
Etude théorique du désordre dans des ensembles moléculaires fortement couplés à un champ de cavité

DIRECTEUR DE THESE : GUILLAUME WEICK

INSTITUT DE PHYSIQUE ET CHIMIE DES MATERIAUX DE STRASBOURG, 23 RUE DU LOESS,
BP 43, -67034 STRASBOURG CEDEX 2

TEL : 03 88 10 72 62 ; E-MAIL : GUILLAUME.WEICK@IPCMS.UNISTRA.FR

Depuis la naissance de l'électrodynamique quantique en cavité dans les années 1980, le régime de couplage fort lumière-matière a été intensivement étudié. Ce régime est atteint lorsqu'une excitation dipolaire et un mode du champ électromagnétique confiné dans une cavité peuvent échanger de l'énergie, cette dernière se dissipant alors dans l'environnement. Au cours de la dernière décennie, des expériences pionnières (notamment menées à Strasbourg dans le groupe de T.W. Ebbesen et C. Genet) ont démontré une modification des propriétés fondamentales de la matière telles que la réactivité chimique et les propriétés de transport en régime de couplage fort lumière-matière [1]. Cependant, les mécanismes sous-jacents restent encore méconnus, et il est par conséquent primordial de mener des travaux théoriques en lien avec les expériences pour élucider ces phénomènes.

Pour N émetteurs quantiques couplés à un mode du champ du vide, deux états polaritoniques séparés par un splitting de Rabi collectif se forment, tandis que $N-1$ états noirs à l'énergie de la transition excitonique nue ne sont pas affectés par le couplage lumière-matière. Dans cette mesure, une question importante à laquelle se confronte actuellement la communauté scientifique est comment ces deux seuls états collectifs peuvent-ils influencer les propriétés individuelles à l'échelle d'une molécule comme la réactivité chimique ou les propriétés de transport ?

Récemment, le directeur (G. Weick, IPCMS) ainsi que le co-encadrant (D. Hagenmüller, CESQ) de cette thèse ont montré que le désordre pouvait conduire à un couplage effectif des états noirs au champ électromagnétique, ce qui implique qu'un nombre extensif d'états sont affectés par le couplage fort lumière-matière en présence de désordre [2,3].

L'objectif de la thèse est donc d'étudier les effets du désordre dans des ensembles moléculaires en régime de couplage fort lumière-matière, et d'évaluer dans quelle mesure ces effets pourraient expliquer la modification de la cinétique chimique observée dans des ensembles contenant un très grand nombre de molécules. Un premier objectif sera de modéliser le couplage fort d'un ensemble moléculaire désordonné à un champ de cavité dans l'approximation où les états vibrationnels sont décrits par un terme de déphasage effectif. L'étudiant pourra alors utiliser une approche analytique afin d'étudier une réaction simple de transfert de charge incluant les effets du désordre et du couplage fort. D'autres types de réactions chimiques comme la photo-isomérisation, particulièrement pertinente pour la chimie polaritonique, seront étudiées dans un deuxième temps. Une approche numérique sera utilisée pour étudier les propriétés des états noirs en présence de couplage vibrationnel. La cinétique chimique en présence de couplage fort vibrationnel pourra également être étudiée au cours de la thèse. Ce travail théorique sera mené en étroite collaboration avec le groupe expérimental de T.W. Ebbesen et C. Genet.

[1] F. Garcia-Vidal, C. Ciuti, and T.W. Ebbesen, *Science* **373**, eabd0336 (2021)

[2] T. Botzung, D. Hagenmüller, *et al.*, *Phys. Rev. B* **102**, 144202 (2020)

[3] T.F. Allard and G. Weick, *Phys. Rev. B* **106**, 245424 (2022)