

Ultrafast extreme ultraviolet to hard X-ray Pulses as probes of Molecular and Materials Dynamics

M. Chergui

Lausanne Centre for Ultrafast Science, ISIC, Faculté des Sciences de Base, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, CH-1015 Lausanne, Switzerland

The combination of ultrashort optical and short-wavelength pulses has opened fascinating opportunities for the study of the dynamical behaviour of (bio)chemical systems and of materials. In this respect, the past twenty years have witnessed a revolution in science with the advent of X-ray free electron lasers (XFEL) and table-top high harmonic generation (HHG) sources of short-wavelength radiation. I will show the novel capabilities enabled by XFELs, such as photon-in/photon-out methods (X-ray emission spectroscopy and resonant Inelastic X-ray scattering), or non-linear X-ray optical methods.¹⁻³ Thereafter, I will present recent results on the study of charge carrier dynamics of perovskites probed by extreme-UV ultrafast angle-resolved photoelectron spectroscopy (fs-ARPES).⁴

References

- (1) Kinschel, D.; Bacellar, C.; Cannelli, O.; Sorokin, B.; Katayama, T.; Mancini, G. F.; Rouxel, J. R.; Obara, Y.; Nishitani, J.; Ito, H.; Ito, T.; Kurahashi, N.; Higashimura, C.; Kudo, S.; Keane, T.; Lima, F. A.; Gawelda, W.; Zalden, P.; Schulz, S.; Budarz, J. M.; Khakhulin, D.; Galler, A.; Bressler, C.; Milne, C. J.; Penfold, T.; Yabashi, M.; Suzuki, T.; Misawa, K.; Chergui, M. Femtosecond X-Ray Emission Study of the Spin Cross-over Dynamics in Haem Proteins. *Nat. Commun.* **2020**, *11* (1), 4145. <https://doi.org/10.1038/s41467-020-17923-w>.
- (2) Bacellar, C.; Kinschel, D.; Mancini, G. F.; Ingle, R. A.; Rouxel, J.; Cannelli, O.; Cirelli, C.; Knopp, G.; Szlachetko, J.; Lima, F. A.; Menzi, S.; Pamfilidis, G.; Kubicek, K.; Khakhulin, D.; Gawelda, W.; Rodriguez-Fernandez, A.; Biednov, M.; Bressler, C.; Arrell, C. A.; Johnson, P. J. M.; Milne, C. J.; Chergui, M. Spin Cascade and Doming in Ferric Hemes: Femtosecond X-Ray Absorption and X-Ray Emission Studies. *Proc. Natl. Acad. Sci.* **2020**, *117* (36), 21914–21920. <https://doi.org/10.1073/pnas.2009490117>.
- (3) Rouxel, J. R.; Fainozzi, D.; Mankowsky, R.; Rösner, B.; Seniutinas, G.; Mincigrucci, R.; Catalini, S.; Foglia, L.; Cucini, R.; Döring, F.; Kubec, A.; Koch, F.; Bencivenga, F.; Haddad, A. A.; Gessini, A.; Maznev, A. A.; Cirelli, C.; Gerber, S.; Pedrini, B.; Mancini, G. F.; Razzoli, E.; Burian, M.; Ueda, H.; Pamfilidis, G.; Ferrari, E.; Deng, Y.; Mozzanica, A.; Johnson, P. J. M.; Ozerov, D.; Izzo, M. G.; Bottari, C.; Arrell, C.; Divall, E. J.; Zerdane, S.; Sander, M.; Knopp, G.; Beaud, P.; Lemke, H. T.; Milne, C. J.; David, C.; Torre, R.; Chergui, M.; Nelson, K. A.; Masciovecchio, C.; Staub, U.; Patthey, L.; Svetina, C. Hard X-Ray Transient Grating Spectroscopy on Bismuth Germanate. *Nat. Photonics* **2021**, *15* (7), 499–503. <https://doi.org/10.1038/s41566-021-00797-9>.
- (4) Polishchuk, S.; Puppini, M.; Crepaldi, A.; Gatti, G.; Dirin, D. N.; Nazarenko, O.; Colonna, N.; Marzari, N.; Kovalenko, M. V.; Grioni, M.; Chergui, M. Nanoscale-Resolved Surface-to-Bulk Electron Transport in CsPbBr₃ Perovskite. *Nano Lett.* **2022**, *22* (3), 1067–1074. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.1c03941>.

ALD-oxide materials and surface modification for next-generation PV devices

Nathanaelle Schneider^{1,2} Damien Coutancier,^{1,2} Olivier Fournier,^{1,3} Shan-Ting Zhang,^{1,2} Martin Foldyna,⁴ Muriel Bouttemy,^{1,5} François Ozanam,⁶ Jean Rousset,^{1,3} Polina Volovitch,⁷ Jean-François Guillemoles^{1,2}

Affiliations : ¹Institut Photovoltaïque d'Ile de France (IPVF), 18 boulevard Thomas Gobert, 91120, Palaiseau ; ²CNRS, UMR-IPVF 9006, 18 boulevard Thomas Gobert, 91120, Palaiseau ; ³EDF, 18 boulevard Thomas Gobert, 91120, Palaiseau ; ⁴LPICM, CNRS, Ecole Polytechnique, IP Paris, 91128 Palaiseau ; ⁵ Institut Lavoisier de Versailles (ILV), UVSQ, Univ. Paris-Saclay, CNRS, UMR 8180, 78035 Versailles ; ⁶PMC, CNRS, Ecole Polytechnique, IP Paris, 91128 Palaiseau ; ⁷Chimie ParisTech, PSL University, CNRS, Institut de Recherche de Chimie Paris (IRCP), 11 rue Pierre et Marie Curie, Paris 75005.

Photovoltaics are growing rapidly (+30-40% installed volume per year) and is facing many challenges (new usages, 4 to 8 TW capacity by 2050). Hence, academic and industrial communities are developing innovative solar cell architectures involving new materials and interfaces. To build such complicated devices, it is necessary to be able to synthesize nanomaterials with a fine control of the composition, thickness and morphology, under constrained conditions. In this context, ALD (Atomic Layer Deposition) has emerged as a powerful tool because of its unique advantages that I will illustrate by examples on zinc oxide.

This latter is an extensively studied n-type semiconductor for various applications, which often needs to be doped, modified or protected.^[1] ALD-doped-ZnO films can replace conventional transparent conductive oxides (TCO), especially in high aspect ratio structures. The use of ALD-Ti:ZnO (TZO) as the top electrode for radial junction silicon nanowire (Si NW) based solar cells, has proven ALD unique capabilities, showing superior optoelectrical properties, conformally covering the Si NWs, and yielding a PV diode surpassing the conventional ITO top electrode.^[2] Modifying the properties of the ZnO surface by grafting organic molecules such as phosphonic acid derivatives is a way to passivate the reactive interface between ALD-ZnO and a hybrid organic inorganic metal halide perovskite.^[3] Finally, it must be protected to prevent their degradation over the 25 years of utilization. Al:ZnO (AZO) window layer is reported as the primary component responsible for the degradation of CIGS solar cells. While the feasibility to encapsulate module-level (10×10 cm²) CIGS solar devices by a 10 nm ALD-Al₂O₃ barrier layer was demonstrated,^[4] solar panels in field operation are also exposed to various chemical air pollutants. Their effects were studied and demonstrated the necessity to consider atmospheric chemistry when assessing the durability of PV materials and devices.^[5]

Références

- [1] Z. L. Wang, *J. Phys. Condens. Matter* **2004**, *16*, R829.
- [2] D. Coutancier et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2020**, *12*, 21036–21044.
- [3] O. Fournier, et al., *ACS Appl. Energy Mater.* **2021**, *4*, 5787–5797.
- [4] S.-T. Zhang et al., *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **2021**, *222*, 110914.
- [5] S.-T. Zhang et al., *Prog. Photovolt. Res. Appl.* **n.d.**, *n/a*, DOI 10.1002/pip.3527.

Effet de débits de dose extrêmes dans le régime femtoseconde, dans l'eau avec des électrons relativistes.

Gérard Baldacchino

CEA LIDYL (CEA-CNRS-Université Paris Saclay)

L'intérêt pour les débits de dose élevés de faisceaux d'électrons pour la radiothérapie du cancer (RT) est apparu il y a quelques années avec la découverte de la FLASH RT. Cette nouvelle modalité RT implique des irradiations par des impulsions électrons accélérés des cellules tumorales. La durée des impulsions est alors de l'ordre de la milliseconde. Des impulsions plus courtes provoquant un débit de dose beaucoup plus grand ont été apportées par les nouveaux accélérateurs à plasma laser, qui fournissent des paquets d'électrons de plusieurs dizaines de MeV, avec une durée ultracourte de 100 fs. La question se pose alors de leur pertinence pour la RT. Des investigations par des radiobiologistes ont déjà initiées. Les molécules d'eau étant les principales cibles du corps vivant, il est normal de s'intéresser en priorité aux processus physico-chimiques qui sont engendrées par ces impulsions dans ce milieu. C'est primordial pour comprendre l'impact ultérieur au stade biologique, et éventuellement clinique.

Une étude préliminaire récente que nous avons menée au LIDYL sur la plateforme UHI100 a montré que les rendements radiolytiques des radicaux radio-induits, et en particulier l'électron hydraté, diminuent considérablement contrairement à ceux obtenus avec la même méthode sous des rayonnements conventionnels. C'est la première fois que cela est observé ou que ces rendements sont mesurés, avec ce type d'accélérateur. Nous suggérons d'expliquer cet énorme effet de débit de dose par le fait qu'il se produise avant l'étape de relaxation des états excités. L'effet se traduirait par un taux plus élevé de formation d'eau excitée accompagné de chaleur. On s'attend à ce que l'étape de radiobiologie soit impactée puisque le stress oxydatif est alors diminué. Dans une certaine mesure, ce résultat devrait améliorer l'efficacité de la RT et le confort du patient.