

Vers l'observation de dynamiques de charge ultrarapides dans les molécules à l'aide d'impulsions sub-fs et fs, UVX et rayons X.

T. R. Barillot¹, P. Matia-Hernando¹, A. Sanchez-Gonzalez¹, B. Cooper¹, D. Fabris¹, D. Walke¹, D. Greening¹, T. Witting¹, V. Averbukh¹, L.J. Frasinski¹, J.W. Tisch¹ and J. P. Marangos¹.

¹QOLS group, Blackett Laboratory, Imperial College London, London SW7 2AZ, UK

Les dynamiques de charge à l'échelle attoseconde jusqu'à femtoseconde suivies des mécanismes de couplage non adiabatique (électrons-noyaux) constituent les premières étapes de la dynamique moléculaire. Dans ce contexte, l'ionisation d'un système à l'aide de photons d'énergie élevée peut donner naissance à une dynamique de charge positive (trou) à l'échelle de la femtoseconde dans la molécule par l'intermédiaire de la corrélation électronique. Nos travaux s'intéressent à la mise en évidence de cette dynamique de charge corrélée en temps réel.

Notre première approche consiste à utiliser un dispositif pompe-sonde polyvalent: IR (800 nm, 3.5 fs) - UVV (17-20 eV, 700 as) ou UVV - UVX (90 eV, 250 as) [1] pour mesurer l'évolution du signal d'ions et/ou d'électrons produits par l'interaction de la molécule avec le rayonnement en fonction du temps (figure 1).

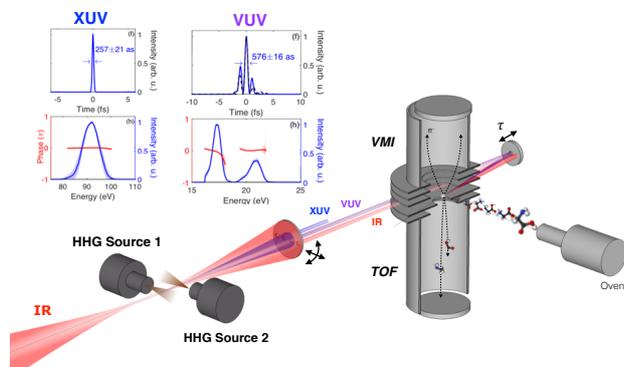


Fig. 1: Dispositif pompe-sonde UVX-UVV.

Je présenterai dans un premier temps les résultats que nous avons obtenu pour la molécule isopropanol dans le régime pompe-sonde IR-UVV. Par ailleurs, je discuterai de la possibilité d'effectuer une expérience pompe-sonde UVV-UVX dans des molécules organiques à l'aide d'un système laser femtoseconde et kHz, le prérequis pour une telle expérience étant une intensité UVX suffisante pour l'apparition de processus multiphotoniques. Nous avons effectué une mesure du signal de photoionisation de l'atome d'hélium en fonction de l'intensité UVV. Les résultats présentent une divergence entre le signal de He⁺ et le signal H₂O⁺ pris comme référence (figure 2) et interprétée

comme la signature d'un processus d'ionisation à deux photons par l'intermédiaire d'un état de Rydberg.

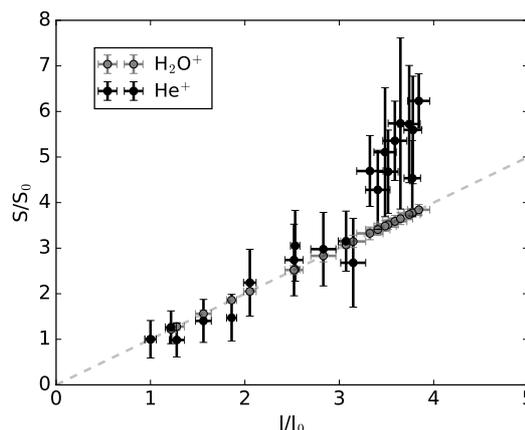


Fig. 2: Evolution des signaux H₂O⁺ (gris) et He⁺ (noir) en fonction de l'intensité UVV.

Je terminerai par une présentation des avancées effectuées sur les lasers à électrons libres et notamment sur l'instrument LCLS qui permettent maintenant de produire des impulsions de quelques femtosecondes dans le domaine des rayons X. Ces sources ouvrent de nouvelles perspectives d'étude de dynamiques électroniques aux temps ultracourts [2, 3] en parallèle du développement des sources UVX conventionnelles.

Références

- [1] Fabris D. et al., *Nature Photonics*, **9**, 383 (2015).
- [2] Cooper B. et al., *Faraday Discussion*, **171**, 93 (2014)
- [3] Sanchez-Gonzalez A., Barillot T.R. et al., *J. Phys. B*, **48**, 234004 (2015)