



## Soutenance de thèse

**Sonia MARGGI POUILLAIN**

*Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay (ISMO), Orsay*

### **“Rôle des états de Rydberg dans la dynamique de photoionisation et de formation de paires d’ions ( $\text{NO}^+$ , $\text{O}^-$ ) de la molécule $\text{NO}_2$ : photoémission induite par rayonnement synchrotron et impulsions lasers femtosecondes”**

L'étude comparée des réactions de formation de paires d'ions et de simple photoionisation de la molécule  $\text{NO}_2$  induites par rayonnement synchrotron (RS) d'une part et par impulsions laser femtosecondes (fs) d'autre part, démontre le rôle remarquable de l'excitation résonante d'états de Rydberg dans la dynamique électronique et nucléaire induite. Trois réactions principales, la photoionisation non dissociative ( $\text{NO}_2^+ (X^1\Sigma_g^+) + e$ ), la photoionisation dissociative ( $\text{NO}^+ (X^1\Sigma^+) + \text{O} (^3\text{P}) + e$ ) et la formation de paires d'ions, ( $\text{NO}^+ (X^1\Sigma^+) + \text{O}^- (^2\text{P})$ ), ont été caractérisées en utilisant la méthode des corrélations vectorielles ou spectroscopie en coïncidence des impulsions du photoélectron et des photoions, auprès des sources RS (SOLEIL, DESIRS) et lasers fs (CEA, Saclay), respectivement. Le diagramme de corrélation des énergies cinétiques électron-ion, première observable issue de ces mesures, met en évidence un partage de l'énergie en excès entre noyaux et électrons qui dépend fortement du mode d'excitation photonique. Les déviations significatives observées par rapport aux profils d'ionisation de type Franck Condon sont attribuées à des couplages vibroniques entre états excités  $\text{NO}_2^*$ , tels que ceux induits par une intersection conique. Les chemins réactionnels identifiés confirment le rôle de l'excitation des séries de Rydberg [ $\text{R}^*(6a_1)^{-1}$ ] et [ $\text{R}^*(4b_2)^{-1}$ ] intervenant comme états intermédiaires dans l'excitation multiphotonique ou dans le continuum d'ionisation exploré. Une étude complémentaire par spectroscopie à haute résolution des états [ $\text{R}^*(6a_1)^{-1}$ ] a été mise en œuvre (UBC, Vancouver).

Pour une réaction de photoionisation dissociative (PID), l'observable la plus complète est la distribution angulaire des photoélectrons dans le référentiel lié à la vitesse de recul de l'ion fragment (RFPAD) déduite de la mesure de la corrélation vectorielle ( $\mathbf{V}_i$ ,  $\mathbf{V}_e$ ,  $\mathbf{P}$ ). Afin d'accéder aux éléments de matrice dipolaire décrivant la photoionisation de l'état électronique considéré, le formalisme développé en collaboration avec R. R. Lucchese (Texas A&M) décrivant la photoémission dans le référentiel moléculaire pour la simple PID d'une molécule linéaire par excitation à un photon, a été étendu à l'étude des réactions de PID par excitation multiphotonique d'une molécule polyatomique, telle que la molécule  $\text{NO}_2$  de symétrie  $\text{C}_{2v}$ . L'analyse multivariée de la RFPAD multiphotonique proposée constitue une stratégie fructueuse en vue d'extraire l'information optimale sur la dynamique complexe de photoionisation et de réaliser une comparaison détaillée entre les résultats expérimentaux et les calculs de photoionisation des états excités de la molécule.

**Mardi 14 janvier 2014 à 14h30**

**Bât 351 – 2<sup>ème</sup> étage (Bibliothèque)**

**Université Paris-Sud, 91405 Orsay Cedex**

*La soutenance sera suivie d'un pot auquel vous êtes chaleureusement conviés.*