

CRISTALLOGRAPHIE QUANTIQUE DANS L'ESPACE DES PHASES

QUANTUM CRYSTALLOGRAPHY IN PHASE SPACE

Etablissement **Université Paris-Saclay GS Sciences de l'ingénierie et des systèmes**

École doctorale **Interfaces : matériaux, systèmes, usages**

Spécialité **Physique**

Unité de recherche **[UMR 8580] Laboratoire Structures, Propriétés, Modélisation des Solides**

Encadrement de la thèse **Jean-Michel GILLET**

Financement du 01-09-2025 au 01-09-2028

Début de la thèse le **1 octobre 2025**

Date limite de candidature (à 23h59) **15 mai 2025**

Mots clés - Keywords

physique quantique, chimie quantique, diffraction RX, neutrons et électrons, Diffusion Compton, Fonction d'onde électronique
quantum physics, quantum chemistry, X-ray, neutron and electron diffraction, Compton scattering, electron wave-function

Description de la problématique de recherche - Project description

Depuis une petite décennie, notre groupe a développé une expertise dans la détermination de grandeurs alternatives à la fonction d'onde à N-électrons à partir d'une combinaison de données expérimentales. Il s'agit principalement de la matrice densité réduite à 1 électron ou de sa fonction de Wigner associée.

Cette dernière grandeur est une porte d'entrée unique de la physique quantique dans l'espace des phases, celui développé par Hamilton à la fin du XIX^{ème} siècle et exploité largement dans le cadre de la physique statistique classique. Les indéterminations de Heisenberg ont, jusqu'ici, restreint la plupart des études à ne considérer que l'espace des positions ou (plus rarement) que l'espace des impulsions.

Il est maintenant possible d'approcher de plus en plus précisément le comportement des électrons d'un cristal dans cet espace des phases par une modélisation globale d'un ensemble de résultats expérimentaux issus de mesures de diffraction de rayons X, d'électrons (CBED), ou de neutrons polarisés (dans le cas d'un système magnétique de spin) et de la diffusion inélastique incohérente (diffusion Compton). La but de cette thèse est d'aller au delà de la preuve de concept en trouvant les méthodes les plus efficaces de modélisation mais aussi de combinaison des données expérimentales pour permettre une meilleure comparaison de l'observation expérimentale avec les résultats de calculs ab initio dans leur description de l'espace des phases.

Over the last decade, our group has developed expertise in determining alternative quantities to the N-electron wave function from a combination of experimental data. This mainly involves the 1-electron reduced density matrix or its associated Wigner function.

This latter quantity is a unique gateway to quantum physics in phase space, which Hamilton developed at the end of the 19th century and widely exploited in classical statistical physics. Until now, Heisenberg's indeterminacies have restricted most studies to considering only the space of positions or (more rarely) the space of momenta.

It is now possible to approach the behaviour of electrons in a crystal in this phase space more and more precisely by global modelling of a set of experimental results from X-ray diffraction, electron diffraction (CBED), polarised neutron diffraction (in the case of a spin magnetic system) and incoherent inelastic scattering (Compton scattering). This thesis aims to go beyond the proof of concept by finding the most efficient methods for modelling and combining experimental data to better compare experimental observation with the results of ab initio calculations in their description of the phase space.

Thématique / Domaine / Contexte

cristallographie quantique

physique et chimie quantique

L'espace des phases a souvent été vu de manière partielle par la physique quantique. On se contente généralement d'une représentation 'positions' ou d'une représentation 'impulsions'. Ceci provient sans doute de la perception restrictive que peuvent apporter les indéterminations de Heisenberg. Il est toutefois possible de développer une physique quantique de l'espace des phases qui a pour mérite d'inclure les effets statistiques et, d'éventuellement, ramener la description à celle d'un' électron moyen'.

Objectifs

Améliorer l'exploitation des données expérimentales disponibles pour une meilleure description dans l'espace des phases des électrons d'un cristal

Méthode

Nous avons développé une méthode de construction de matrice densité (donc de fonction de Wigner) réduite à un électron qui s'appuie sur une formulation d'optimisation convexe (originellement de programmation semi-définie positive) qui s'est révélée efficace dans le cas de données artificielles. Le but est maintenant d'étendre la méthode de manière plus systématique à de véritables données expérimentales en tenant compte de leur spécificités, des erreurs et incertitudes qui leur sont attachées.

Résultats attendus - Expected results

Nos ambitionnons de proposer une méthode générique efficace, s'appuyant sur un ensemble de données de diffusion de rayonnement X, neutroniques et/ou électroniques, pour offrir une description fidèle des électrons dans l'espace des phases et permettant ainsi de mieux tester la pertinence des méthodes de calculs ab initio.

Références bibliographiques

Wigner, E. (1932). *Physical Review*, 40(5), 749–759
Yan, Z., Kibalin, I. A., Claiser, N., Gueddida, S., Gillon, B., Gukasov, A., Voufack, A. B., Morini, F., Sakurai, Y., Brancewicz, M., Itou, M., Itoh, M., Tsuji, N., Ito, M., Souhassou, M., Lecomte, C.,
Cortona, P. & Gillet, J.-M. (2017). *Physical Review B*, 96(5), 054427.
Voufack, A. B., Kibalin, I., Yan, Z., Claiser, N., Gueddida, S., Gillon, B., Porcher, F., Gukasov, A.,
Sugimoto, K., Lecomte, C., Dahaoui, S., Gillet, J.-M. & Souhassou, M. (2019). *IUCrJ*, 6(5), 884–894.
De Bruyne, B. & Gillet, J.-M. (2020). *Acta Crystallographica Section A Foundations and Advances*, 76(1), 1–6
Launay, Y. & Gillet, J.-M. (2021). *Acta Crystallographica Section B Structural Science, Crystal Engineering and Materials*, 77(5), 683–694
Yu, S. & Gillet, J.-M. (2024). *Acta Crystallographica Section A Foundations and Advances*, 80(3), 249–257

Précisions sur l'encadrement - Details on the thesis supervision

Le candidat thésitif sera encadré par JM Gillet au laboratoire SPMS de CentraleSupélec

Conditions scientifiques matérielles et financières du projet de recherche

Le doctorant sera accueilli au sein du laboratoire SPMS. Aucun travail expérimental sur place n'est prévu. Les expériences éventuelles sont faites en collaborations avec nos collègues sur grands instruments

Ouverture Internationale

Monash (Australie), SPring8 (Japon) sont parmi les partenaires les plus récents.

Objectifs de valorisation des travaux de recherche du doctorant : diffusion, publication et confidentialité, droit à la propriété intellectuelle,...

Tous les travaux devront faire l'objet de communications dans les congrès et revues spécialisées.

Collaborations envisagées

Polytechnico di Milan

Complément sur le sujet

https://youtu.be/Lv62jVrREhk?list=PL6tCc_5S5a5NYWWKsnwvdegdYCs8raZoq (https://youtu.be/Lv62jVrREhk?list=PL6tCc_5S5a5NYWWKsnwvdegdYCs8raZoq)

Profil et compétences recherchées - Profile and skills required

La/le candidat(e) aura une réelle familiarité avec les concepts de base et le formalisme mathématique de la physique quantique. Des notions de chimie quantique seraient appréciées mais peuvent aussi être acquises au cours de la thèse.

Il est important d'avoir du goût pour le codage informatique pour pouvoir relier efficacement modélisation et données expérimentales. Le sens de la communication et du partage sont indispensables.

The candidate will have a real familiarity with the basic concepts and mathematical formalism of quantum physics. A knowledge of quantum chemistry would be appreciated, but can also be acquired during the thesis work.

It is important to have a taste for computer coding in order to be able to effectively link modelling and experimental data.

A sense of communication and sharing are essential.

Dernière mise à jour le 12 septembre 2024