

SPECTROSCOPIE XUV MULTIDIMENSIONNELLE DE PAQUETS D'ONDES DE RYDBERG

Samuel Beaulieu^{a,b}, Étienne Bloch^a, Romain Généaux^c, Stéphane Petit^a, Dominique Descamps^a, François Légaré^b, Thierry Ruchon^c, Yann Mairesse^a

^a CELIA, Université de Bordeaux, CNRS, CEA, UMR 5107, 351 Cours de la Libération, 33400 Talence France

^b INRS-EMT, 1650 Boulevard Lionel-Boulet, J3X 1P7, Varennes, Québec, Canada

^c Lidyl, CEA Saclay, 91191 Gif-Sur-Yvette Cedex, France

E-mail: beaulieus@emt.inrs.ca ; yann.mairesse@celia.u-bordeaux.fr

Le concept de la décroissance libre de l'induction (Free Induction Decay, FID) a été introduit dans le domaine de la Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) dans le milieu des années 40 [1]. Dans ce contexte, le FID est le signal RMN (radio-fréquence) qui est émis par un ensemble de spin nucléaire hors-équilibre dont la magnétisation précède autour du champ magnétique. Dans les années 70, le concept du FID a été étendu au domaine spectral de l'infrarouge et du visible [2] pour l'étude de paquets d'ondes vibrationnels. Grâce au récent développement de la science attoseconde XUV, le concept du FID est maintenant applicable à l'étude de paquet d'ondes électroniques, à l'aide d'expériences de Spectroscopie d'Absorption Transitoire Attoseconde (SATA). Lors d'une expérience SATA, les atomes ou les molécules absorbent de la radiation XUV, créant ainsi une superposition cohérente d'états électroniques excités. Ce paquet d'ondes peut alors radiativement relaxer vers l'état fondamental en émettant un photon XUV, dans un processus appelé xFID. Cette décroissance radiative peut être modifiée par l'interaction avec une impulsion femtoseconde infrarouge décalée temporellement. Cette impulsion peut directement ioniser les états excités vers le continuum ou induire un transfert de population entre les différents états électroniques adjacents via un couplage radiatif. Dans une expérience SATA, l'observable est l'interférence entre l'émission/absorption des atomes/molécules et le spectre XUV de la pompe en fonction du délai pompe-sonde. SATA est une technique tout-optique extrêmement puissante qui permet la mesure de transfert de population cohérente entre différents états [3], le déplacement énergétiques des niveaux électroniques [4] et le contrôle de la forme des raies spectrales par laser [5], par exemple. Par contre, le principal désavantage de cette technique expérimentale est le faible rapport signal sur bruit en raison du large bruit que représente intrinsèquement le spectre excitateur.

Dans ces travaux, nous résolvons problème du bruit de fond commun à tous expériences SATA en utilisant l'absorption multiphotonique pour induire le xFID. L'absorption de photons (5 x 400 nm) peuple une superposition cohérente d'états de Rydberg (Ar, N₂), qui par la suite, relaxe de façon radiative en émettant des photons XUV. Nous avons démontré que cette émission est collimatée, cohérente et correspond à un mécanisme de xFID via des états de Rydberg. En utilisant une impulsion IR décalée temporellement pour perturber l'émission xFID, nous avons résolu la dynamique picoseconde de la décroissance du paquet d'onde, le transfert de population cohérente entre états de Rydberg (période de quelques femtosecondes) et le dédoublement énergétiques asymétriques des états de Rydberg induit par le couplage radiatif.

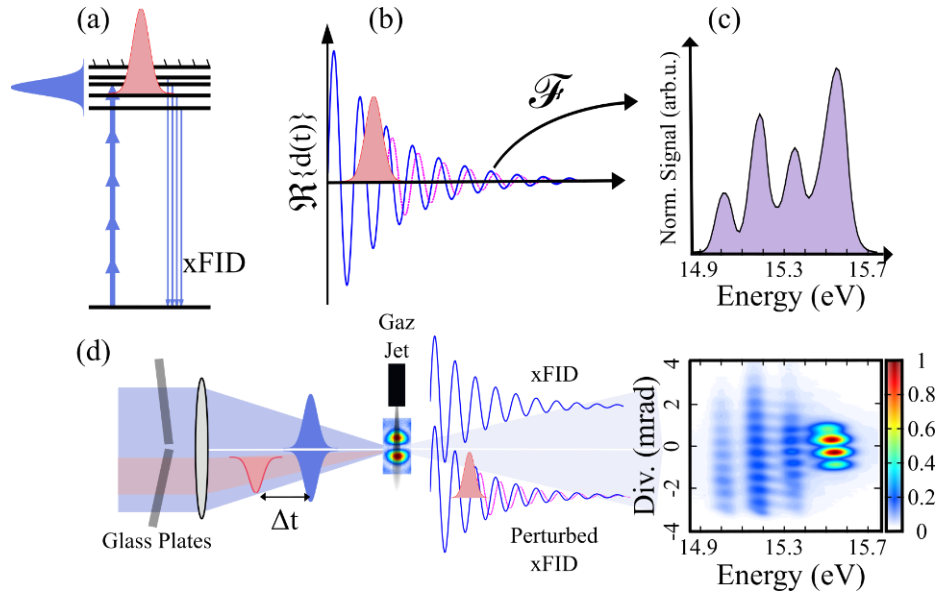


Figure 1 : Schéma de l'expérience. En (a) : l'absorption multiphotonique (5x400nm) crée un paquet d'ondes de Rydberg. Ce paquet d'onde de Rydberg relaxe vers l'état fondamental en émettant un photon XUV (XUV Free Induction Decay- xFID). Une impulsion IR décalée temporellement perturbe l'émission xFID. En (b) : Schéma de la partie réel du dipôle associé au paquet d'ondes de Rydberg. En (c) : Transformée de Fourier du dipôle, correspondant au spectre du paquet d'onde de Rydberg. En (d) : Schéma de l'expérience d'interférométrie à deux sources, permettant la mesure simultanée de l'amplitude et la phase de l'émission xFID du paquet d'onde de Rydberg à l'aide d'une méthode hétérodyne.

De plus, en utilisant la technique hétérodyne d'interférométrie à deux sources [6], nous avons pu mesurer la dépendance temporelle et la dépendance en intensité de la phase induite de l'impulsion IR sur le xFID des différents états de Rydberg. Nous avons démontré que la phase induite augmente très rapidement avec l'intensité du champ IR. Cette phase induite sature et oscille autour de 2π à plus grande intensité. En conclusion, nous avons démontré une nouvelle technique spectroscopique multidimensionnelle tout-optique, sans bruit de fond, qui offre la possibilité d'étudier le xFID des paquets d'ondes de Rydberg atomiques et moléculaires. Cette technique offre aussi la possibilité d'utiliser des méthodes de mesures de phase développées en spectroscopie de génération d'harmoniques, offrant une caractérisation complète de l'émission xFID.

Remerciements. Ce travail a été subventionné par l'Union Européenne (LASERLAB-EUROPE II 228334 and LASERLAB-EUROPE 284464), la French National Agency (ANR MISFITS) et l'IdEx Bordeaux LAPHIA (ANR-10IDEX-03-02). Samuel Beaulieu remercie le CRSNG pour la bourse Vanier.

- [1] F. Bloch, Physical Review **70**, 460 (1946).
- [2] R. G. Brewer and R. L. Shoemaker, Phys. Rev. A **6**, 2001 (1972).
- [3] A.R. Beck *et al.*, New Journal of Physics **16**, 113016 (2014).
- [4] S. Chen *et al.*, Phys. Rev. A **88**, 033409 (2013).
- [5] C. Ott *et al.*, Science **340**, 716 (2013).
- [6] M. Bellini *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 297 (1998).