



# Dynamique du phonon cohérent dans le Bismuth photo-excité

Alain Gellé, Yvelin Giret, Brice Arnaud.

Institut de Physique de Rennes, UMR 6251,  
Université de Rennes 1



## Institut de Physique de Rennes

- **5 Départements :**

- Physique Moléculaire (*→ petits systèmes*)
- Matière molle
- Optique et Photonique
- Milieux divisés
- ***Matériaux Nanosciences***
  - Matériaux Nanoconfinés (*→ dynamique moléculaire*)
  - Commutations Photoinduites
  - Surfaces et Interfaces
  - ***Théorie (4 permanents + 1 Thésard)***



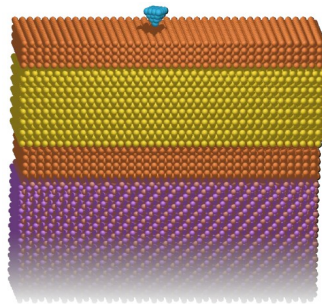
# Présentation : Groupe théorie

## BEEM

**Sergio Di Matteo**  
**Yann Claveau**

- Microscopie elect.
- Couches minces

*calcul de la conduction*  
*modèle liaisons fortes*



## Diffusion multiple

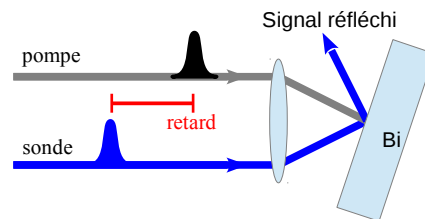
**Didier Sébilleau**

- Programme MsSpec
- Plate-forme MsNano Réseau Europ. (FP7)

*calcul de section efficace*  
*diffusion multiple*

## Phénomènes Photoinduits

**Brice Arnaud**  
**Alain Gellé**

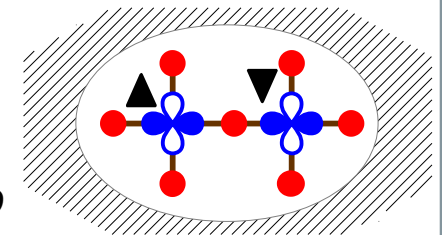


- Transition de phase (composés moléculaire)
- Phonon cohérent dans le bismuth

*calcul ab initio (DFT)*  
*modèles*

## Magnétisme

**Alain Gellé**  
**Sergio Di Matteo**



- Calcul d'hamiltoniens modèles (oxydes de métaux de transition)

*Calcul d'interaction de configuration*

*Super-échange - Modèle de Hubbard*



# Dynamique du phonon cohérent dans le Bismuth photo-excité

Alain Gellé, Yvelin Giret, Brice Arnaud.

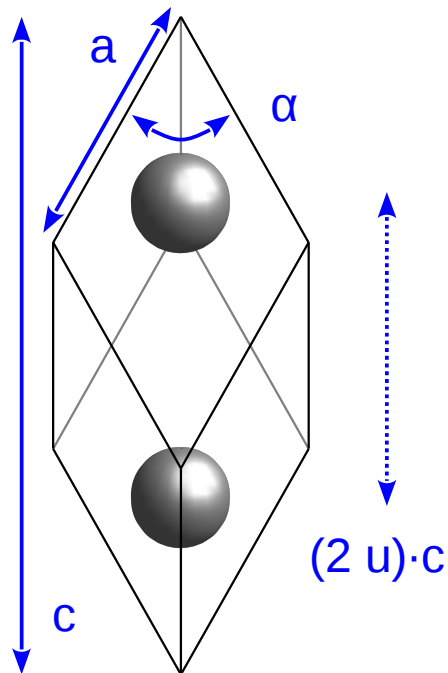
Institut de Physique de Rennes, UMR 6251,  
Université de Rennes 1



# Le bismuth

- **Structure**

- maille rhomboédrique

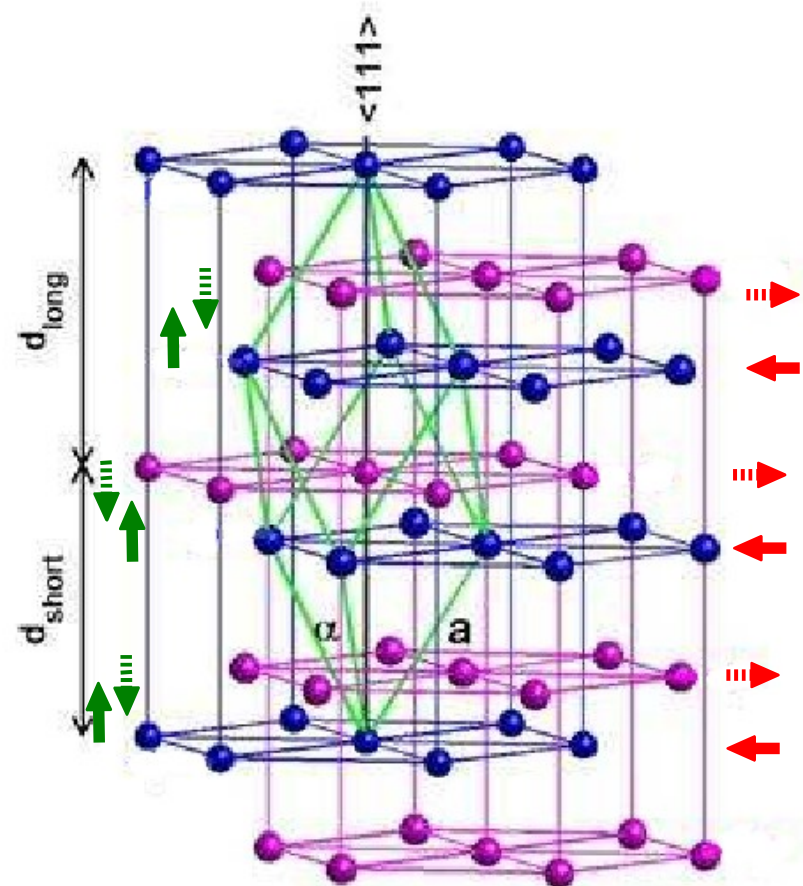


$u \sim 0,234$   
 $\alpha \sim 57^\circ$   
 (à 300 K)  
 semi-métal

Structure cubique (« imaginaire ») :

$u=0,25$  et  $\alpha=60^\circ$  serait métallique

- **Phonons actifs en Raman**

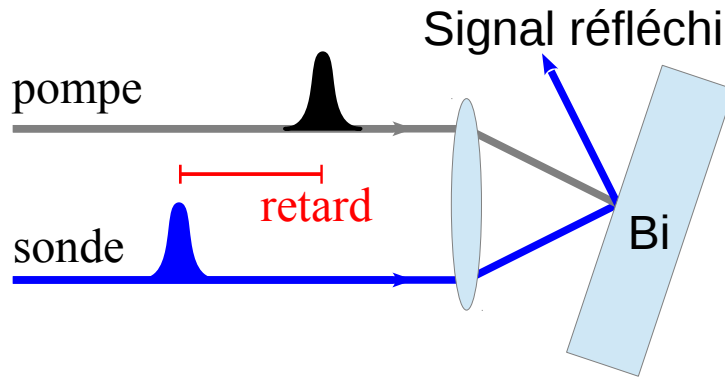


$A_{1g}$   
 $E_g$

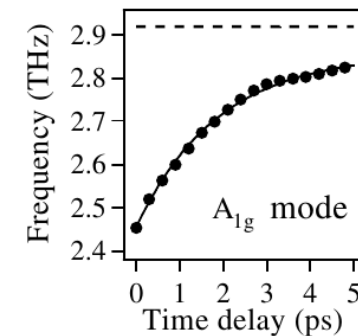
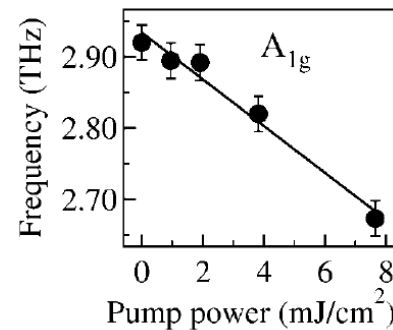
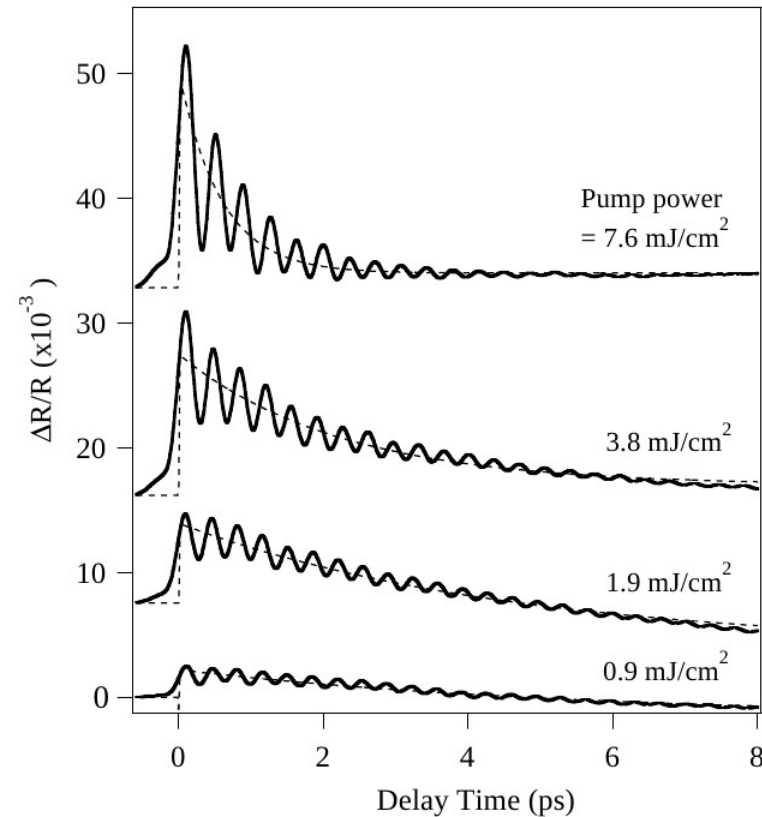
$\nu = 2.93$  THz (341 fs) at 298 K

$\nu = 2.07$  THz (483 fs) at 298 K

# Phonon cohérent dans le Bismuth

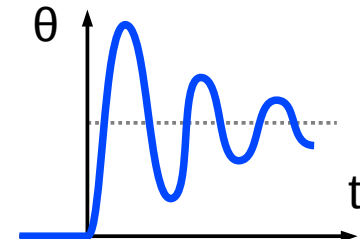
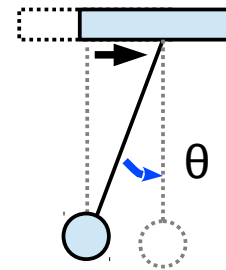
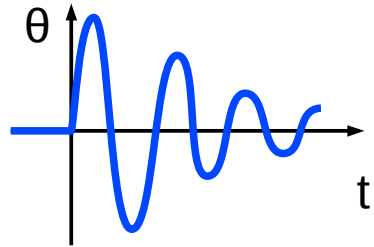
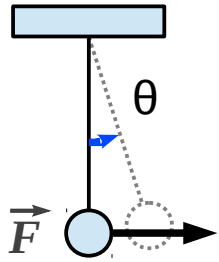


- fréquences d'oscillations proches de celle du phonon optique  $A_{1g}$  (2.93 THz)
- fréquence dépend
  - de la fluence
  - du temps



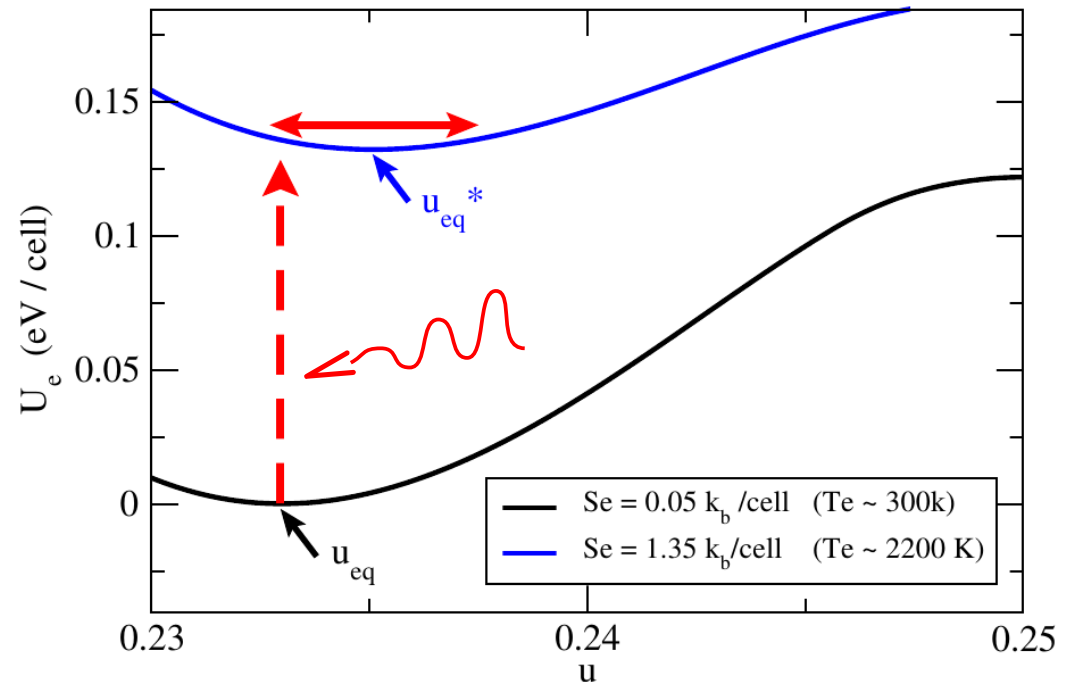
# Excitation du phonon

- Phénomène impulsif ( $E_g$ ) vs displacif ( $A_{1g}$ )



- Phonon cohérent  $A_{1g}$  :

- phénomène displacif dû à l'excitation électronique



# Rayons X résolus en temps

- **Intensité de la raie 111**

$$\frac{I(t)}{I(0)} = \frac{\cos^2[6\pi \cdot u(t)]}{\cos^2[6\pi \cdot u(0)]}$$

- **Résolution temporelle**

$$I(t) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t') g(t-t') dt'$$

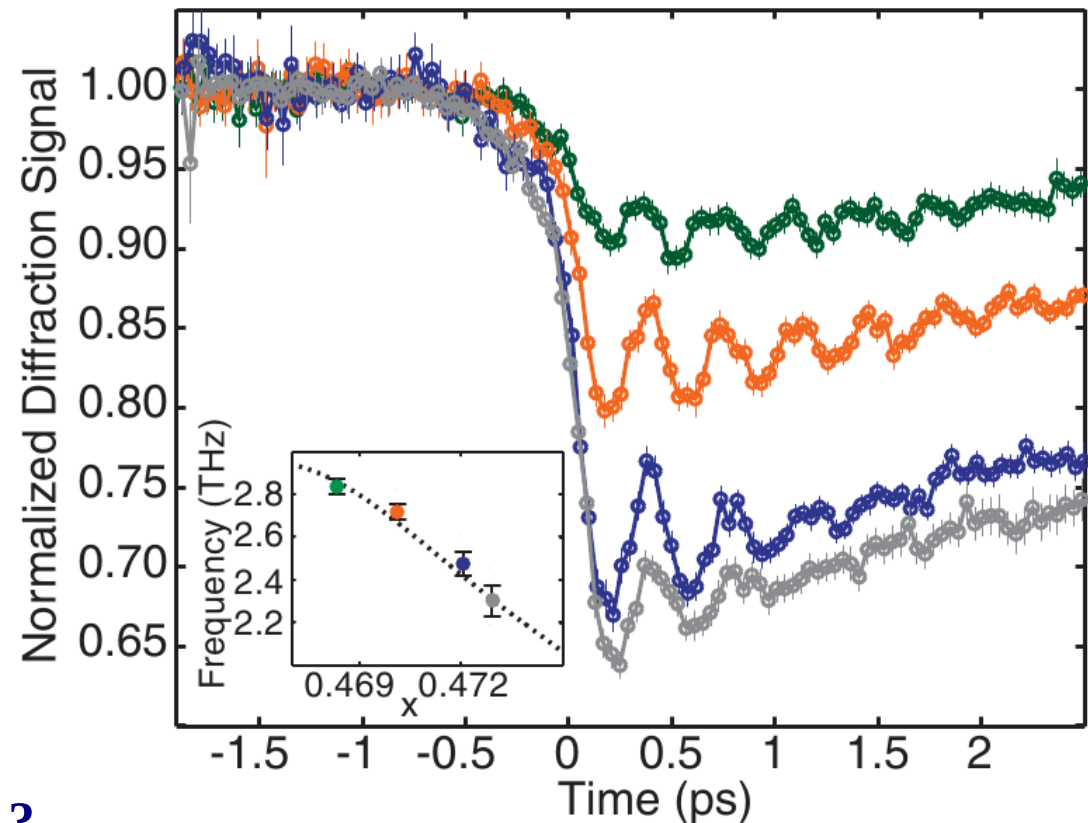
$g(t)$  : pulse pompe  $\otimes$  probe

gaussiennes de largeur  $t_p$  et  $t_x$

Film d'épaisseur :  $L=50$  nm

Pulse laser :  $\lambda = 800$  nm,  $t_p=70$  fs

Pulse X :  $t_x \sim 100$  fs



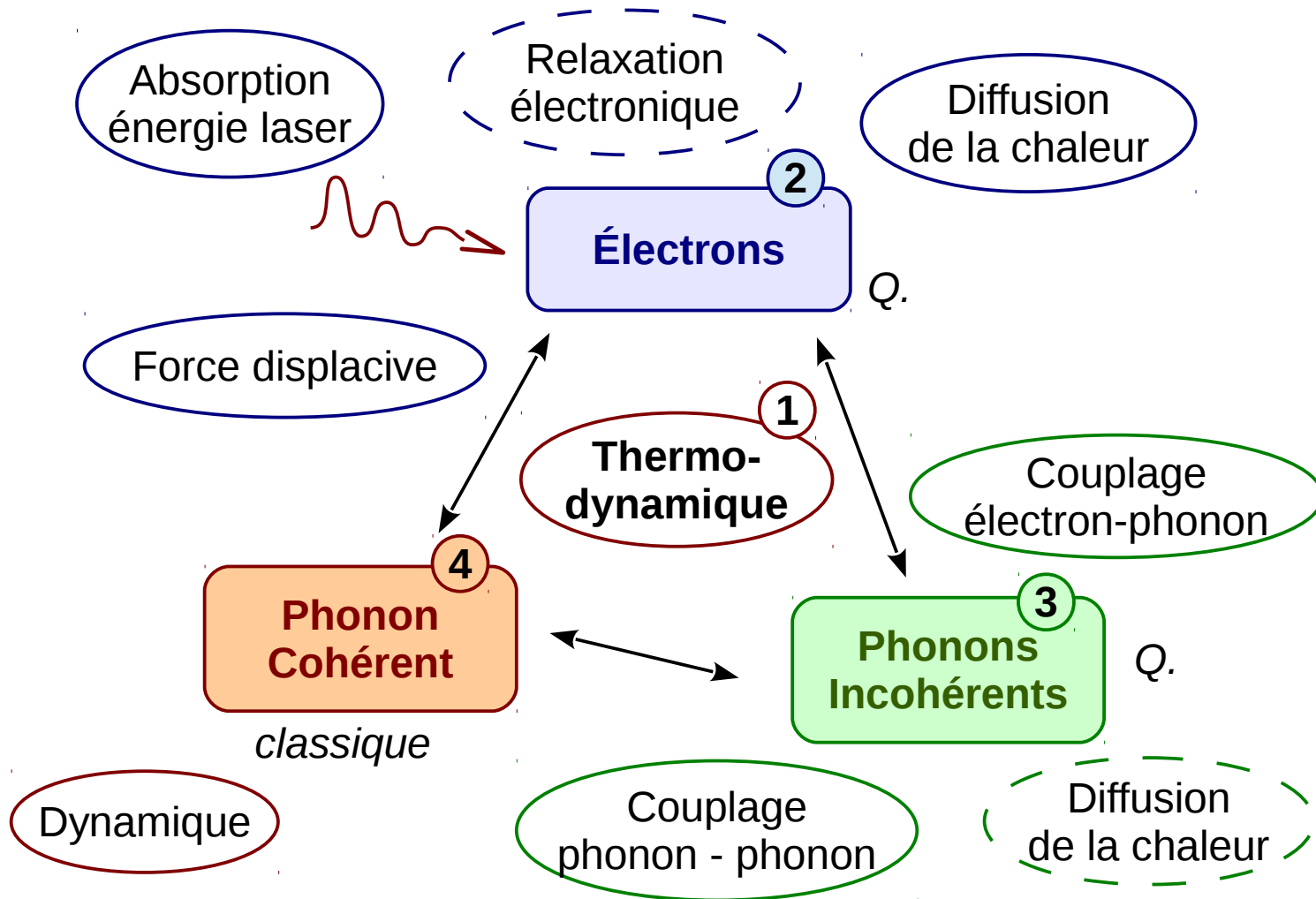
→ **mécanismes microscopiques ?**

→ **modèle « quantitatif »**

*D.M. Fritz et al., Science 315, 633 (2007)*



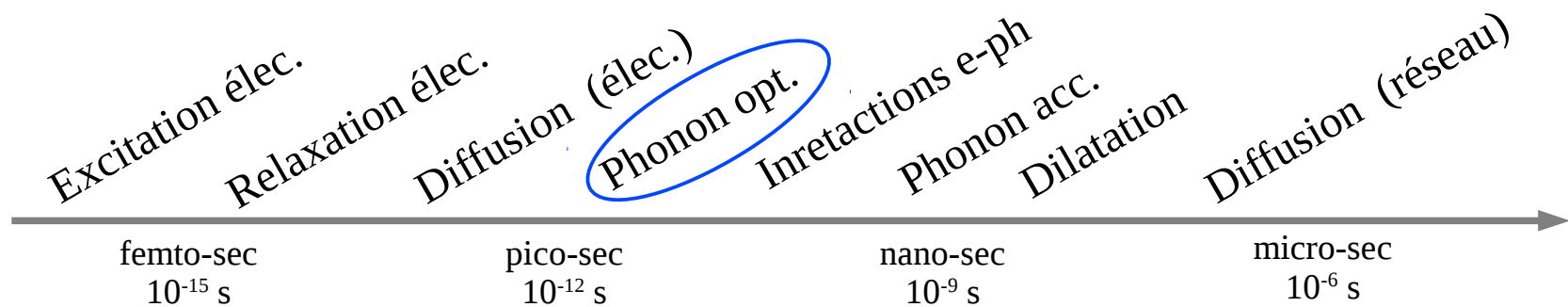
# Modélisation



→ *Comparaison aux expériences de RX*

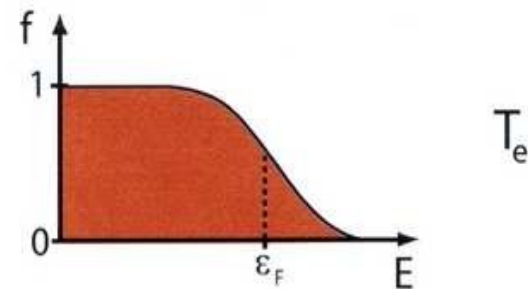
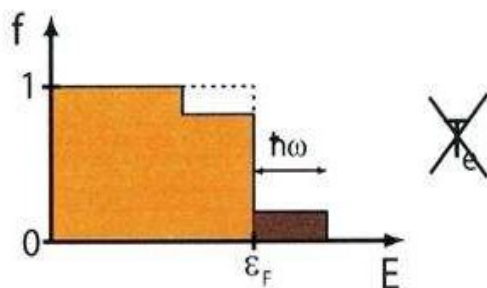
# Modèle thermodynamique

- **Différentes échelles de temps :**



- **Relaxation électronique :**

- hypothèse :  $\tau_{ee} \sim 10-100$  fs  $\ll$  Période phonon



- **Modèle à deux températures :**

- $T_e$  : électrons  $T_r$  : réseau (sauf phonons cohér.)

# Modèle thermodynamique

- **Système électronique :**

$$T_e \frac{\partial S_e}{\partial t} = \frac{\partial U_e}{\partial t} + \frac{c}{v} f \frac{\partial u}{\partial t} = P + \frac{\partial}{\partial z} \left( \kappa_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - G_0 (T_e - T_r)$$

Pompe

Couplage e-ph

Diffusion

- **Phonon cohérent :**

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{f}{2Mc} - \frac{2}{\tau} \frac{\partial u}{\partial t}$$

Couplage ph-ph

- **Phonons incohérents :**

$$C_r \frac{\partial T_r}{\partial t} = G_0 (T_e - T_r) + \frac{4Mc^2}{v\tau} \left( \frac{\partial u}{\partial t} \right)^2$$

Couplage e-ph

$T_e$  : temp. élec

$U_e$  : énergie

$S_e$  : entropie

$\kappa_e$  : coeff. de diff.

$z$  : profondeur

$P$  : puissance pompe

$G_0$  : coeff. coupl. e-ph

$M$  : masse du Bi.

$\tau$  : tps. de vie du phonon cohérent

$T_r$  : temp. réseau

$C_r$  : chaleur Spéc.

$c$  : param. de maille.

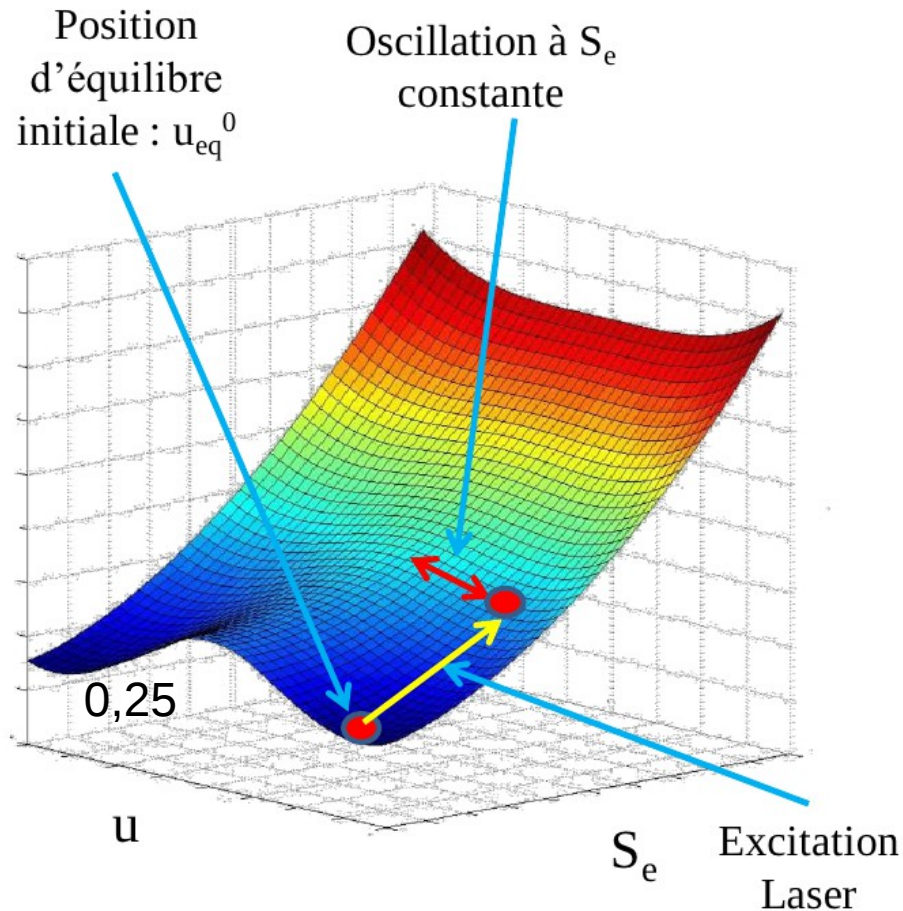
$v$  : volume de la maille



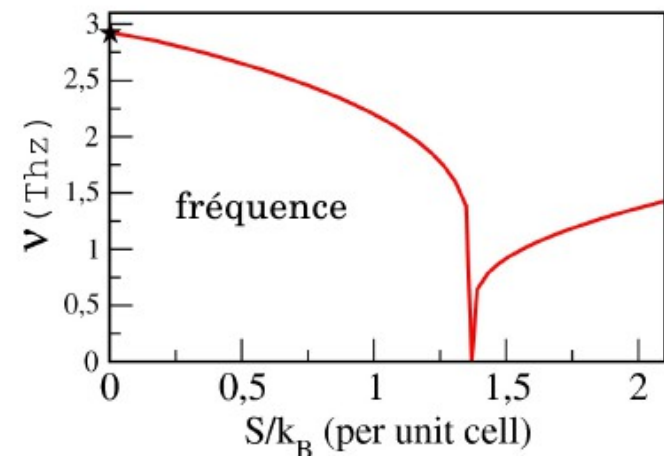
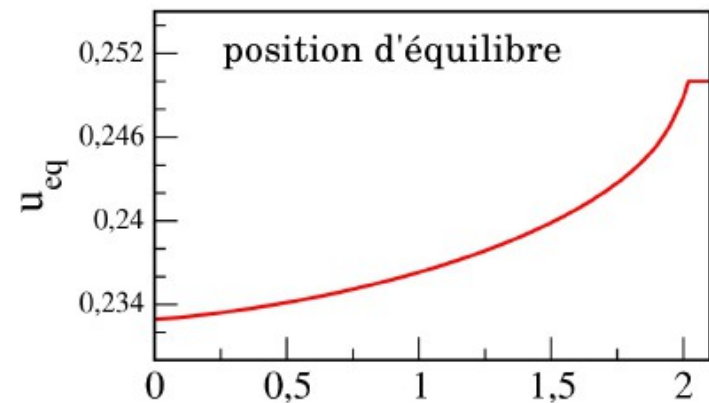
# Propriétés électronique : calcul ab initio

- **Surface d'énergie**

- DFT LDA +spin orbit  
en température  
→ Ue(Te), Se(Te) ...



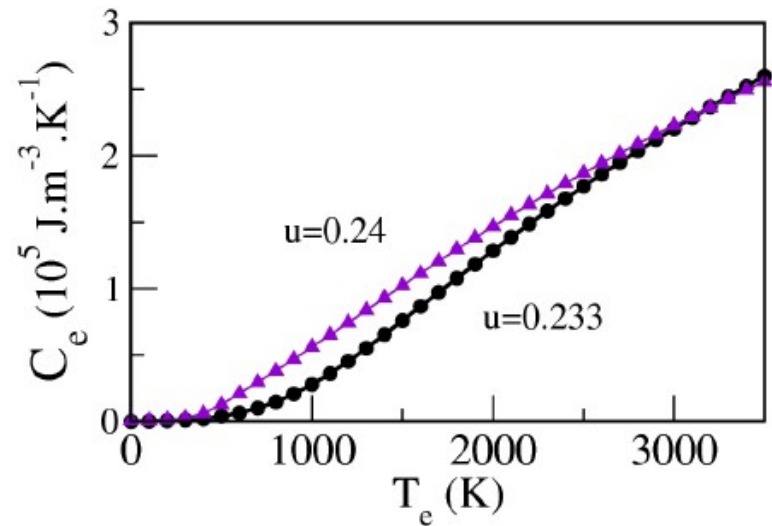
- **Position d'équilibre et fréquence d'oscillation :**



Accord qualitatif avec d'autres calculs :  
Murray et al., Phys. Rev. B 72, 60301 (2005)  
Zijlstra et al, Phys. Rev. B 74, 220301 (2006)

# Propriétés électronique : calcul ab initio

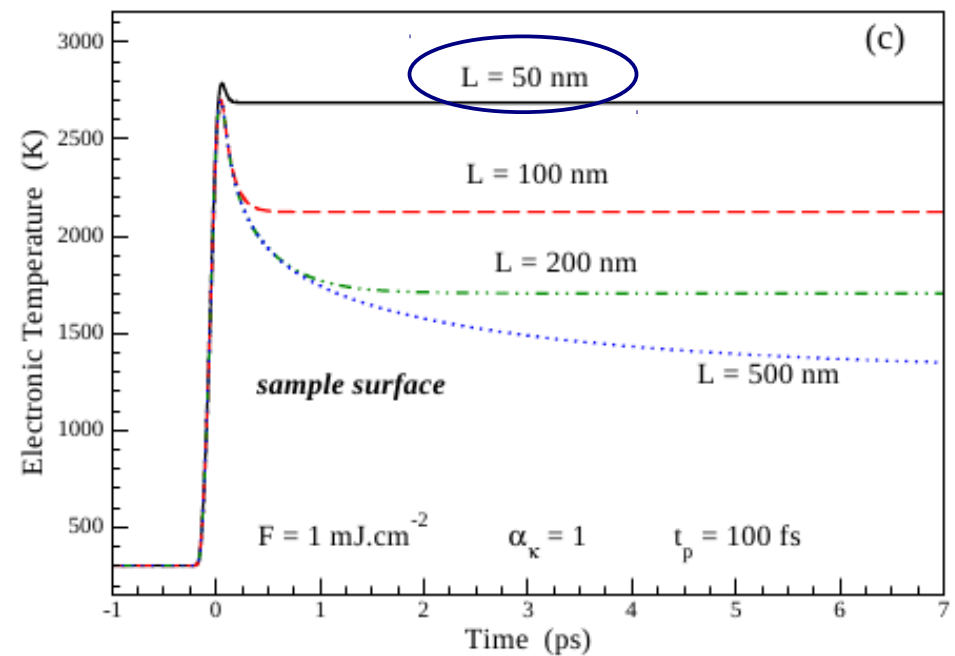
- Chaleur spécifique



- Semi métal  
→  $C_e$  faible à T ambiante

- Diffusion de la chaleur

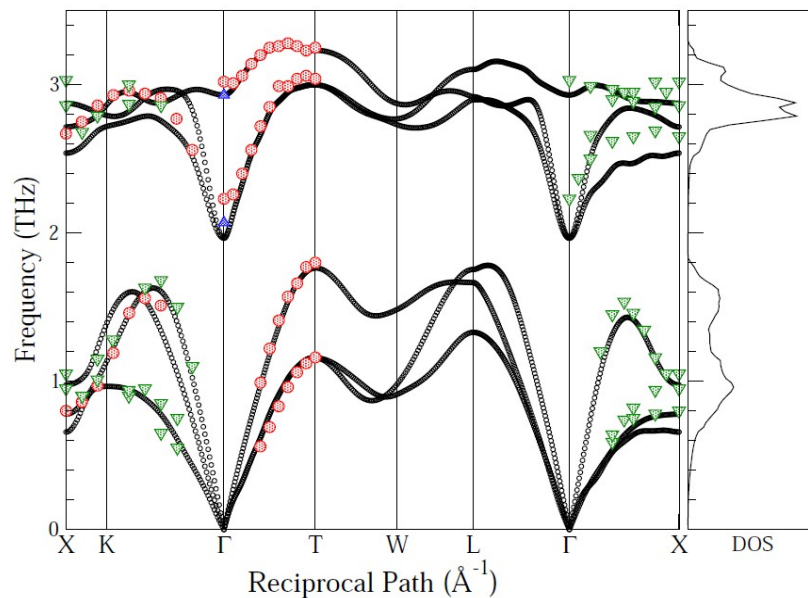
- $\kappa_e \propto C_e$  ( $\sim$ métal)
- Evolution de la température à la surface / temps :



- Temps de diffusion sur 50 nm  
 $\approx$  largeur temporelle de la pompe

# Propriété des phonons

- **Calculs LDA DFPT :**

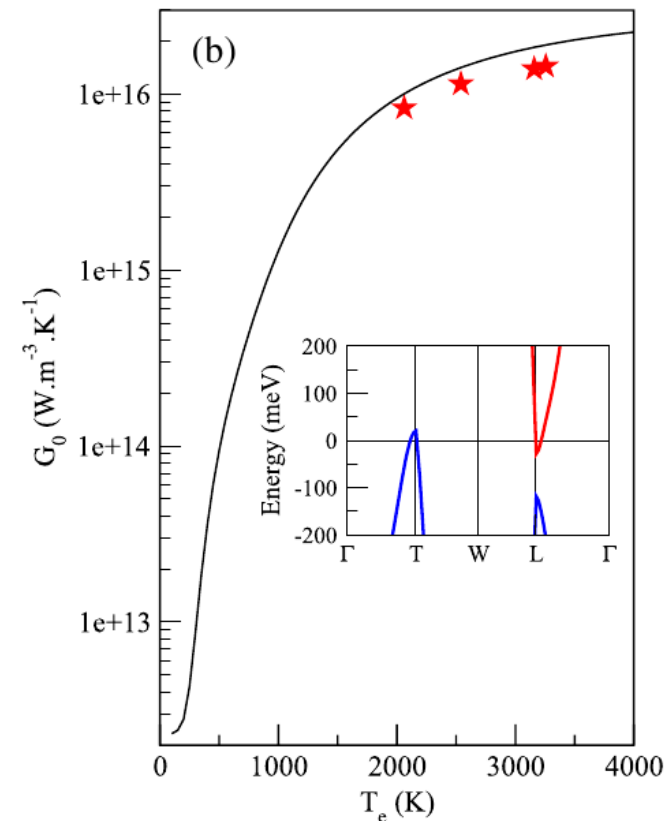


en accord avec : Diaz-Sanchez et al,  
*Phys. Rev. B* 76, 104302 (2007)

- effet de la température sur les modes optiques
- Chaleur spéc. Du réseau

- **Couplages phonon-phonon**

- fonction Eliashberg généralisée
- couplage  $G_0$  :



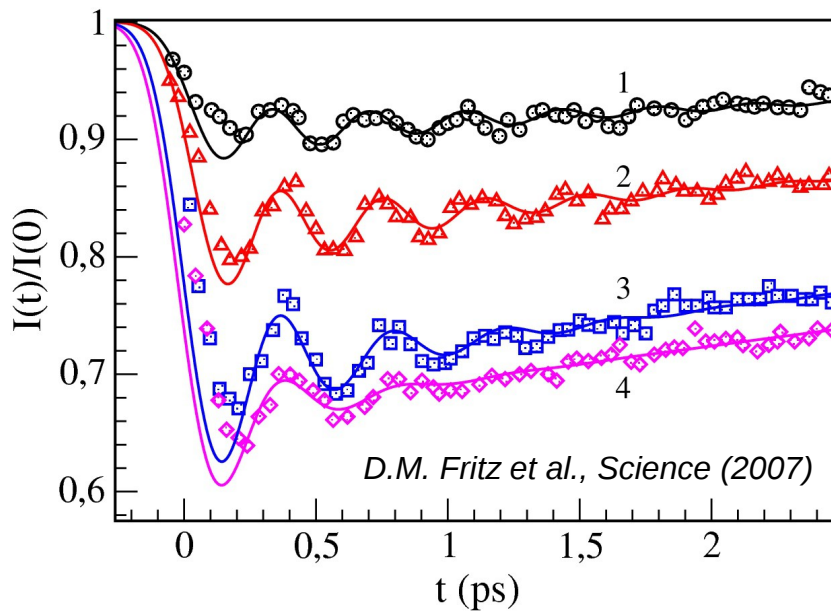
- 4 ordre de grandeurs !

B. Arnaud et al, *Phys. Rev. Lett.* 110, 016405 (2013)

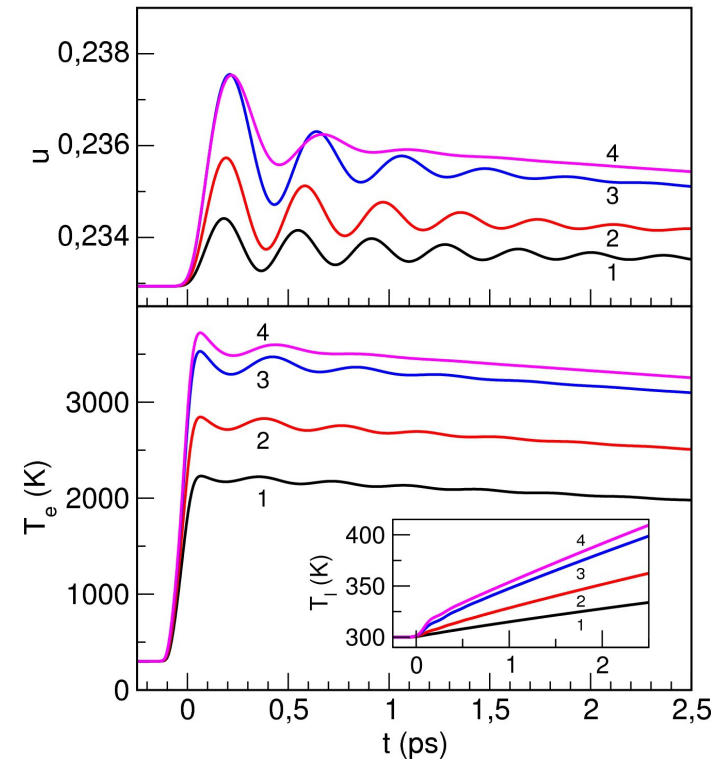


# Dynamique du phonon cohérent

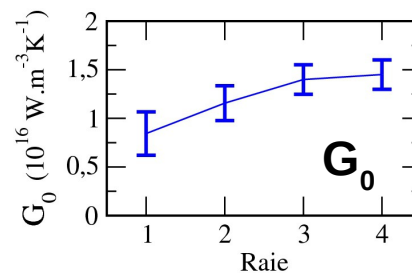
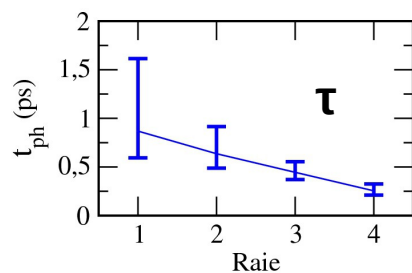
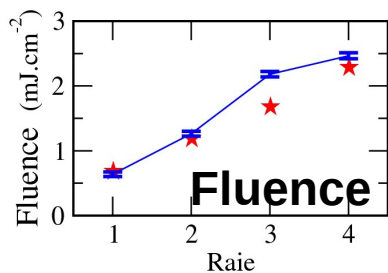
- **Calcul éléments finis**
  - param. ab initio
- **Modélisation des Raies X :**



- Oscillations de la température :



- Paramètres ajustés :



*Y. Giret, et al,  
Phys. Rev. Lett.  
106, 155503 (2011)*

## Conclusion

- Modélisation paramétrées ab initio
  - seul paramètre ajusté  $\tau$  phonon
- Importance de la diffusion électronique
- Oscillations de températures

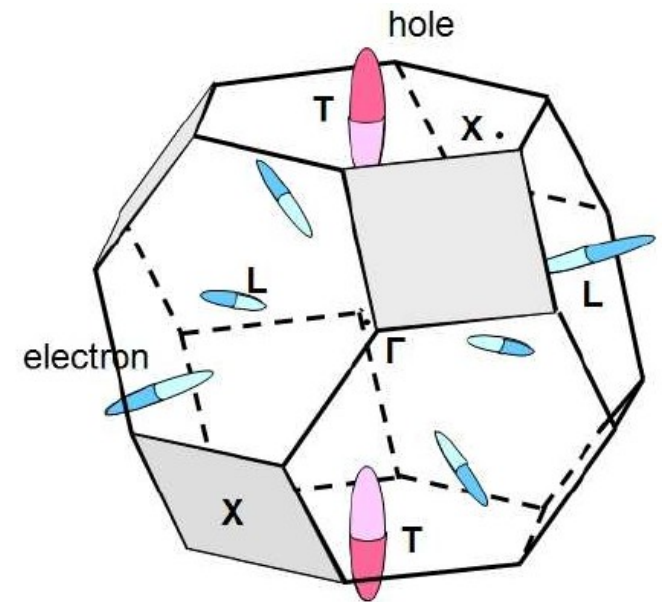
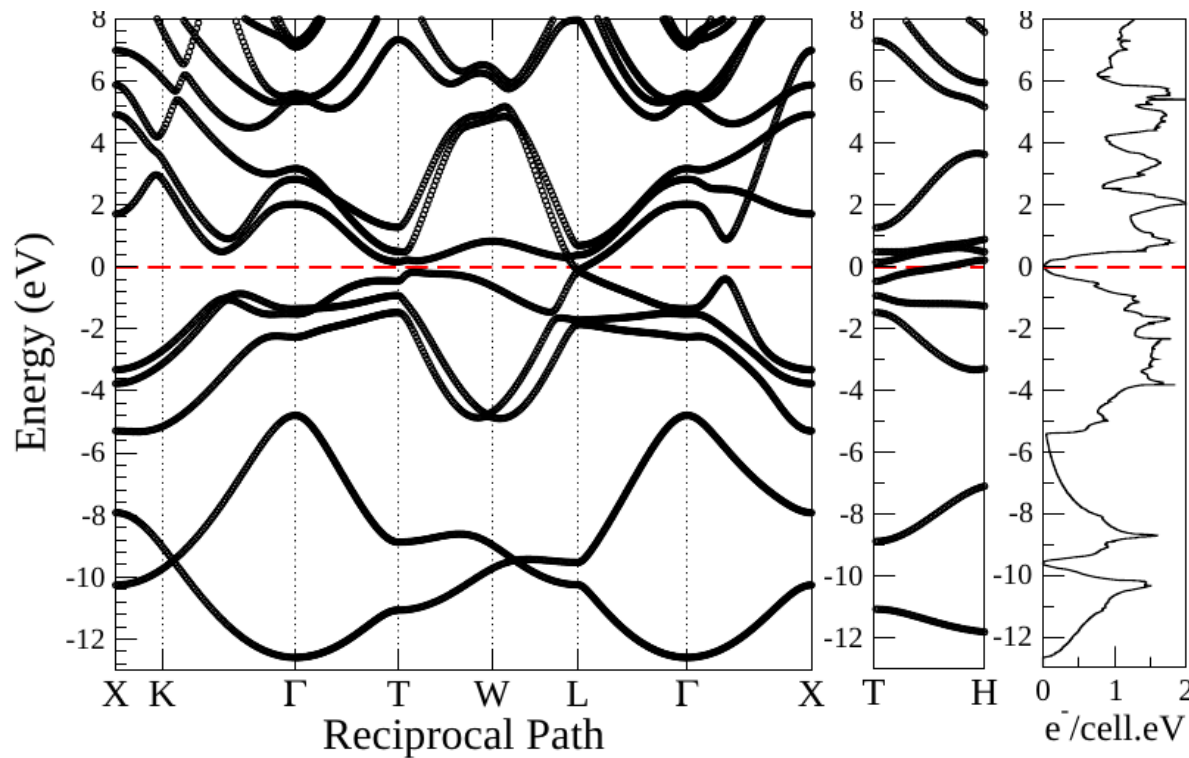
## Perspectives

- propriétés optiques
- relaxation électronique
- bilans d'énergie sur du Bi massif
- résurrection du phonon

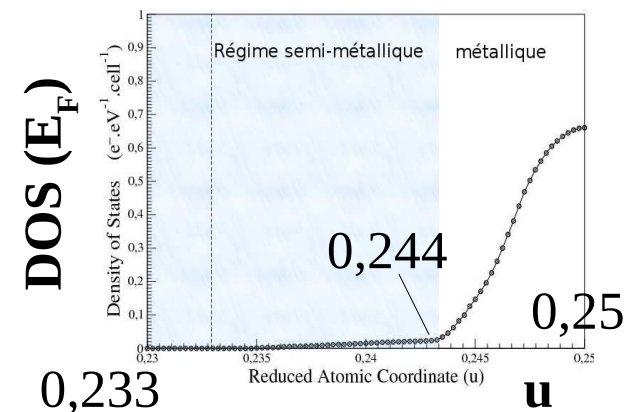
**Merci de votre attention !**

# Propriétés électronique : calcul ab initio

- Calcul LDA + Spin Orbit (Abinit)
- Structure de bande du bismuth :



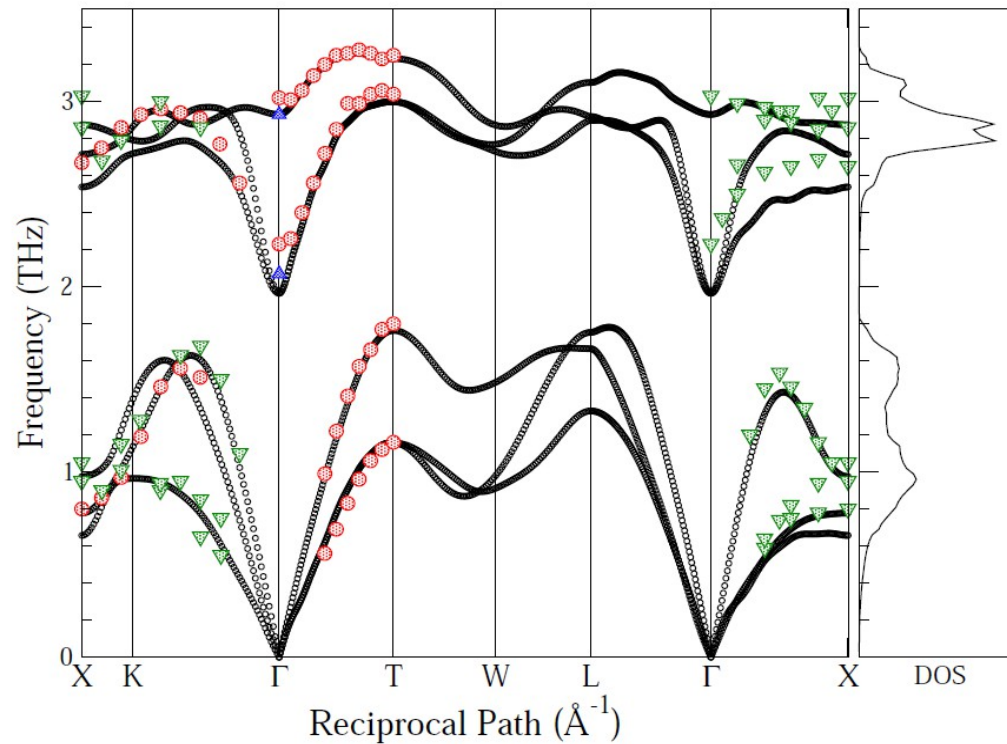
- semi métallique
- poches électrons / trous
- devient métallique si  $u \rightarrow 0,25$





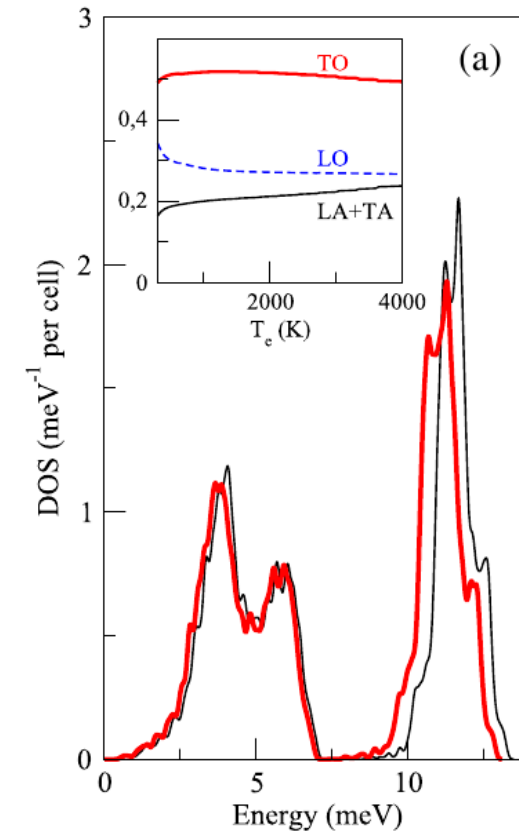
# Propriété des phonons

- **Calculs LDA DFPT :**



en accord avec : Diaz-Sanchez et al,  
*Phys. Rev. B* 76, 104302 (2007)

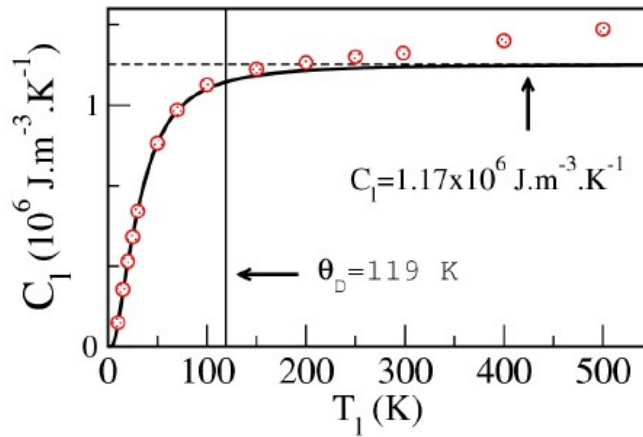
- **Effet de la température électronique :**



- effet de la température sur les modes optiques

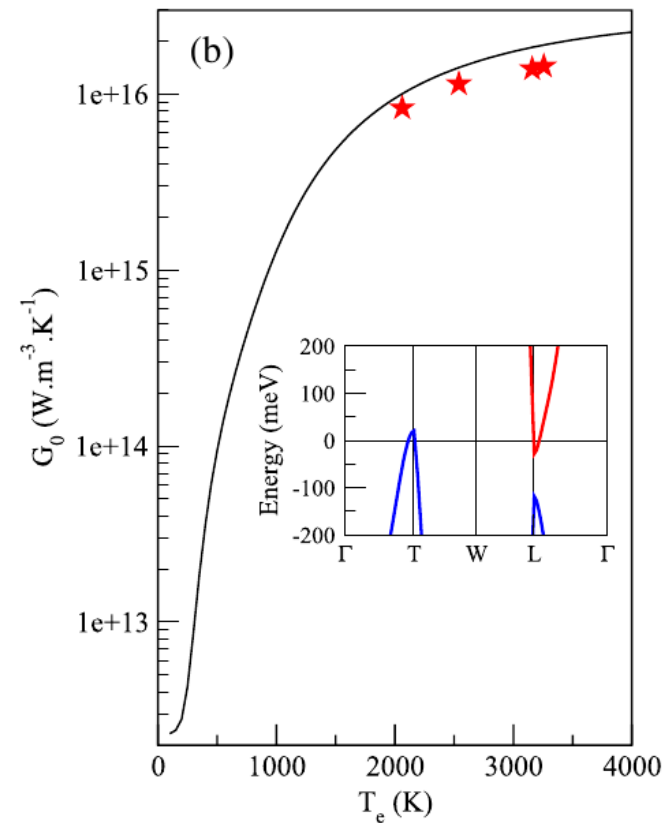
# Propriété des phonons

- **Chaleur spécifique :**



- **Couplages phonon-phonon**

- fonction Eliashberg généralisée
- couplage  $G_0$  :



→ 4 ordre de grandeurs !