

Dynamique en temps réel d'un matériau sous l'impact d'un pulse laser : disséquer, sélectionner, agir, modifier

Hervé Cailleau

*Institut de Physique de Rennes
UMR 6251 CNRS - Université de Rennes 1
35042 Rennes Cedex, France*

Observer la matière sur des échelles de plus en plus petites, mais aussi agir sur elle à ces échelles pertinentes, représente un vrai défi [1]. Le développement remarquable de la science ultra-rapide, qui pénètre rapidement le domaine de la matière condensée, ajoute une dimension supplémentaire de type temporel à celles plus conventionnelles d'espace et d'énergie.

L'observation de la dynamique en temps réel de la matière s'appuie sur les techniques pompe-sonde, où un pulse laser de pompe prépare le système dans un état électronique hautement excité, tandis qu'un second pulse de sonde mesure pour un délai temporel donné son évolution. Aujourd'hui les sources lasers sont capables de délivrer des pulses ultra-courts, couramment sur des durées de quelques femtosecondes (fs). La durée d'un pulse est donc plus courte que l'échelle de temps des mouvements atomiques. La longueur d'onde du rayonnement laser couvre une large plage du domaine spectral, de l'infrarouge assez lointain à l'ultra-violet. On peut aussi produire des pulses de rayonnement Thz et, depuis peu, utiliser de Lasers à Electrons Libres délivrant des pulses de rayons X durs d'environ 100 fs. On peut donc suivre en temps réel non seulement l'évolution des propriétés électroniques mais aussi directement les déplacements atomiques pendant la réorganisation structurale du matériau [2]. De plus, ces pulses peuvent être très intenses, c'est-à-dire avec un nombre macroscopique de photons et un champ électrique instantané extrêmement fort.

Cela a ouvert des perspectives nouvelles pour observer dans la matière condensée des dynamiques structurales et/ou électroniques en temps réel, de systèmes d'électrons corrélés à la commutation moléculaire à l'état solide [3]. La dynamique des processus à l'état solide se réalise sur de multiples échelles de temps et d'espace du fait de la nature intrinsèque de ses constituants : électrons, atomes, maille cristalline, etc. Les techniques ultra-rapides permettent de découpler en temps les différentes dynamiques : réorganisation électronique, excitation de phonons, déformation cristalline, etc. (« disséquer »). Le caractère multi-échelle de cette évolution se traduit par une succession d'étapes. Pour une étape donnée, la dynamique est gouvernée par la moyenne quantique ou statistique des variables rapides, tandis que les variables lentes sont gelées. De plus, au début de chaque étape l'évolution à partir de l'état préparé peut être déterministe et donc non thermique. Cela ne met en jeu qu'un seul ou quelques degrés de libertés, contrairement au nombre macroscopique de degrés de liberté en jeu lors des processus thermiques (« sélectionner »). Il y a ainsi beaucoup d'exemples d'observations de phonons optiques cohérents activés par un pulse laser. Un autre exemple sur des échelles de temps plus longues est celui de la propagation de la déformation des mailles cristallines, à l'origine en particulier du changement de volume. Elle met en jeu des phonons acoustiques de grande longueur d'onde.

Le fait de l'absorption simultanée d'un nombre macroscopique de photons, qui approche le nombre de sites photo-actifs, peut induire une réponse globale coopérative, c'est-à-dire fortement non linéaire avec auto-amplification et donc différente de la somme de

réponses individuelles indépendantes («agir») [3]. C'est une nouvelle illustration des mots célèbres de P. W. Anderson «More is different» [4]. C'est ainsi que le pulse laser peut déclencher l'amollissement complet d'un mode de phonon optique, entraînant le basculement vers une autre phase. Dans des situations où l'excitation est plus localisée, la réponse est linéaire aux temps ultra-courts et s'auto-amplifie lorsque l'interaction entre constituants rentre en jeu.

Nous sommes très loin d'avoir une vision globale des phénomènes coopératifs induits par un pulse laser. Si maintenant on arrive à appréhender de façon satisfaisante les limites en temps pour transformer un matériau, de nombreuses questions ouvertes subsistent. Ainsi, s'il existe de nombreux exemples d'observation de fusion d'un ordre électronique ou structural, l'inverse est beaucoup plus difficile à réaliser. Il semble cependant possible d'obtenir un comportement photo-réversible dans certaines situations. Ceci reste à creuser, en particulier la possibilité d'induire une brisure de symétrie. Il est nécessaire aussi d'approfondir le dilemme effets non thermiques vs. thermiques. De plus, beaucoup des états photo-induits ne sont que transitoires, et pour les stabiliser le contrôle des déformations cristallines, en particulier dans un nanocristal, semble essentiel. Enfin, des possibilités nouvelles d'agir directement sur le mouvement des électrons émergent, de façon analogue à ce qui a été fait pour les réseaux d'atomes ultra-froids («modifier»).

Remerciements : Je remercie chaleureusement les membres, chercheurs et étudiants en thèse, de l'équipe «Photo-Induite» de l'Institut de Physique de Rennes avec qui je travaille depuis de nombreuses années.

[1] G. R. Fleming, M. A. Ratner, *Grand challenges in basic energy science*, Physics Today **61**, 28 (2008)

[2] E. Collet ed., *Dynamical structural science*, special issue Acta Crystallogr. A **66**, 133 (2010)

[3] H. Cailleau, M; Lorenc, M. Buron-Le Cointe, M. Servol, M. Cammarata, E. Collet, *Impacting materials by light and seeing their structural dynamics*, Eu. Phys. J. Special Topics **222**, 1077 (2013)

[4] P. W. Anderson, *More is different*, Science **177**, 393 (1972)