

SFP 2011-0

Photo-excitation à 400 nm de la molécule de NO₂ sondée par génération d'harmoniques d'ordre élevé

H. Ruf, C. Handschin, E. Constant, B. Fabre, J. Higuët, E. Mevel, Y. Mairesse (1)

R. Cireasa, N. Thiré, V. Blanchet (2)

H. Worner, J.B. Bertrand, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum (3)

1. Centre Lasers Intenses et Applications, Université Bordeaux1, UMR5107 (CNRS, Université Bordeaux1, CEA)

2. Laboratoire Collisions Agrégats Réactivité, UMR 5589 (CNRS), Université Paul Sabatier Toulouse III

3. Steacie Institute of Molecular Science, Ottawa Canada, (NRC)

La génération d'harmoniques d'ordre élevé dans des molécules en phase gazeuse est un outil puissant pour sonder leur structure ainsi que leur dynamique. Plusieurs études ont déjà montré que la génération d'harmoniques d'ordre élevé était sensible à la géométrie des orbitales de valence [1] ou à la structure électronique du milieu de génération ([2]). Nous avons utilisé ici cette dernière afin d'étudier la dynamique électronique de la molécule de dioxyde d'azote lors d'une excitation à 400 nm.

Le dioxyde d'azote possède l'avantage de présenter une spectroscopie particulièrement riche tout en conservant une géométrie relativement simple avec un faible nombre de degrés de liberté (angle O-N-O et distance ON-O). Nous avons étudié la transition de l'état fondamental $X^2 A_1$ vers l'état excité $A^2 B_2$ par une photo-excitation proche de 400 nm. Il a été montré que cette transition pouvait mener à un canal de dissociation, pour des photons de longueur d'onde inférieure à 397,9 nm ([3]). Par ailleurs, ces deux états électroniques possèdent des surfaces de potentiel présentant une intersection conique pour une valeur d'angle O-N-O de 108°, avec un croisement évité. Ces géométries de surfaces vont induire des dynamiques femtosecondes particulières lors de l'excitation, que nous parvenons à percevoir avec le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Pour cela, nous avons mis en place un dispositif expérimental permettant de réaliser des expériences pompe-sonde, avec pour pompe une impulsion à 400 nm et pour sonde la génération d'harmoniques d'ordre élevé. En raison de la faible efficacité d'excitation du NO₂, nous avons utilisé la technique de réseau transitoire d'excitation moléculaire [4], permettant d'augmenter la contribution au signal harmonique des molécules excitées.

En étudiant le signal harmonique émis par les molécules excitées de NO₂ en fonction du délai pompe-sonde, nous parvenons ainsi à remonter aux dynamiques électroniques de la molécule. Nous avons réussi à observer l'existence d'oscillations du paquet d'onde électronique autour du croisement évité. De même, en jouant sur la longueur d'onde de l'impulsion pompe, nous parvenons à distinguer après excitation une situation de dissociation ou non.

Références

- [1] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pépin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve, *Nature (London)* 432, 867 (2004).
- [2] S. Haessler, B. Fabre, J. Higuët, J. Caillat, T. Ruchon, P. Breger, B. Carré, E. Constant, A. Maquet, E. Mével, P. Salières, R. Taïeb, and Y. Mairesse, *PHYSICAL REVIEW A* 80, 011404R (2009)
- [3] S. I. Ionov, G. A. Brucker, C. Jaques, Y. Chen & C. Wittig, *J. Chem. Phys.*, vol. 99, page 3420, 1993.
- [4] Y. Mairesse, D. Zeidler, N. Dudovich, M. Spanner, J. Levesque, D. M. Villeneuve, & P. B. Corkum. High-Order Harmonic Transient Grating Spectroscopy in a Molecular Jet. *Phys. Rev. Lett.*, 100, 143903 (2008)