), ainsi que leurs premières et secondes hyperpolarisabilités (réponses optiques non linéaires). Les inputs et outputs de DALTON sont générés par un code fait maison (appelé FROG [2]), écrit en python, que l'étudiant devra apprendre à connaître, entre autres grâce à des tutoriels et un wiki. L'analyse des résultats se fera en concertation avec les collaborateurs expérimentateurs au sein de l'ILM. Ce projet s'adresse à des personnes ayant une formation en chimie ou physique quantique, et qui apprécient la simulation numérique (linux) et le codage (python, jupyter notebook).

OUTLOOKS :

Le projet pourra être poursuivi en thèse si une bourse de l'école doctorale est obtenue.

BIBLIOGRAPHY :

[1] "Second-Harmonic Scattering as a Probe of Structural Correlations in Liquids", G. Tocci, et al. J. Phys. Chem. Lett. 2016, 7, 21, 4311–4316

[2] "Liquid Water: When Hyperpolarizability Fluctuations Boost and Reshape the Second Harmonic Scattering Intensities ". Guillaume Le Breton, Oriane Bonhomme, Emmanuel Benichou, Claire Loison. Journal of Physical Chemistry Letters, vol.14, p. 4158-4163 (2023)