

PhD thesis hosted at the Institute of Physics of Rennes (IPR)

Department Materials and Light

Title:

Study of ultrafast photo-induced phenomena near critical points in molecular materials

PhD supervisor: Roman Bertoni (Assistant Professor)

Funding: ANR project hosted at University Rennes 1

Scientific Overview:

The material & light team inside the Institute of Physics of Rennes has a worldwide recognition in the field of ultrafast photo-induced phase transition. This new field of research makes use of light as new control parameter in order to tune the physical properties of material. For instance, it is possible to induce a metal to insulator transition or to demagnetize a ferromagnet under light irradiation. Spectacular results such as light-induced superconductivity or generation of transient ferroelectric phase under ultrafast optical photo-excitation were demonstrated. In order to optimize the control granted by the light field, it is mandatory to understand the microscopic effects into play. Those out-of-equilibrium phenomena involve fundamentals couplings between the different quantum degrees of freedom (electrons, lattice, spins, orbitals).

Time resolved measurements are truly suited for the study of mechanisms involved in the formation of new photo-induced states. More precisely, optical spectroscopy is a dedicated technique because electromagnetic waves in the visible and infrared range are in resonance with numerous internal degrees of freedom of solid-state materials. The advanced of laser delivering intense ultrashort pulses of femtosecond duration allow to monitor fundamental electronic and structural dynamics on their relevant timescale.

For a long time, the study of photo-induced phase transition was restricted to the sole use of temperature as external control parameter. Recent studies have demonstrated the possibility to add the use of hydrostatic pressure to explore the phase diagram of material. The idea is to look for parts of the phase diagram near critical points where gigantic photo-response may occur. This PhD project follows this new line of research where several control parameters (Temperature, Pressure and Light) will be used to generate new multifunctional states potentially hidden at thermal equilibrium.

Project:

This PhD project aims to develop a new experimental setup combining a High Pressure He gas cell with the existing femtosecond laser platform. The candidate will intensively use several setups of femtosecond optical spectroscopy implemented in the material and light team. Those setups are able to deliver ultrashort laser pulse of around 100 fs while covering a spectral range spanning from UV (250 nm) to far infrared (15 μm). All the experiments are based on the so-called pump-probe techniques where two light pulses are used to impact and monitor the system respectively. The main task of the candidate will be to perform ultrafast optical spectroscopy of molecular conductors inside the High Pressure cell (0-7 kbars) in different spectral ranges.

This PhD project involves the use and expertise of several optical spectroscopic techniques such as transient absorption spectroscopy, supercontinuum spectroscopy (white light) and time-resolved infrared measurements. The candidate should develop a strong knowledge in the field of photo-induced phase transition and ultrafast photo-induced phenomena in condensed matter. In addition, we will master all the cutting-edge techniques involve in those fields of research. In addition, complementary measurements involving X-ray diffraction and static optical spectroscopy are needed to characterize the sample. The PhD candidate will be strongly encouraged to present the scientific results in national and international conferences.

Supervision:

This PhD thesis will be supervised by Roman Bertoni (Assistant Professor) with strong support from Nicolas Godin (Engineer). The candidate will be deeply involved in the femtosecond laser lab built by the material and light team. Daily work will involve strong interactions with all team members working in the laser lab and sharing of knowledge. Nicolas Godin is an expert in charge of all developments involving sample environment (Temperature, Pressure) and laser spectroscopy. Roman Bertoni has a strong expertise in femtosecond optical spectroscopy and ultrafast techniques in general. He was also involved in the supervision of numerous students in the laser lab.

Required skills and knowledge:

Candidates must have knowledge in solid state physics and theory of phase transition. Candidates must have background in optical spectroscopy and the related experimental techniques. Good skills in programing, interfacing and data treatment and analysis (if possible with Python) are strongly appreciated. English is the working language in the team.

This PhD project is developed in the frame of the new International Research Laboratory DYNACOM supervised by Pr. Ohkoshi of the Tokyo University and Pr. Collet of University Rennes 1. Stays in Japan to visit Japanese colleagues' experts in the field of Photo-Induced Phase Transition are foreseen.

References:

- [1] E.Collet, et al, *Science* ,300 (5619), 2003
- [2] R.Bertoni, et al, *Nature Materials*, 15 (6), 2016
- [3] M.Mitrano, et al, *Nature*, 530 (7591) 2016
- [4] AH.Zewail, *J. Chem. Phys. A*, 2000
- [5] A.Cantaluppi, et al, *Nature Physics*, 14 (8), 2018
- [6] R.Bertoni, et al, *Angewandte Chemie*, 128 (30), 2012
- [7] R.Bertoni, et al, *Account of Chemical Research*, 48 (3), 2015

Sujet de thèse proposé à l'Institut de Physique de Rennes

Département Matériaux & Lumière

Titre de la thèse :

Etude des phénomènes photo-induits ultrarapides près des points critiques dans les matériaux moléculaires

Porteurs/ directeur de thèse : Roman Bertoni (Maître de conférence) 100%

Financement : contrat doctoral financé par l'ANR et affilié à l'Université Rennes 1

Positionnement du projet scientifique :

L'équipe matériaux & lumière au sein de l'institut de Physique de Rennes est mondialement reconnue pour ses travaux dans le champ des transitions de phases photo-induites ultrarapides[1,2]. Ce champ de recherche très récent utilise la lumière comme paramètre de contrôle extérieur des matériaux permettant ainsi de changer leurs propriétés physiques. Il est par exemple possible de transformer un matériau isolant en conducteur métallique ou de détruire l'ordre magnétique d'un aimant sous irradiation lumineuse. Des exemples spectaculaires ont montré la formation d'états photo-induits supraconducteurs[3] ou ferro-électriques[1] par excitation optique avec des pulses laser intenses ultracourts. Dans le but d'optimiser le contrôle des matériaux, il est important de comprendre les mécanismes mis en jeu. Ces processus hors équilibre impliquent des couplages à l'état microscopique entre les différents degrés de liberté dans les matériaux solides (électron, réseau, spins).

Les mesures résolues en temps sont des techniques extrêmement pertinentes pour étudier les différents couplages qui interviennent lors de la formation d'états photo-induits. Plus précisément, les techniques de spectroscopie optique sont très adaptées car les ondes électromagnétiques dans le spectre visible-infrarouge présentent des résonances avec différents degrés de liberté présents dans le système. De plus, l'avancée des lasers pulsés ultracourts délivrant des impulsions femtoseconde (10^{-15} s) permet d'observer le système aux échelles de temps pertinentes des processus électroniques et structuraux[4].

Pendant plusieurs décennies, l'étude des transitions de phases photo-induites se sont limitées à l'utilisation de la température comme seul paramètre de contrôle thermodynamique. De récentes études ont démontré la possibilité d'utiliser la pression pour explorer le diagramme de phase des matériaux[5]. Cela permet de rechercher dans l'espace des phases les endroits où des photo-réponses gigantesques à des excitations lumineuses apparaissent. C'est dans ce cadre que s'inscrit ce projet de thèse qui a vocation à explorer un champ de recherche nouveau où plusieurs paramètres de contrôle extérieurs (température, pression, lumière) seront utilisés en parallèle dans le but de créer de nouveaux états multifonctionnels dans les matériaux moléculaires corrélés et de rechercher des phases « cachées à l'équilibre thermodynamique ».

Projet :

Ce projet de thèse vise à développer un montage expérimentale unique combinant une cellule haute pression cryogénique avec une plateforme de spectroscopie optique femtoseconde. Cette thèse s'appuiera sur la plateforme de spectroscopie laser ultrarapide présente dans l'équipe matériaux et lumière. Elle peut générer des pulses optiques ultracourts de l'ordre de 100 fs qui couvrent une gamme spectrale allant de l'UV (250 nm) à l'infrarouge lointain (15 000nm). Ces pulses ultracourts et intenses

sont utilisés dans des expériences pompe-sonde où ils servent à la fois à exciter et interroger le matériau. Le candidat sera amené à effectuer des mesures de spectroscopie ultrarapide sur des composés moléculaires dans notre cellule sous pression hydrostatique (0-7 kbars) dans différentes gammes spectrales.

Le travail de thèse envisagé impliquera la découverte et la maîtrise à long terme de nombreuses techniques de spectroscopie optique telles que les mesures d'absorption transitoire ultrarapide, la spectroscopie de supercontinuum et les mesures de spectroscopie infrarouge résolues en temps. Au final, le doctorant sera amené à développer une expertise dans le domaine de la physique des phénomènes photo-induits ultrarapides et les techniques de pointes qui y sont accolées. En parallèle, seront aussi prévues des mesures complémentaires de diffraction de rayons X ou de spectroscopie optique large bande pour caractériser de façon pertinente les échantillons à l'étude dans ce projet. Le candidat sera aussi amené à présenter ses résultats au sein de conférences nationales et internationales dans lesquelles l'équipe matériaux et lumière est fortement présente.

Encadrement :

La thèse sera encadrée par Roman Bertoni (maître de conférences) avec le support de Nicolas Godin (ingénieur d'études). L'étudiant sera pleinement impliqué dans la plateforme de spectroscopie optique ultrarapide développée au sein de l'équipe matériaux & lumière et il sera amené à interagir de façon régulière avec tous les membres de l'équipe impliqués dans cette thématique. Nicolas Godin est en charge de tous les développements concernant les environnements échantillons (cryogénie et haute pression) et la spectroscopie laser. Roman Bertoni a une expertise large sur les techniques de spectroscopie optique ultrarapide [2,6,7] et a déjà encadré en laboratoire de nombreux étudiants dans ce champ de recherche.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du laboratoire de recherche international (International Research Laboratory) DYNACOM porté par S.Ohkoshi de l'université de Tokyo et E.Collet de l'université de Rennes 1. Dans ce cadre, des mobilités vers le Japon, où nos collègues ont une expertise mondialement reconnue sur la thématique des effets photo-induits, sont envisageables.

Compétences et connaissances recherchées :

Les candidats devront avoir des connaissances en physique du solide et théorie des transitions de phase. Les candidats devront aussi avoir une connaissance assez poussée des techniques de spectroscopie optiques. Une bonne maîtrise de la programmation, de l'interfaçage et du traitement de données (Python de préférence) sera grandement appréciée. Une très bonne maîtrise de l'anglais est aussi fortement recommandée.

Références :

- [1] E.Collet, et al, *Science*, 300 (5619), 2003
- [2] R.Bertoni, et al, *Nature Materials*, 15 (6), 2016
- [3] M.Mitrano, et al, *Nature*, 530 (7591) 2016
- [4] AH.Zewail, *J. Chem. Phys. A*, 2000
- [5] A.Cantaluppi, et al, *Nature Physics*, 14 (8), 2018
- [6] R.Bertoni, et al, *Angewandte Chemie*, 128 (30), 2012
- [7] R.Bertoni, et al, *Account of Chemical Research*, 48 (3), 2015