

## Un outil performant pour la spectroscopie VUV (et les agrégats de gaz rare) : un laser à 125 nm de $\sim 10 \mu\text{J}$

L. Museur, A. Ndiaye, N. Ould, W.Q. Zheng, A. Kanaev\* et M.C. Castex

*Laboratoire de Physique des Lasers, Université Paris-Nord, Villetaneuse, France*

*\* Institut Lebedev, Académie des Sciences, Moscou, Russia*

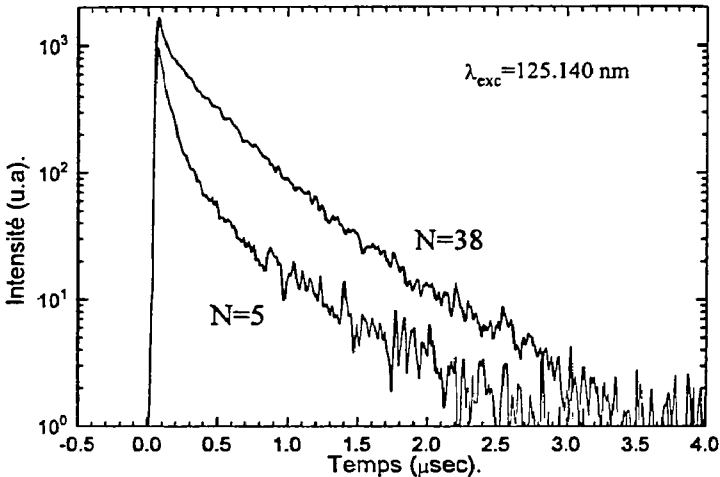
Nous présentons ici les premiers résultats d'une étude des processus de désexcitation/désorption d'agrégats de krypton ( $\text{Kr}_N^*$ ) excités à un photon dans l'ultraviolet lointain au moyen d'un laser VUV prototype. En fonction de la taille des agrégats ( $2 \leq N \leq 2 \times 10^3$ ), la désexcitation des  $\text{Kr}_N^*$  et la désorption des  $\text{Kr}_2^*$  sont étudiées par des techniques de fluorescence résolue en temps et spectralement. Les mesures de durée de vie des  $\text{X}_2^*$ , éjectés ou solvatés, sont discutées.

Préambules indispensables à la compréhension des effets de réactivité intra-agrégats impliquant des systèmes plus complexes (1), les agrégats de gaz rare constituent des systèmes modèles pour étudier les mécanismes d'échange d'énergie et de relaxation dans un milieu de dimension finie, depuis les conditions de la phase diluée jusqu'à celles de la matière dense (2).

L'excitation VUV est réalisée par un laser pulsé à 125 nm basé sur des techniques d'optique non linéaire de mélanges de fréquences (3). La vapeur de mercure, utilisée comme milieu non linéaire à température ambiante ( $N_{\text{Hg}} \approx 10^{13} \text{ at/cm}^3$ ) offre la possibilité unique de permettre une combinaison de fréquences  $2\omega + \omega/2$ . Le laser VUV que nous avons mis au point au laboratoire est très simple d'utilisation et fiable. En utilisant un seul laser à colorant doublé pompé par un laser Yag doublé, deux émissions très intenses ( $10^{13}$  photons/pulse) sont produites à 125.053 nm et 125.140 nm. Grâce à un système optique composé de deux miroirs dichroïques + deux prismes + un atténuateur de flux particulier (une cuve à eau teintée) situé derrière le cristal doubleur, la dépendance de  $I_{\text{VUV}}$  en fonction de  $I_{\text{VIS}}$  et  $I_{\text{UV}}$  est mesurée. Nous montrons que l'émission à 125.053 nm ( $I_{\text{VUV}} \propto I_{\text{UV}}^{1.8} I_{\text{VIS}}$ ) qui correspond à un processus de mélange à quatre ondes (non résonnant à deux photons) est loin de la saturation.

Derrière la cuve au mercure, fermée par une lentille plan-convexe en  $\text{MgF}_2$ , un prisme de Pellin-Brocca en  $\text{MgF}_2$  permet de séparer, dans une première enceinte,

les faisceaux pompes du faisceau VUV à 125 nm qui croise, dans une deuxième enceinte, le jet d'agrégats. La tuyère conique (diamètre  $D=100 \mu$  et ouverture  $2\phi=30^\circ$ ) que nous utilisons, peut être refroidie à l'azote liquide, ce qui nous permet en faisant varier  $P_0$  (jusqu'à 1.3 bar) et  $T_0$  (de 133 K à 293 K) de créer des agrégats  $Kr_N$  de taille variable ( $2 \leq N \leq 2000$ ). Les spectres de fluorescence résolue en temps, dont quelques exemples typiques sont donnés sur la Fig.1, permettent de sonder, en fonction de  $N$ , les processus de relaxation qui suivent l'excitation électronique.



Pour les petits agrégats, la relaxation se caractérise, soit par une fragmentation complète, soit par l'éjection, avant qu'ils ne puissent se relaxer de dimères vibrationnellement très excités. Les mesures de durée de vie des  $Kr_2^*(1_u) v' \gg 0$  éjectés sont en accord avec nos résultats passés déduits d'expériences en phase gazeuse (4). A partir de  $N \approx 10$ , il est possible que la relaxation vibrationnelle du dimère  $Kr_2^*(1_u) v' \gg 0$  s'effectue totalement au sein de l'agrégat sans provoquer son explosion. Au delà de  $N=40$ , le processus de désorption s'arrête et nous n'observons plus que la désexcitation radiative des dimères  $Kr_2^*(1_u) v' = 0$  solvatés.

Nous disposons désormais à Villeteuse d'un outil performant et qui peut encore être amélioré pour fournir 0.1 mJ/pulse (et plus). Ce laser VUV nous permet, désormais, d'étudier des processus photoréactifs de faible rendement de fluorescence comme par exemple des réactions intra-agrégats (1). Par ailleurs, la spécificité de notre système laser, à plusieurs faisceaux collinéaires (VUV + UV + VIS) ou non, peut fournir, dans le domaine en plein développement de la chimie des surfaces, une méthode originale d'investigation des processus de photodésorption et de photoréaction induits par laser sur une surface.

- (1) R. von Pietrowski, T. Moller, A.Kanaev, L.Museur and M.C Castex, "First observation of rare gas halide charge transfer reactions in clusters" DESY 1993.
- (2) R.Karnbach, M.C Castex, J. Keto, M. Joppien, J. Wormer, G. Zimmerer, T. Moller, Chem. Phys. Lett. 203, 248 (1993).
- (3) H.Nkwawo, C.Mainos, M.Ait-Kaci, L.Museur and M.C.Castex, J Phys. IV, C7, 481 (1991)
- (4) A.V. Kanaev, V. Zafirooulos, M. Ait-Kaci, L.Museur, H. Nkwawo and M.C.Castex, Z. Phys. D, 27, 29 (1993)