

Étude des effets isotopiques (phosphine, éthylène) et contributions aux méthodes de calcul pour les systèmes non-rigides à partir de surfaces ab initio.

Dominika Viglaska

La soutenance de thèse aura lieu le lundi 4 novembre à 10h en Amphi 4, Campus Moulin de la Housse.

Résumé

Dans ce travail, nous avons l'intention d'une part d'étudier les effets isotopiques dans les spectres infrarouges de la phosphine et de l'éthylène et d'autre part de contribuer au développement d'un modèle théorique pour les molécules non-rigides. La finalité de ce travail est la construction de listes spectroscopiques complètes en lien avec les applications planétologiques et astrophysiques à partir de calculs variationnels.

La première partie de ce travail de thèse concerne l'étude des 2 espèces deutérées de la molécule de phosphine et des 10 espèces isotopiques de l'éthylène enrichies par ^{13}C et/ou D , le tout à partir de surfaces ab initio. Pour cela, nous avons utilisé une procédure systématique permettant de propager l'information de l'isotope principal vers des espèces moins abondantes à partir de considérations de symétrie et de transformations entre les coordonnées normales. Finalement, les spectres infrarouges ont été modélisés et confrontés aux données observées.

La deuxième partie de ce travail porte sur l'étude des molécules non-rigides présentant un ou plusieurs mouvements de large amplitude. Dans ce contexte, nous sommes partis du formalisme proposé par Hougen, Bunker et Johns. Afin de pouvoir réutiliser une grande partie des outils déjà existants, nous avons choisi une formulation algébrique du problème.

Ce modèle a d'abord été validé sur des molécules rigides connues pour lesquelles nous avons des calculs de référence. Concernant les systèmes non-rigides, des résultats préliminaires ont été obtenus pour les molécules d'ammoniac et d'éthane. De manière plus générale, ce travail offre également des solutions concrètes à des problèmes allant au-delà de l'approche HBJ en proposant différentes méthodes de calcul de la matrice de rotation permettant de tourner le repère afin de minimiser le couplage entre la rotation et les mouvements de grande amplitude.