



Université Claude Bernard



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **26 septembre 2022**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Madame BOYER Alexie**

Titre de la thèse : « *Dynamiques attoseconde et femtoseconde induites par ionisation XUV ultrarapide dans les molécules neutres et les ions biomoléculaires complexes* »



Résumé

Le phénomène d'ionisation, décrit par la perte d'un électron dans la matière, est un processus physique particulièrement important dans la nature. Au-delà de la production d'un électron libre, que ce soit par réaction d'oxydation ou par absorption de particules ou rayonnements énergétiques, l'ionisation est suivie par une redistribution énergétique qui mène à des réarrangements structuraux. Dans le domaine de l'astrophysique, ces derniers sont responsables de l'abondance et de la variété moléculaire du milieu interstellaire. En biologie, ce sont les transferts de charges initiés par les réactions d'oxydation qui donnent lieu à la fonction biologique.

Les conséquences de l'ionisation peuvent survenir à des échelles de temps longues, voire astronomiques dans le cas du milieu interstellaire. L'ionisation en elle-même a pourtant lieu à des échelles de temps attosecondes (10^{-18} secondes) et les premières étapes de la relaxation énergétique ont lieu en quelques dizaines ou centaines de femtosecondes (10^{-15} secondes). Étudier les dynamiques d'ionisation, de l'éjection de l'électron jusqu'à la redistribution énergétique, est donc nécessaire pour décrire ces processus intrinsèquement non stationnaires. Le récent développement des technologies ultrarapides XUV (de l'anglais *eXtreme Ultra Violet*) a permis d'obtenir les outils expérimentaux permettant l'étude en temps réel de dynamiques électroniques et nucléaires dans des atomes ou des molécules. Développées dans un premier temps pour l'étude de systèmes atomiques, diatomiques ou triatomiques, les expériences de dynamiques XUV ont récemment été étendues à des systèmes plus complexes tels que des acides aminés. Ces résultats ont mis en évidence les effets de la corrélation électronique, particulièrement importante dans des molécules impliquant un grand nombre d'électrons.

L'étude du rôle de la corrélation électronique constitue un enjeu majeur du domaine de l'atmosphère, dont le but ultime est de contrôler la réactivité de molécules à l'échelle de temps du mouvement électronique. Un des axes de développement de l'atmosphère est la recherche de modèles généraux permettant de décrire les processus dynamiques induits dans les molécules hautement excitées pour lesquelles les effets à N-corps sont importants. Au-delà de l'aspect fondamental de ces études, l'ouverture des expériences XUV aux molécules complexes permettrait de connecter l'atmosphère à des domaines tels que la biologie, qui nécessitent un saut technologique important afin d'étudier des molécules aussi complexes que des protéines.

Dans cette thèse, nous poussons la complexité des systèmes étudiés dans le cadre de l'étude du processus d'ionisation mais également des premières étapes de relaxation énergétique. La première partie de cette thèse traite du processus d'ionisation. Les études ont été menées sur des structures carbonées de dizaines d'atomes. Nos résultats mettent en avant l'importance de la dimension moléculaire et montrent, pour la première fois, que les expériences attosecondes permettent d'accéder à une nouvelle propriété de la matière : la taille de la lacune électronique, avec une précision de l'angström. La deuxième partie de cette thèse se focalise sur les dynamiques de relaxation étudiées pour des structures carbonées allant jusqu'à une soixantaine d'atomes. Nos études mettent en évidence l'effet de la corrélation électronique et permettent d'extraire des modèles généraux pour la

compréhension des dynamiques électroniques et vibrationnelles de systèmes hautement excités. La dernière partie de cette thèse pousse le développement des expériences XUV vers de nouveaux domaines tels que la biologie. Pour cela, nous avons développé un nouveau dispositif expérimental qui permet pour la première fois d'étudier les dynamiques ultrarapides faisant suite à l'ionisation de protéines. Nos résultats ouvrent de nouvelles possibilités quant au développement des sciences ultrarapides XUV vers l'attochimie.

Mots clefs : dynamique ultrarapide ; attoseconde ; protéines ; temps d'ionisation ; structures carbonées ; impulsions XUV