

Encadrement :

Directrice : Marina Servol, IPR

Co-directeur : Jean-Christophe Sanglebœuf, IPR

Co-encadrant : Vinh Ta Phuoc, GREMAN

Contact : marina.servol@univ-rennes.fr

Contexte scientifique

Les transitions de phase peuvent être induites soit à l'équilibre par changement graduel de la pression ou de la température soit par des paramètres de contrôles impulsifs comme des impulsions ultrabrèves optiques, THz ou électriques [1, 2, 3]. Dans ces situations de dynamiques ultrarapides, les effets directs du paramètre de contrôle, c'est à dire l'excitation électronique pour l'impulsion optique ou le champ électrique local ultrarapide de l'impulsion THz, ne sont pas les seuls phénomènes à prendre part à la transition [1]. Le caractère impulsif de l'excitation génère une déformation locale du réseau cristallin et induit une onde élastique qui déplace les atomes et change leurs interactions mutuelles. Des états métastables ayant des propriétés physiques différentes peuvent alors prendre naissance et générer la transition de phase. L'implication de ces effets élastiques présente ainsi un caractère universel et doit permettre de mieux comprendre les transitions hors-équilibre, moins bien élucidées que celles à l'équilibre.

Projet

Le but de la thèse est de mettre en lumière le rôle des ondes élastiques photoinduites dans une transition hors-équilibre. En déformant le réseau cristallin, ces ondes sont capables d'agir sur les interactions entre atomes et de faire basculer le matériau dans un état ayant des propriétés différentes de l'état initial. Dans ce projet, nous souhaitons déterminer, pour une transition donnée, les conditions microscopiques à atteindre pour induire la transition. Nous voulons par exemple déterminer quels sont les déplacements atomiques nécessaires en termes de direction ou d'amplitude mais aussi de durée nécessaire de la déformation pour provoquer le basculement qu'il soit transitoire ou permanent.

Nous nous intéresserons en particulier à des transitions isolants-métal dans des matériaux présentant de fortes corrélations électroniques. Dans ce type de matériaux, les interactions coulombiennes entre électrons ne peuvent plus être prises en compte par une simple approximation de champ moyen, comme c'est le cas dans la théorie des bandes. En particulier, les corrélations électroniques peuvent conduire à un état « isolant de Mott » observé expérimentalement, en complète contradiction avec la théorie des bandes qui prédit un métal. À l'équilibre, il est possible de contrôler la transition de cet état isolant vers un état métallique par l'application d'une pression. Ces systèmes sont donc des matériaux d'un grand intérêt pour des études où l'on propage une déformation microscopique de la maille pour induire la transition.

Méthodes

Les expériences seront principalement des expériences pompes-sondes résolues en temps réalisées sur notre installation laser femtosecondes. Pour étudier uniquement l'effet de déformations dynamiques, il est nécessaire de contrôler directement les paramètres de l'onde de déplacement des atomes. Nous avons mis en place un montage expérimental capable de générer optiquement des ondes élastiques unidimensionnelles dont l'amplitude peut être contrôlée au-delà des seuils optiques de dommage des matériaux grâce à l'amplification graduelle de l'onde de déplacement (cf. figure 1). L'intégration de ce système à une expérience pompe-sonde résolue en temps où le phénomène induit est sondé par un second faisceau laser en dehors de la zone d'irradiation optique permettra d'observer la dynamique de la transition induite spécifiquement par l'onde de

déplacement. Les sondes utilisées seront des faisceaux optiques allant jusqu'à l'infrarouge de façon à pouvoir sonder le gap qui peut parfois être faible (de l'ordre de quelques centaines de meV) dans les matériaux corrélés.

Des demandes de temps de faisceau seront également faites sur grands instruments de façon à mettre en œuvre une expérience pompe acoustique-sonde X et à caractériser, par diffraction X, les mouvements à l'échelle atomique lors de la transition. Ces mesures pourront être comparées à des mesures à l'équilibre sous pression et des calculs *ab initio* pourront être menés pour approfondir la vision microscopique du phénomène.

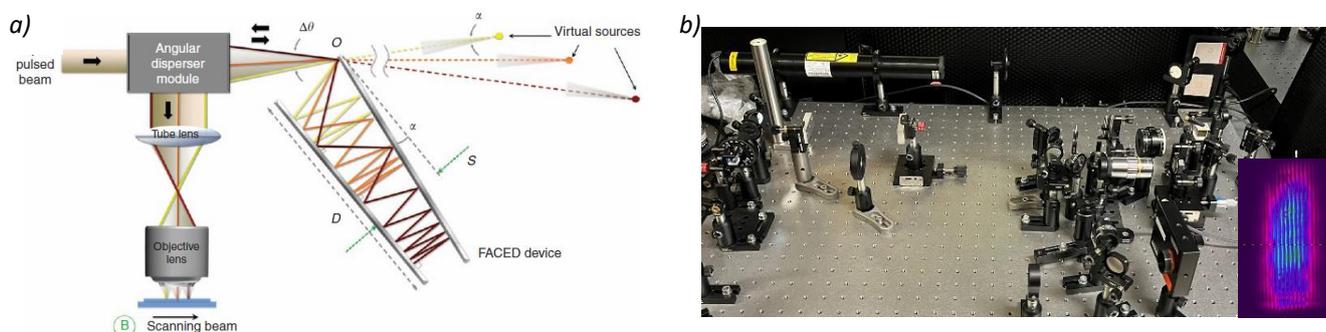


Figure 1 : a) Montage expérimental montrant la paire de miroirs « tiltés » dont le rôle est de diviser le faisceau entrant en de multiples sections qui amplifient l'amplitude de l'onde acoustique à différents instants au cours de sa propagation [5]. b) Set-up expérimental. En encart : imagerie du train d'impulsion sur l'échantillon.

Encadrement

L'encadrement sera assuré par 3 encadrants : Marina Servol, directrice de thèse, apportera ses connaissances en termes de transitions de phase hors équilibre et assurera l'encadrement quotidien au niveau expérimental et analyse de données. Jean-Christophe Sanglebœuf, co-directeur de thèse, contribuera par ses compétences à la compréhension de la réponse des matériaux aux ondes de déformation. Vinh Ta-Phuoc, apportera son expertise pour guider le choix des matériaux et pourra accompagner le doctorant sur des mesures en pression à l'équilibre. Il pourra également mener des calculs de propriétés optiques sous pression par des calculs « *ab initio* ».

Environnement

Le travail de thèse aura lieu au sein du département Matériaux et Lumière de l'Institut de Physique de Rennes. Ce département comprend environ 10 permanents et 7 non-permanents. Les installations expérimentales locales comprennent deux diffractomètres et plusieurs équipements laser femtosecondes amplifiés, une grande partie étant associée à des amplificateurs optiques paramétriques. L'équipe a de très forts liens avec les grands instruments comme l'ESRF et y conduit régulièrement des expériences. Le département est également collaborateur de l'IRL (International Research Laboratory) DYNACOM entre l'Université de Rennes et l'Université de Tokyo.

Compétences et connaissances recherchées

Le candidat doit avoir de bonnes connaissances en physique du solide et être motivé par le fait de mener des expériences sur des montages d'optique en espace libre. Il aura besoin également de connaissance en diffraction X et être prêt à évoluer dans un environnement complexe incluant les grands instruments. Des connaissances en programmation, notamment en Python, seront appréciées.

Références:

- [1] R. Bertoni et al, Nat. Mat. 15 (6), pp. 606-610 (2016)
- [2] G. Huitric et al. Faraday Discuss, 237, 389 (2022)
- [3] F. Tesler et al, PRA, 10, 054001 (2018)
- [4] B. J. Demaske et al., PRB 87, 054109 (2013)
- [5] J-L. Wu et al., Light: Science & Applications 6, 16196 (2017)

Institute of Physique of Rennes

Light and Matter Departement



TITLE : Ultrafast phase transitions generated by photoinduced strain waves

Supervision :

Advisor : Marina Servol, IPR

Co-advisor : Jean-Christophe Sanglebœuf, IPR

Co-supervisor : Vinh Ta Phuoc, GREMAN

Contact : marina.servol@univ-rennes.fr

Scientific background

Phase transitions can be controlled either at equilibrium by changing temperature or pressure or by impulsive control parameters like optical, THz or electrical pulse [1, 2, 3]. In these dynamical cases, not only the initial effects of the control parameter, say electronic excitation for optical pulse, ultrafast and local electric field for THz one generates the transition. Indeed, elastic effects are also involved through the propagation of strains in the material [1]. The impulsive characteristic of the driving pulse creates a local deformation of the crystal lattice, which moves atoms, modifies mutual interactions and can drive fast or ultrafast phase transitions. Metastable states with different physical properties can appear and generate the phase transition. And so, the implication of these elastic effects presents a universal character and should allow to better understand non-equilibrium transitions, which are less elucidated than those at equilibrium.

Project

The thesis aims to highlight the role of photoinduced elastic waves in a non-equilibrium transition. By deforming the crystal lattice, these waves are able to act on the interactions between atoms and to switch the material into a state with properties different from the initial state. In this project, we want to determine the microscopic conditions allowing to induce a transition. For example, we want to determine which atomic displacements are necessary in terms of direction or amplitude but also in term of necessary duration of the deformation to cause the transformation, whether transient or permanent.

We will be particularly interested in insulator-metal transitions in materials exhibiting strong electronic correlations. In this type of materials, Coulomb interactions between electrons can no longer be taken into account by a simple mean field approximation, as it is the case in band theory. In particular, electronic correlations can lead to a “Mott insulator” state, in complete contradiction with the band theory that predicts a metal. At equilibrium, it is possible to control the transition from this insulating state to a metallic state by applying pressure. These systems are therefore materials of great interest for studies where a microscopic lattice deformation is propagated to induce the transition.

Methods

The experiments will be mainly time-resolved pump-probe experiments carried out on our femtosecond laser facility. To study only the effect of dynamic deformation, it is necessary to directly control the parameters of the strain wave. We have set up an experiment able to optically generate one-dimensional elastic waves whose amplitude can be controlled beyond the optical damage thresholds of materials through gradual amplification of the strain wave (see figure 1). This system will be integrated into a time-resolved pump-probe experiment where the induced phenomenon is probed by a second laser beam outside the optical irradiation zone. This way will make it possible to observe the dynamics of the transition induced specifically by the strain wave. The transformation will be probed by optical beams up to infrared to be able to detect gap closing which can be as small as a few hundred meV in the correlated materials.

Beam time on large instruments will be requested to implement an acoustic pump-X-probe experiment in order to characterize, by X-ray diffraction, the movements at the atomic scale during the transition. These measurements can be compared to measurements at equilibrium under pressure and *ab initio* calculations can be carried out to deepen the microscopic vision of the phenomenon.

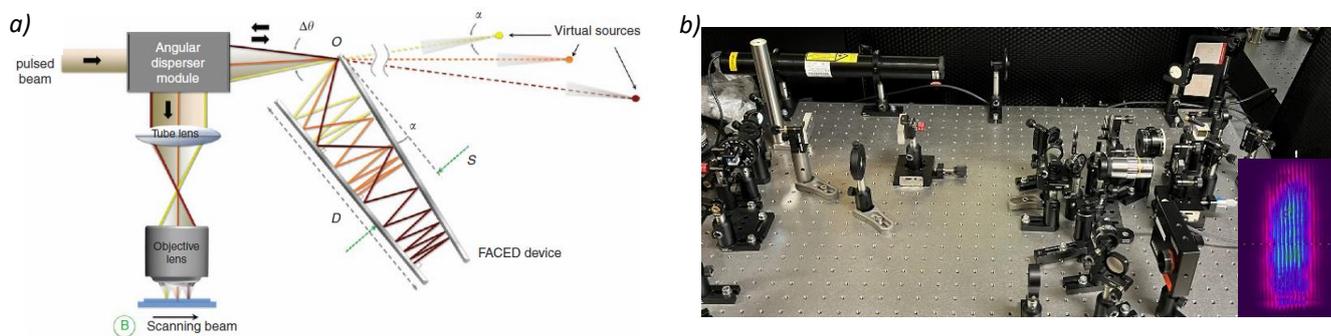


Figure 1: a) Experimental set-up showing the pair of tilted mirrors whose function is to divide the incoming beam into multiple sections amplifying the strain wave at different times during its propagation [5]. b) Transformation of the initial beam after the two mirrors [5].

Supervision

Supervision will associate 3 supervisors: Marina Servol, thesis advisor, will provide her knowledge in terms of non-equilibrium phase transitions and daily supervision at the experimental and data analysis level. Jean-Christophe Sangleboeuf, thesis co-advisor, will contribute by his skills in understanding the response of materials to strain waves. Vinh Ta-Phuoc will provide his expertise to guide the choice of materials and will be able to support the PhD student on equilibrium pressure measurements. He will also be able to carry out calculations of optical properties under pressure using DFT calculations.

Environment

The thesis work will take place within the Materials and Light department of the Institute of Physics of Rennes. This department includes approximately 10 permanent and 7 non-permanent staff. Local experimental facilities include two diffractometers and several amplified femtosecond laser equipments, much of them associated with parametric optical amplifiers. The team has very strong links with major large facilities like ESRF and conducts regularly experiments there. The department is also a collaborator of the IRL (International Research Laboratory) DYNACOM between the University of Rennes and the University of Tokyo.

Skills

The candidate must have good knowledge of solid state physics and be motivated to carry out experiments on optical assemblies in free space. He will also need knowledge in X-ray diffraction and be ready to work in a complex environment including large instruments. Knowledge of programming, particularly in Python, will be appreciated.

References:

- [1] R. Bertoni et al, Nat. Mat. 15 (6), pp. 606-610 (2016)
- [2] G. Huitric et al. Faraday Discuss, 237, 389 (2022)
- [3] F. Tesler et al, PRA, 10, 054001 (2018)
- [4] B. J. Demaske et al., PRB 87, 054109 (2013)
- [5] J-L. Wu et al., Light: Science & Applications 6, 16196 (2017)