



HAL
open science

Dynamique magnéto-optique ultra-rapide dans le système Au/Co/Au

Arnaud Labourt-Ibarre

► **To cite this version:**

Arnaud Labourt-Ibarre. Dynamique magnéto-optique ultra-rapide dans le système Au/Co/Au. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. Français. NNT : . tel-00087103

HAL Id: tel-00087103

<https://theses.hal.science/tel-00087103>

Submitted on 21 Jul 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THÈSE de DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ PARIS 6

Spécialité : Physique des Solides

présentée par

Arnaud LABOURT-IBARRE

pour obtenir le grade de DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS 6

**Dynamique magnéto-optique ultra-rapide
dans le système Au/Co/Au**

Soutenue le 11 Juillet 2006

Jury composé de :

M.	Jean-Yves Bigot	Rapporteur
M.	Olivier Fruchart	Rapporteur
M.	Jean-Marc Frigerio	Président
M.	Fabrice Vallée	Examineur
M.	Christophe Voisin	Membre invité
M.	Claude Delalande	Directeur de thèse

Remerciements

Le travail de thèse rapporté dans ce manuscrit s'est déroulé au Laboratoire Pierre Aigrain de l'ENS, de septembre 2002 à juillet 2006. Je remercie son directeur, Claude Delalande, de m'y avoir accueilli et fait bénéficier des conditions de recherches exceptionnelles qui y règnent.

Je remercie vivement les membres du jury : Jean-Yves Bigot et Olivier Fruchart pour avoir accepté le rôle de rapporteurs de ce manuscrit, Jean-Marc Frigerio celui de président du jury, et Fabrice Vallée celui d'examineur. Merci pour l'intérêt que vous avez manifesté pour ce travail en acceptant de prendre part au jury.

J'ai eu la chance rare d'avoir eu un encadrement très particulier au cours de cette thèse en les personnes de Claude Delalande, Philippe Roussignol, Christophe Voisin et Christos Flytzanis :

- merci de nouveau à toi Claude, mais cette fois-ci pour avoir été mon directeur de thèse. Tes qualités scientifiques, ta capacité à toujours extraire la bonne info et à poser les bonnes questions m'ont beaucoup aidé dans ce travail. Tes qualités humaines m'ont également beaucoup servi : tu m'as appris que rien n'est impossible.
- merci à toi Philippe, pour m'avoir accueilli dans ton groupe et pour avoir veillé au bon déroulement de la thèse, que ce soit pour des questions logistiques, scientifiques ou humaines.
- un grand merci à toi Christophe de m'avoir encadré au jour le jour sans jamais m'étouffer. Je te suis très reconnaissant de toute l'aide que tu m'as apportée. Cette dernière année a été particulièrement chargée pour toi : malgré tes nombreuses activités, tu as été présent. Je suis conscient de ta capacité de travail et de ton efficacité.
- un grand merci aussi à Christos Flytzanis. C'est toi le père « penseur » de ce projet. Tu incarnes pour moi le véritable philosophe où la racine « -sophe » prend toutes les définitions : savoir, sagesse et sciences. En plus de tes immenses qualités scientifiques, j'ai beaucoup apprécié et autant tes qualités humaines. Ton optimisme et ton sens humain m'ont permis de tenir bon et merci pour toutes les discussions que nous avons eues, qu'il s'agisse de physique ou pas.

J'aimerais également remercier Jérôme Tignon et Guillaume Cassabois, les deux derniers chefs de l'équipe pour leur aide scientifique : Jérôme pour l'emprunt de ton matériel et Guillaume pour ta collaboration.

J'ai également bénéficié de l'aide de chercheurs extérieurs au Laboratoire, des aides ponctuelles mais très précieuses puisqu'elles ont constitué une véritable base pour mon travail. Je tiens à remercier vivement et chaleureusement Pierre Beauvillain de l'IEF pour l'échantillon finalement trouvé (ouf) et ta collaboration. J'ai eu un grand plaisir à venir caractériser les échantillons sur

ton set-up. Grâce à toi, nous avons pu prendre contact avec Jacques Ferré et Štefan Višňovský. Je remercie Jacques Ferré pour nous avoir cédé l'échantillon que Pierre lui avait procuré, et Štefan Višňovský pour m'avoir facilité la tâche dans la vérification de mes programmes informatiques. Merci à tous les trois pour votre aide scientifique sur la compréhension du sujet. Lorsque cette thèse allait « mal », où l'on avait abandonné le premier choix de système, j'ai été très gentiment accueilli par Albert Fert et son équipe. J'ai eu la chance de pouvoir leur exposer mon sujet de thèse. Merci à Albert Fert et à Frédéric Petroff de m'avoir proposé un système différent à étudier. Je remercie également Maarten van Kampen pour nos échanges e-mails. Ton manuscrit de thèse a remplacé trop souvent certains de mes livres de chevet. Merci à Jean-Yves Bigot de nous avoir fourni un échantillon témoin pour valider notre dispositif expérimental. L'accueil toujours enthousiaste ainsi que la volonté de faire avancer la science tiennent peut-être à cette communauté du magnétisme qui comporte des chercheurs exceptionnels tant sur les plans scientifiques qu'humains.

La réalisation du dispositif expérimental a nécessité de faire appel au savoir-faire de nombreux techniciens et ingénieurs : merci beaucoup aux ateliers des services mécaniques et d'électronique. Pascal Morfin, Martial Nicolas et Laurent Réa, les trois mousquetaires de la méca m'ont confectionné toutes les pièces optiques et ont toujours répondu rapidement à mes urgences. Merci pareillement à leurs homologues David Darson, Anne Denis et Philippe Pace pour la partie électronique. Je n'oublie pas non plus Michael Rosticher pour la réalisation du film d'or, les cryogénistes Olivier Andrieu et Willy Daney de Marcillac, les administratifs Anne Matignon et Fabienne Renia, les services généraux Xavier Monnin, Francis Hulin-Hubard et Stéfano Lun Kwong Leon ainsi que Nicolas Régnauld chercheur au LPA pour avoir « sauvé » mon ordinateur. Interagir avec vous tous a été un grand plaisir pour moi.

Comment oublier Yves Güldner ? J'ai fait partie de son équipe d'enseignants à Jussieu dans le cadre de mon monitorat. J'ai été très bien accueilli par cette équipe d'enseignants (Pierre Desbiolles, Patrick Viellefosse, Anke Lindner, Agnès Huynh et Sébastien Marchand). Je salue également toute ton équipe de chercheurs toujours très gentille avec moi (Sophie Hameau, Louis-Anne de Vaultier, Vanessa Preisler et Nicolas Peré-Laperne). Quant à toi, Yves, je n'oublierai jamais ton accueil, ta sympathie, ton soutien et toutes nos discussions. J'ai été très honoré de croiser ta route.

Une pensée chaleureuse aussi à mes camarades thésards et post-docs. Sur la mézanine : Alice, Carole, Gregor, Ivan, Jean-Sébastien, Maud, Sébastien et Zhen-Yu. Dans le grand hall : Aleks, Arnaud, Bertrand, Bo, Marilza, Michael, Nicolas, Phuong et Thomas. Nos discussions ont souvent été très animées (points de vue différents), mais non moins intéressantes et édifiantes. J'aimerais aussi remercier deux de nos stagiaires, Guillaume et Henri-David. Vos spontanéité et amitié ont été vraiment importantes pour moi.

Comment oublier : Anne-Laure, Audrey, Chrystelle, Etienne, Florence, François-Clément, Isabelle, Jean-Noël, Joe, Julien, Hakim, Mathieu, Mathilde, Olivier, Romain, Sébastien, Thierry, Yacine.. nous avons partagé longtemps notre bâton de pèlerin. Enfin, un immense merci à mes parents pour leur soutien et leur compréhension.

Table des matières

Introduction générale	15
1 Propriétés magnétiques et magnéto-optiques de films magnétiques ultraminces	21
1.1 Magnétisme des films ultraminces magnétiques	21
1.1.1 Modifications des propriétés magnétiques pour des couches ultraminces	22
1.1.2 Anisotropie magnétique	24
1.1.3 Cycles d'hystérésis et direction de facile aimantation	26
1.2 Les effets Kerr magnéto-optiques en statique	27
1.2.1 Définition des effets Kerr magnéto-optiques	27
1.2.2 Description phénoménologique des effets Kerr magnéto-optiques	29
1.2.3 Description microscopique des effets Kerr magnéto-optiques	31
1.2.4 Calculs magnéto-optiques dans des multicouches magnétiques à aimantation perpendiculaire	33
1.3 Mise hors d'équilibre des films métalliques	37
1.3.1 Retour à l'équilibre pour l'or	38
1.3.2 Retour à l'équilibre pour des métaux de transition	43
1.3.3 Dynamique de spins	43
1.4 Conclusion	46
2 Le système Au/Co/Au en régime quasi-statique	47
2.1 Description de l'échantillon	47
2.2 Dispositif expérimental de caractérisation magnéto-optique de l'échantillon	48
2.2.1 Technique de mesure : le modulateur photo-élastique	49
2.2.2 Le modulateur photo-élastique dans la configuration 0°	49
2.2.3 Dispositif et protocole expérimentaux de mesures des cycles d'hystérésis	50
2.3 Caractérisation magnéto-optique de l'échantillon Au/Co/Au	52
2.3.1 Evolution qualitative des cycles d'hystérésis avec l'épaisseur de cobalt	52
2.3.2 Comparaison au calcul de la réponse magnéto-optique	53
2.3.3 Dépendance en température de la rotation Kerr à rémanence	56
2.4 Conclusion	58
3 Techniques expérimentales de mesure en dynamique	61
3.1 Les sources d'impulsions optiques femtosecondes	61

3.1.1	L'oscillateur Ti :Saphir, le Vitesse	61
3.1.2	L'amplificateur régénératif, le RegA	62
3.1.3	L'amplificateur paramétrique optique, l'OPA	63
3.2	Techniques de mesures pompe-sonde	66
3.2.1	Principe d'une mesure pompe-sonde	66
3.2.2	Principe d'un dispositif pompe-sonde à deux couleurs	68
3.2.3	Mesure de changement de transmission et de réflexion par détection syn- chrone différentielle	68
3.2.4	Mesure de changement de rotation et ellipticité Kerr par double modulation	70
3.2.5	Dispositif expérimental et protocoles pour les différentes mesures pompe- sonde	74
3.2.6	Etude de l'obtention de la variation relative du signal Kerr et de la tech- nique de mesure en double démodulation	76
3.3	Conclusion	86
4	Le système Au/Co/Au en régime dynamique	89
4.1	Mesures optiques et changements de constantes diélectriques	89
4.1.1	Position du problème	89
4.1.2	Calcul des coefficients de la matrice reliant les variations des termes diélec- triques aux grandeurs optiques	91
4.1.3	Estimation des ordres de grandeurs relatifs des variations des constantes diélectriques	92
4.1.4	Au/Co/Au : un système découplé	97
4.1.5	Deuxième alternative : utilisation d'un film mince d'or	99
4.2	Etude de la dynamique du gaz électronique dans le système Au/Co/Au	100
4.2.1	Mise hors équilibre du gaz d'électrons	100
4.2.2	Rôle du cobalt dans la thermalisation interne du gaz d'électrons	103
4.2.3	Rôle du cobalt dans la thermalisation externe du gaz d'électrons	108
4.2.4	Conclusion	113
4.3	Etude de la dynamique magnéto-optique du système Au/Co/Au	114
4.3.1	Validation d'une mesure pompe-sonde sur les films magnétiques	114
4.3.2	Etude de la dynamique d'aimantation du système multicouches	116
4.3.3	Comparaison des évolutions des parties réelle et imaginaire de $\epsilon_{Co,xy}$	119
4.3.4	Origines des artefacts magnéto-optiques	122
4.3.5	Etude en épaisseur de cobalt	125
4.3.6	Protocoles futurs pour accéder à la dynamique de désaimantation	126
4.3.7	Choix d'un autre matériau magnétique	127
4.4	Conclusion	127

Table des figures

1	Figure extraite de la référence [5] montrant la réponse temporelle magnéto-optique d'un film mince ferromagnétique à l'échelle picoseconde.	17
1.1	Densité d'états en fonction de l'énergie pour les bandes de conduction d'un métal ferromagnétique comme le cobalt qui est un métal ferromagnétique fort. La bande de conduction 3d est polarisée en spin, d'où l'apparition d'une aimantation spontanée pour le matériau.	22
1.2	Figure illustrant le critère de Stoner. En (a), on considère un état non magnétique où la densité d'états est la même pour les deux directions de spin. En (b), on transfère des électrons entre les deux sous-bandes pour former un état magnétique. La solution magnétique est stable par rapport à la solution non magnétique si l'augmentation de l'énergie cinétique ΔE_{cin} est plus faible que le gain en énergie d'échange $\Delta E_{\text{éch}}$: $\Delta E_{\text{cin}} + \Delta E_{\text{éch}} < 0$ avec $\Delta E_{\text{cin}} = n(E_{\text{F}})(\delta E)^2$ et $\Delta E_{\text{éch}} = -J_{\text{ex}}n(E_{\text{F}})^2(\delta E)^2$. D'où le critère de Stoner : $J_{\text{ex}}n(E_{\text{F}}) > 1$ [19].	22
1.3	Définition des notations prises pour décrire le film de cobalt : l'axe perpendiculaire au plan du film est confondu avec l'axe \mathbf{c} du réseau hexagonal du cobalt. t_{Co} est l'épaisseur de la couche. θ est l'angle que fait l'aimantation \mathbf{M} avec l'axe \mathbf{c}	24
1.4	Allures des cycles d'hystérésis en champ magnétique perpendiculaire au plan de la couche ferromagnétique. M_{\perp} désigne la composante perpendiculaire de l'aimantation \mathbf{M} au plan du film, donc parallèle au champ magnétique extérieur \mathbf{H}_{ext}	27
1.5	Les trois configurations de base des effets Kerr magnéto-optiques : (a) polaire, (b) longitudinal (\mathbf{M} est dans le plan d'incidence et n'a pas de composante perpendiculaire), (c) transverse (\mathbf{M} est perpendiculaire au plan d'incidence).	28
1.6	Représentation de l'état de polarisation de l'onde réfléchie.	29
1.7	Figure extraite de [28] permettant d'illustrer le dichroïsme circulaire induit par le couplage spin-orbite et l'interaction d'échange. En (a), l'effet de l'interaction d'échange seule sur les niveaux électroniques. En (b), l'effet du couplage spin-orbite seul (sans interaction d'échange). En (c), la conjugaison des effets de l'interaction d'échange et du couplage spin-orbite. L'action de l'interaction d'échange a été négligée sur les niveaux p. Seules les transitions vers l'orbitale p de nombre quantique magnétique $m = 0$ ont été représentées. En (c), on voit que les transitions avec absorption d'un photon σ_{+} ne sont pas compensées par les transitions avec absorption d'un photon σ_{-}	32

1.8	Structure d'une multicouche : la couche j (pour j compris entre 1 et N) a pour épaisseur t_j ($t_j = z_j - z_{j-1}$). Les deux milieux ($z < z_0$) et ($z > z_N$) sont des milieux optiquement isotropes semi-infinis.	35
1.9	Schéma de principe de la mise hors d'équilibre de l'or : création d'une distribution électronique athermale via l'absorption intrabande de l'impulsion pompe par les électrons de conduction.	39
1.10	Diagramme de collision entre deux quasi-particules.	40
1.11	Diagramme de collision entre un électron et un phonon.	41
1.12	Schéma de l'état du matériau ferromagnétique juste après excitation optique. On a considéré un métal ferromagnétique partiellement polarisé (cas du cobalt). . . .	44
1.13	Modèle à 3 températures : la relaxation d'un métal ferromagnétique résulte de la distribution d'énergie injectée entre trois réservoirs interagissant entre eux.	44
2.1	Schéma de la structure de la multicouche Au/Co/Au. L'échelle n'est pas respectée.	48
2.2	Montage du modulateur photo-élastique dans la configuration 0° : une onde d'état de polarisation elliptique (α, η) arrive sur le modulateur photo-élastique auquel est accolé un analyseur. Les différents repères sont pris par rapport aux axes optiques du modulateur.	49
2.3	Schéma du montage des mesures de rotation Kerr et ellipticité Kerr. Les angles au niveau de l'entrefer sont exagérés.	50
2.4	Schéma du montage du polariseur P.	51
2.5	Exemples représentatifs de cycles d'hystérésis brut et corrigé : en (a) cycle brut et en (b) cycle corrigé.	52
2.6	Allures des cycles d'hystérésis de l'échantillon Au/Co/Au pour deux épaisseurs de cobalt t_{Co} : en (a) $t_{Co}=5$ PA et en (b) $t_{Co}=11$ PA.	53
2.7	En (a) : $\alpha_{\text{rém}}/\alpha_{\text{sat}}$ en fonction de t_{Co} . En (b) : variation de $\alpha_{\text{rém}}$ en fonction de la position sur l'échantillon.	54
2.8	Variation de la rotation Kerr polaire à saturation α_{sat} en fonction de t_{Co} dans la plage correspondant à une anisotropie perpendiculaire. La longueur d'onde de sonde vaut $\lambda=500$ nm. Les valeurs expérimentales sont en carrés noirs, la ligne rouge est l'ajustement de ces points par une loi affine. Les carrés blancs représentent les valeurs calculées dans le cadre du modèle multicouches Au/Co/Au/verre.	56
2.9	Courbes de dispersion calculées de la réponse magnéto-optique de la structure Au(15 PA)/Co(6 PA)/Au(28 nm)/verre. En (a) : T. En (b) : R. En (c) : α_K . En (d) : η_K	57
2.10	Comparaison de la dépendance en température de l'aimantation du cobalt (trait plein) et de celle de la rotation Kerr à saturation (cercles). La rotation Kerr à saturation a été normalisée par la valeur calculée dans le cadre du modèle multicouches Au/Co/Au/verre. Inset : mêmes grandeurs sur une autre échelle de température.	58
3.1	Représentation schématique de l'amplificateur paramétrique optique.	65
3.2	Schéma de principe d'une mesure pompe-sonde.	66

3.3	Exemple représentatif de signal de corrélation croisée pompe-sonde (carrés). Dans cet exemple, la sonde est à 530 nm. L'ajustement par une gaussienne est donné en trait continu.	67
3.4	Schéma de principe de mesure pompe-sonde en transmission par détection synchrone différentielle.	69
3.5	Principe de la mesure en double démodulation.	71
3.6	Schéma du montage des mesures pompe-sonde en transmission, réflexion, rotation Kerr et ellipticité Kerr. Sur ce schéma, on voit les branchements pour une mesure pompe-sonde en rotation complexe Kerr par double démodulation avec mesure différentielle.	74
3.7	Réglages de la chaîne de détections synchrones : la première détection synchrone filtre la plage spectrale $[\omega_c-1/\tau_{DS1}, \omega_c+1/\tau_{DS1}]$. La deuxième placée en série est référencée au modulateur optique ω_c	75
3.8	Schéma du dispositif de détection utilisé pour vérifier la différence numérique. Expérience I : mesure pompe-sonde en double démodulation afin de lire une tension proportionnelle au changement de réflexion de l'or. Expérience II : mesure pompe-sonde du changement de réflexion au moyen d'un photodétecteur référence et d'une simple modulation. Expérience III : on effectue la soustraction entre le signal mesuré en I et du signal mesuré en II.	77
3.9	Mise en évidence expérimentale de la validité de la différence numérique. En (a) : changement de réflexion transitoire $\Delta R(\tau)$ mesuré dans les expériences I et II. En (b) : graphes des différences expérimentale et numérique.	78
3.10	Etude du protocole de mesure de la rotation Kerr en dynamique (première partie). En (a) : variation relative de la réflexion mesurée par les mesures I et II. En (b) : variation de la rotation Kerr obtenue par les expériences IV et V en tournant le modulateur photo-élastique.	81
3.11	Etude du protocole de mesure de la rotation Kerr en dynamique (seconde partie). En (a) : changement transitoire de la rotation Kerr obtenu par les expériences III et IV. En (b) : agrandissement de la figure (a) pour la plage temporelle [-0,1 ps - 2,5 ps].	82
3.12	Etude du protocole de mesure de l'ellipticité Kerr en dynamique (première partie). En (a) : variation relative de la réflexion mesurée par les mesures I et II. En (b) : variation de l'ellipticité Kerr obtenue par les expériences IV et V en tournant le polariseur P.	83
3.13	Etude du protocole de mesure de l'ellipticité Kerr en dynamique (seconde partie). En (a) : changement transitoire de l'ellipticité Kerr obtenu par les expériences III et IV. En (b) : agrandissement de la figure (a) pour la plage temporelle [-0,1 ps - 2,5 ps].	84
3.14	Etude de la division pour s'affranchir de la soustraction numérique.	85

3.15	Validation de la technique de mesure en double démodulation par des mesures sur un échantillon « témoin » (CoPt ₃). En (a) : variations relatives de la rotation Kerr $\Delta\alpha/\alpha_0$ (en triangles vides Δ) et de l'ellipticité Kerr $\Delta\eta/\eta_0$ (en triangles remplis \blacktriangle) que nous avons obtenues en sondant à $\lambda = 500$ nm. En (b) : nous avons reproduit la figure 5 de [95] qui représente les variations relatives des rotations complexes Kerr et Faraday mesurées à deux longueurs d'onde différentes (530 nm et 620 nm). Les triangles pleins (\blacktriangle) représentent l'évolution temporelle de l'ellipticité Kerr $\Delta\eta/\eta_0$ que nous avons obtenue pour une longueur d'onde de sonde égale à 500 nm. Notre mesure a été normalisée de manière à ce que l'amplitude maximum soit égale à celle des mesures de la référence [95].	87
4.1	Dispersion des coefficients de proportionnalité de la matrice 4.1 qui relie les changements de transmission, de réflexion, de rotation Kerr et ellipticité Kerr aux changements de la constante diélectrique de l'or ε_{Au} et du tenseur diélectrique du cobalt $[\varepsilon_{\text{Co}}]$. Les notations sont explicitées dans le texte.	93
4.2	Structure de bandes schématique de l'or et transitions optiques impliquées dans la réponse non linéaire pour une énergie du photon de pompe égale à 1,55 eV et une énergie du photon de sonde de 2,4 eV. L'impulsion pompe infrarouge perturbe la surface de Fermi. L'impulsion sonde d'énergie voisine du seuil des transitions interbandes de l'or permet de suivre l'évolution de la relaxation la mer de Fermi. $\hbar\Omega_{\text{ib}}$ désigne le seuil des transitions interbandes.	95
4.3	Figure extraite de [54] représentant les changements calculés après une picoseconde des constantes diélectriques réelle et imaginaire dans un film d'or pour un flux incident de $120 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ et une durée des impulsions de 20 fs. En (a) : le changement de la constante diélectrique réelle de l'or ε'_{Au} est représenté en trait plein. Le changement de la partie imaginaire $\varepsilon''_{\text{Au}}$ est en pointillés. En (b) : agrandissement de (a) pour l'axe des ordonnées.	96
4.4	Schéma de la structure de bandes du cobalt : l'absorption de l'impulsion pompe (d'énergie 1,55 eV) est à la fois inter et intrabande. L'impulsion sonde d'énergie voisine de 2,4 eV est fortement décalée en énergie vers le bleu par rapport au seuil des transitions interbandes du cobalt $\omega_{\text{seuil}}=0,6$ eV.	96
4.5	Etude spectrale des changements de transmission et de réflexion (première partie). Les carrés représentent l'évolution temporelle de la réponse optique du système multicouches, les cercles l'évolution de la réponse optique du film d'or et les + la corrélation croisée pompe-sonde. Comme les densités d'énergie ne sont pas identiques entre les mesures sur le film d'or et sur le système multicouches, les signaux sont normalisés. ω_s est l'énergie du faisceau de sonde.	105

4.6	Etude spectrale des changements de transmission et de réflexion (seconde partie). Les carrés représentent l'évolution temporelle de la réponse optique du système multicouches, les cercles l'évolution de la réponse optique du film d'or et les + la corrélation croisée pompe-sonde. Comme les densités d'énergie ne sont pas identiques entre les mesures sur le film d'or et sur le système multicouches, les signaux sont normalisés. ω_s est l'énergie du faisceau de sonde.	106
4.7	Détermination du temps de thermalisation des électrons thermalisés dans un film d'or. L'énergie du photon de sonde vaut 2,47 eV. Les carrés représentent le changement de réflexion $\Delta R/R_0$ normalisé, l'ajustement de la courbe par la convolution de la fonction réponse $\text{Rép}(t)$ et la corrélation croisée pompe-sonde est en trait plein. La corrélation croisée pompe-sonde est en +.	108
4.8	Figure illustrant la méthode d'extraction du taux de relaxation électron-phonon. En (a) : changement transitoire en transmission du système multicouches obtenu à une énergie du photon de sonde égale à 2,3 eV. En (b) : $\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}/\varepsilon'_{\text{Au}}(\tau) - \Delta\varepsilon'_{\text{Au}}/\varepsilon'_{\text{Au}} _L$ en échelle semi-logarithmique où $\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}/\varepsilon'_{\text{Au}} _L$ est la valeur du changement relatif de transmission pris à 4 ps. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA.	110
4.9	Dépendance du taux de relaxation électrons-phonons en fonction de la puissance de pompe moyenne. Les carrés pleins représentent les valeurs obtenues pour le système multicouches, les cercles celles pour le film d'or. L'énergie du photon de sonde vaut 2,3 eV. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA.	111
4.10	En échelle semi-logarithmique, changement de transmission induit par la pompe pour le système multicouches (carrés pleins) et pour le film d'or (cercles). Le photon de sonde a une énergie de 2,3 eV. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA.	112
4.11	Dépendance du taux de relaxation électron-phonon Γ_p du système multicouches en fonction de l'épaisseur du cobalt. L'énergie du photon de sonde vaut 2,3 eV, le cobalt a une épaisseur de 4 PA. Les valeurs expérimentales de Γ_p sont en carré plein. Le cercle à épaisseur de cobalt nulle représente le taux de relaxation électron-phonon mesuré dans le film d'or. La ligne noire est l'ajustement de ces points par une loi affine d'équation $y = 0,157x + 0,802$	113
4.12	Modification du cycle d'hystérésis induite par la pompe : en carré, le cycle d'hystérésis de l'échantillon pompe bloquée. En cercle, le cycle d'hystérésis de l'échantillon pour un retard pompe-sonde τ nul. En triangle, le cycle obtenu pompe débloquée avec un retard pompe-sonde négatif $\tau = -5$ ps. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA.	115
4.13	Exemple représentatif d'évolution temporelle de la réponse magnéto-optique du système multicouches Au/Co/Au. En (a) : $\Delta T/T_0$. En (b) : $\Delta R/R_0$. En (c) : $\Delta\alpha/\alpha_0$. En (d) : $\Delta\eta/\eta_0$. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA, l'énergie du photon de sonde vaut 2,47 eV.	118

4.14	Comparaison entre les évolutions temporelles pompe-sonde des changements relatifs des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$. Chaque figure correspond à une énergie de photon de sonde donnée. Les carrés représentent les valeurs expérimentales pour $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$, les cercles celles pour $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ et les points + le signal de corrélation croisée pompe-sonde. L'épaisseur de cobalt vaut 6 PA pour la structure multicouches. Les études aux différentes énergies de sonde ont été menées à une puissance de pompe moyenne égale à 30 mW.	120
4.15	Schéma de la structure de bandes du cobalt : l'absorption de l'impulsion pompe (d'énergie 1,55 eV) permet de peupler des états électroniques fortement énergétiques.	124
4.16	Evolution des pics principaux et secondaires des variations relatives des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. En (a) pic principal de la variation relative de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$, en (b) le pic secondaire. En (c) pic principal de la variation relative de $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$, en (d) le pic secondaire.	125

Introduction générale

Depuis quelques années, les progrès technologiques de croissance ont permis la réalisation de multicouches métalliques constituées de couches magnétiques ultraminces (quelques plans atomiques, soit l'échelle nanométrique). Les propriétés magnétiques étant très sensibles à l'environnement local, de nombreuses propriétés physiques différentes de celles des matériaux massifs sont apparues dans ces nouvelles structures telles que :

- l'anisotropie magnétique due aux interfaces où la mise en contact de deux matériaux peut faire apparaître un axe de « facile » aimantation perpendiculairement au plan de l'interface.
- le couplage de couches magnétiques entre elles au moyen d'un film métallique amagnétique. Le couplage peut être ferro ou antiferromagnétique selon l'épaisseur de la couche médiatrice.
- la magnéto-résistance géante où un champ magnétique extérieur peut faire varier la résistance de la structure de plus de 80 %.

Comme outil d'investigation des propriétés magnétiques de ces structures multicouches, la rotation Kerr magnéto-optique a trouvé une place de choix. Cet effet qui repose sur le pouvoir rotatoire des matériaux aimantés (rotation et déformation de la polarisation de l'onde lumineuse réfléchie) présente de nombreux intérêts :

- il constitue un système de mesure n'ayant pas besoin d'être en contact avec le système d'étude. Ce dernier peut donc être caractérisé au cours de la croissance, dans le bâti de fabrication.
- il est d'une sensibilité remarquable. L'optique permet des mesures ellipsométriques fines (millidegré) et les pouvoirs rotatoires des matériaux aimantés sont importants (centième de degré par nanomètre).
- il permet d'accéder à de nombreux renseignements physiques tels que le caractère des interfaces et les structures cristalline et électronique des films.

Une autre thématique fortement développée autour de ces structures magnétiques confinées est l'étude de leurs propriétés magnétiques dans le régime dynamique. Il s'agit de comprendre les mécanismes fondamentaux de renversement des aimantations ainsi que leurs limites temporelles. Ces questions ne manqueront pas de trouver des applications dans l'industrie du stockage d'information où l'efficacité temporelle d'inscription des données est un enjeu majeur. La méthode de retournement d'une aimantation par précession dans un champ magnétique modéré conduit à des temps limites de renversement de l'ordre de la nanoseconde. Afin d'étudier le problème du temps ultime de manipulation de l'aimantation, plusieurs techniques sont proposées parmi lesquelles l'optique occupe une place de choix grâce aux impulsions ultracourtes.

Parmi les premières expériences de dynamique de spins photo-induite, on peut citer les travaux d'Agranat et al. au milieu des années 80 [1]. Ces derniers ont porté un film de nickel hors équilibre au moyen d'impulsions laser intenses ultracourtes de durée variable (accordables dans la plage picoseconde-nanoseconde) et ont mesuré le contraste magnéto-optique rémanent après passage de ces impulsions laser en utilisant un laser continu. Aucune modification de l'état magnéto-optique du matériau n'a été observée pour des impulsions de durée picoseconde. Cependant, pour des impulsions nanoseconde, la région excitée optiquement s'est désaimantée. Il a été conclu que le temps de relaxation de spin dans le nickel était compris entre 1 et 40 nanosecondes.

Au début des années 90, Vaterlaus et al. ont mis en œuvre des techniques de mesure « pompe-sonde » pour étudier la dynamique de spins dans des films de gadolinium [2, 3]. Dans ce type d'expérience, une première impulsion optique énergétique dite « pompe » porte le système d'étude hors d'équilibre. Après un certain retard temporel Δt , une seconde impulsion dite « sonde » de faible intensité mesure l'état du système. Vaterlaus et al. ont utilisé des impulsions laser de durée 10 ns pour les impulsions pompe et des mesures de photo-émission résolue en spin ont été réalisées au moyen des impulsions sonde. Un temps de relaxation de 100 ± 80 ps a été trouvé pour le système de spins et une désaimantation de 80 % du film de gadolinium a été obtenue. Des expériences similaires sur un film de nickel ont permis de borner le temps de relaxation de spin entre 30 ps et 20 ns. De tels temps de relaxation sont en accord avec des modèles théoriques reposant sur le couplage spin-réseau [4]. Ainsi, l'utilisation d'impulsions laser picoseconde a permis de rendre compte d'une désaimantation de films magnétiques sur des échelles de temps de 0,1 à 1 ns et de conclure que la relaxation de spin est conduite par le réseau.

Le développement de sources optiques délivrant des impulsions femtosecondes a permis de poursuivre ces travaux et d'étudier la dynamique des films magnétiques à des échelles de temps où le gaz d'électrons excité optiquement n'est pas encore en équilibre thermique avec le réseau. Les premiers résultats sont apparus en 1996 par Beaurepaire et al. sur des films de nickel au moyen de mesures de rotation Kerr magnéto-optique résolue en temps [5]. La figure 1 extraite de la référence [5] montre les variations induites par l'impulsion pompe dans le contraste magnéto-optique du film mince de nickel en fonction du retard temporel entre les impulsions pompe et sonde. Le signal varie fortement (de plus de 45 %) et pour des retards courts (en moins de deux picosecondes). Cette variation abrupte du contraste magnéto-optique semble indiquer une désaimantation du film de nickel et ceci à une échelle de temps où les électrons et le réseau ne sont pas en équilibre thermodynamique.

D'autres groupes ont confirmé une dynamique magnéto-optique à cette échelle de temps sur différents systèmes et par plusieurs techniques de mesures résolues en temps :

- des mesures de génération de seconde harmonique (M-SHG¹) sur des films de nickel [6]. La relaxation de la réponse magnéto-optique du système semble identique à celle du gaz électronique.
- des mesures de photo-émission résolue en spin sur des films de nickel [7]. Deux échelles de temps ont été observées dans l'évolution temporelle de la réponse magnéto-optique : une variation abrupte jusqu'à 40 % du signal dans les 300 premières femtosecondes suivant

¹M pour magnétique.

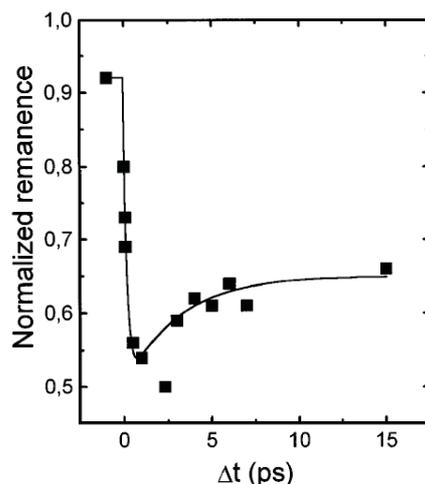


FIGURE 1: *Figure extraite de la référence [5] montrant la réponse temporelle magnéto-optique d'un film mince ferromagnétique à l'échelle picoseconde.*

l'excitation et une variation plus lente du signal se déroulant sur plusieurs centaines de picosecondes. Les observations ultra-rapides ont été interprétées microscopiquement en termes de modes d'excitations de Stoner (processus de diffusion d'électrons dépendant du spin) et les observations sur les échelles de temps plus longues ont été attribuées aux mécanismes de relaxation spin-réseau. Cette phénoménologie sur deux échelles de temps bien distinctes (une aux retards sub-picosecondes et l'autre aux retards nanosecondes) a permis de faire le lien entre les expériences de Beaurepaire et al. et celles d'Agranat et al.

- des mesures de rotation Kerr magnéto-optique sur des films minces de CoPt_3 [8]. Les auteurs de la référence [8] ont étudié la modification du cycle d'hystérésis de l'échantillon induite par la pompe, le cycle étant tracé par des mesures Kerr magnéto-optiques. Une désaimantation complète du film de CoPt_3 a été observée sur une échelle de temps caractéristique de la thermalisation électronique (600 fs) et cette désaimantation s'apparente à une transition de phase ferro-paramagnétique.

A cette étape, les différentes observations magnéto-optiques semblent indiquer une désaimantation ultra-rapide. Néanmoins, dans le cas général, la dynamique observée en magnéto-optique ne peut pas être reliée directement à une dynamique d'aimantation : la relation de proportionnalité entre la mesure magnéto-optique et l'aimantation en régime statique n'est plus forcément valable dans le régime dynamique. Les mesures pompe-sonde magnéto-optiques contiennent des contributions non magnétiques et magnétiques, ceci pour les différentes techniques de mesures (rotation Kerr, génération de seconde harmonique, photo-émission résolue en spin) [9–14]. Les signaux magnéto-optiques doivent être analysés soigneusement avant de conclure à une dynamique d'aimantation. A l'heure actuelle, cette dynamique semble être démontrée pour un certain nombre de matériaux magnétiques (parmi lesquels le nickel et le CoPt_3).

Le travail de thèse présenté dans ce mémoire s'inscrit dans la problématique présentée précédemment et concerne l'optique ultra-rapide dans des nanostructures magnétiques : on cherche par injection optique femtoseconde d'énergie dans le gaz électronique d'un système magnétique

confiné à modifier l'état d'aimantation du système aux échelles de temps sub-picoseconde, donc à des échelles de temps où le système électronique n'est pas en équilibre thermique avec le réseau. Il semble prometteur d'étudier des systèmes magnétiques confinés où la perturbation optique du gaz électronique puisse avoir une influence éventuellement plus importante sur la dynamique de spins du matériau, ceci pour plusieurs raisons :

- dans les systèmes confinés à des échelles de longueur comparables à la longueur d'onde de Fermi, on attend une modification des états électroniques par rapport à ceux du massif. Des effets magnéto-optiques originaux sont connus en statique tels que l'apparition d'états de puits quantiques polarisés en spin dans certaines couches de multicouches magnétiques. Comme exemple, dans le système Au/Co/Au [15,16] où la couche de cobalt a une épaisseur de quelques plans atomiques, des effets quantiques de taille ont été observés dans l'une des couches d'or. La modification de ces états quantiques pourrait avoir des conséquences originales sur l'aimantation.
- dans les systèmes magnétiques confinés tels que les multicouches, les anisotropies de surfaces sont exaltées. L'optique ultra-rapide en agissant sur les fonctions d'onde électronique pourrait mettre en évidence une dynamique de ces anisotropies, ce qui constituerait une voie originale pour modifier l'orientation de l'axe de facile aimantation de la structure et déclencher par voie optique une précession de l'aimantation.

A notre connaissance, très peu de mesures résolues en temps ont été effectuées dans des multicouches magnétiques à base de cobalt [17,18]. Nous avons retenu le système particulier Au/Co/Au parce qu'intensément étudié dans le régime statique par des mesures de rotation Kerr magnéto-optique. Notre approche expérimentale est entièrement optique :

- l'excitation est réalisée au moyen d'impulsions femtosecondes.
- l'investigation de l'évolution de l'aimantation du système après excitation est également optique par des mesures de rotation Kerr magnéto-optique.

L'organisation générale de ce mémoire est la suivante :

- Dans le chapitre 1, on expose quelques notions générales sur la physique des films magnétiques ultraminces dans les régimes statique et dynamique. Dans un premier temps, nous rappelons les propriétés magnétiques de telles structures multicouches. Puis, nous définissons les effets Kerr magnéto-optiques et présentons une méthode de calcul de ces effets. Enfin, ce chapitre se termine par une brève description de la physique hors équilibre des films métalliques.
- Dans le chapitre 2, nous procédons à la caractérisation magnéto-optique du système magnétique retenu Au/Co/Au. Nous nous servons de l'effet Kerr magnéto-optique pour tracer le cycle d'hystérésis du système multicouches. Ce chapitre permet d'illustrer par l'étude du système Au/Co/Au quelques propriétés magnétiques et magnéto-optiques des films magnétiques ultraminces présentées dans le premier chapitre.
- Le chapitre 3 introduit toutes les techniques de mesures pompe-sonde développées pour l'étude en dynamique du système multicouches. Dans un premier temps, nous décrivons les sources optiques utilisées et nous détaillons une d'entre elles puisqu'elle a été construite

au laboratoire durant cette thèse. Puis, nous explicitons et « testons » les protocoles expérimentaux des mesures pompe-sonde de la réponse magnéto-optique de films ferromagnétiques, en particulier la technique originale de double-démodulation.

- Enfin, dans le quatrième et dernier chapitre, nous menons l'étude en dynamique du système multicouches Au/Co/Au. Cette étude se déroule en trois temps : tout d'abord, nous montrons comment découpler le système et remonter à la dynamique de charges et à la dynamique magnéto-optique par estimation des constantes diélectriques. Puis, nous traitons la dynamique de charges où le rôle du cobalt est analysé. Enfin, nous faisons le point sur la validité d'une mesure pompe-sonde sur un film ferromagnétique et présentons l'étude de la dynamique magnéto-optique du système multicouches Au/Co/Au.

Chapitre 1

Propriétés magnétiques et magnéto-optiques de films magnétiques ultraminces

Dans ce chapitre, nous rappelons tout d'abord quelques propriétés des films magnétiques ultraminces et soulignons des modifications magnétiques par rapport à l'état massif. Dans une seconde section, nous présentons les effets Kerr magnéto-optiques en régime statique. Les conventions et notations y sont précisées. Une description microscopique de l'effet Kerr est donnée ainsi qu'une méthode de calcul de la réponse magnéto-optique Kerr polaire d'une structure en couches minces. La dernière section a pour objectif de poser la problématique de la mise hors d'équilibre des films métalliques au moyen d'impulsions optiques ultracourtes. Les phénomènes magnétiques transitoires sont exposés.

1.1 Magnétisme des films ultraminces magnétiques

Ce travail de thèse porte sur l'étude d'un système multicouches Au/Co/Au/verre. La couche de cobalt (métal ferromagnétique) constitue la couche magnétique. Son épaisseur est de quelques plans atomiques, d'où l'appellation film magnétique « ultramine ». Une description ainsi que la caractérisation de cet échantillon fait l'objet du chapitre 2. Cette section a pour objectif de rappeler les propriétés magnétiques de ce type de structure, composée d'une couche de métal ferromagnétique ultramine insérée entre deux couches métalliques non magnétiques.

Le métal ferromagnétique appartient aux métaux de transition. L'ordre ferromagnétique pour ces métaux s'explique par la présence d'électrons « polarisés en spin » itinérants : il existe une surface de Fermi pour les électrons d. Les bandes 3d pour les deux directions de spin sont décalées en énergie, ces bandes sont donc remplies en proportions inégales ce qui conduit à une aimantation nette pour ce métal, voir l'illustration de la figure 1.1.

Le décalage des bandes d'énergie des électrons 3d pour les deux directions de spin résulte d'une compétition entre l'augmentation d'énergie cinétique due au transfert d'électrons d'une sous-bande à l'autre et le gain d'énergie d'échange, voir la figure 1.2. Le critère de Stoner prévoit l'apparition de l'ordre ferromagnétique lorsque le produit $J_{\text{ex}}n(E_{\text{F}})$ est supérieur à 1 [$n(E_{\text{F}})$

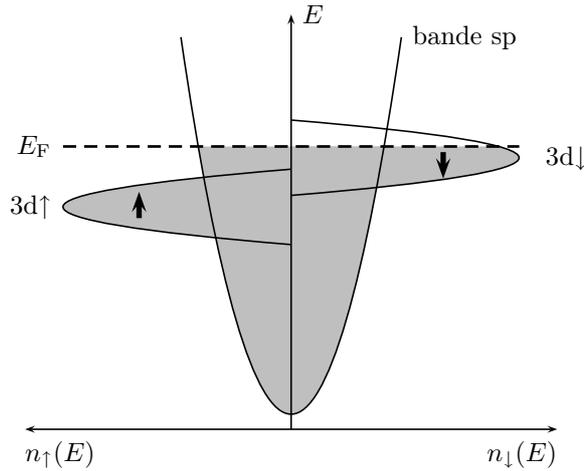


FIGURE 1.1: Densité d'états en fonction de l'énergie pour les bandes de conduction d'un métal ferromagnétique comme le cobalt qui est un métal ferromagnétique fort. La bande de conduction 3d est polarisée en spin, d'où l'apparition d'une aimantation spontanée pour le matériau.

est la densité d'états électroniques 3d au niveau de Fermi dans l'état paramagnétique et J_{ex} est l'intensité de l'interaction d'échange] [19].

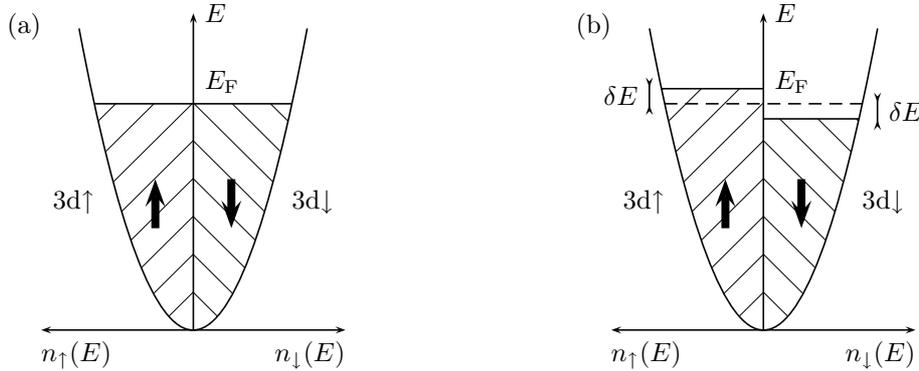


FIGURE 1.2: Figure illustrant le critère de Stoner. En (a), on considère un état non magnétique où la densité d'états est la même pour les deux directions de spin. En (b), on transfère des électrons entre les deux sous-bandes pour former un état magnétique. La solution magnétique est stable par rapport à la solution non magnétique si l'augmentation de l'énergie cinétique ΔE_{cin} est plus faible que le gain en énergie d'échange $\Delta E_{\text{éch}}$: $\Delta E_{\text{cin}} + \Delta E_{\text{éch}} < 0$ avec $\Delta E_{\text{cin}} = n(E_{\text{F}})(\delta E)^2$ et $\Delta E_{\text{éch}} = -J_{\text{ex}}n(E_{\text{F}})^2(\delta E)^2$. D'où le critère de Stoner : $J_{\text{ex}}n(E_{\text{F}}) > 1$ [19].

1.1.1 Modifications des propriétés magnétiques pour des couches ultraminces

La variété des propriétés magnétiques des films ferromagnétiques ultraminces par rapport au métal massif provient du caractère quasi-bidimensionnel de ce film conjugué aux effets de surface et d'interfaces.

Un système quasi-bidimensionnel

On peut citer plusieurs effets liés à la réduction de l'une des dimensions du métal ferromagnétique à quelques plans atomiques :

- une modification des paramètres de la transition de phase ferromagnétique-paramagnétique tels que les exposants critiques ou la température de Curie T_c [20, 21]. Dans les systèmes Fe/Pd(001) [20] et Fe/W(110) [22], pour de faibles épaisseurs de fer, les exposants critiques mesurés correspondent à ceux prévus par un modèle d'Ising bidimensionnel.
- une disparition du magnétisme de certains métaux ferromagnétiques pour de faibles épaisseurs : cas du nickel pour des épaisseurs inférieures à 1,5 monocouches [23–25].

Un magnétisme de surface

Une surface correspond à une rupture du motif cristallin. Les états propres du cristal infini ne sont pas états propres du cristal semi-infini, d'où des modifications de la structure électronique par rapport au massif. Ces modifications se manifestent par un rétrécissement de la largeur des bandes et éventuellement par l'apparition d'états électroniques dits « états électroniques de surface ». Ces changements de structure électronique sont d'autant plus importants que la densité atomique du plan de surface est faible [15].

La densité d'états électroniques au niveau de Fermi $n(E_F)$ peut ainsi être supérieure à celle du massif. L'intensité du paramètre d'échange J_{ex} entre spins électroniques est également modifiée. Le produit $J_{ex}n(E_F)$ peut être supérieur à 1 (critère de Stoner) à cause de l'interface alors que le massif est paramagnétique, d'où la possibilité d'une polarisation de surface d'un métal paramagnétique. C'est le cas du platine ou du palladium au contact du cobalt [26, 27], mais pas de l'or au contact du cobalt [28].

Le rôle des interfaces

Les modifications de la structure électronique dues à la surface sont étroitement liées à la nature des interfaces mises en jeu :

- les interactions électroniques peuvent provoquer des hybridations des orbitales électroniques du métal ferromagnétique avec celles du métal amagnétique déposé. Une hybridation forte aux interfaces diminue le moment magnétique de la couche ferromagnétique.
- un désaccord de maille entre les métaux en contact peut entraîner des défauts structuraux (dislocations, joints de grains..), d'où des effets magnéto-élastiques.
- les interfaces ne sont pas planes : il y a toujours de la rugosité et même parfois formation d'un alliage à l'interface entre les matériaux. Ceci influe sur l'anisotropie et donc sur les propriétés magnétiques [29]. La diversité des valeurs expérimentales pour les constantes d'anisotropie résulte d'une forte dépendance de ces grandeurs aux conditions de fabrication des échantillons.

De façon générale, tous ces effets sont très dépendants de l'échantillon.

1.1.2 Anisotropie magnétique

L'énergie libre d'anisotropie E_a d'une couche mince s'obtient en tenant compte des trois contributions suivantes :

$$E_a = E_{mc} + E_{me} + E_d, \quad (1.1)$$

où E_{mc} est l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline, E_{me} l'énergie d'anisotropie magnéto-élastique et E_d l'énergie d'anisotropie dipolaire. Chacune de ces anisotropies a tendance à orienter l'aimantation suivant certaines directions, directions correspondant au minimum de chacun de ces termes. L'anisotropie magnéto-cristalline résulte de la structure cristalline du massif elle-même, plus précisément de l'interaction électrostatique entre les orbitales des électrons magnétiques et la distribution de charges de l'environnement [30]. L'anisotropie magnéto-élastique a la même origine que l'anisotropie magnéto-cristalline et prend en compte les contraintes mécaniques et une éventuelle modification de la structure cristalline de la couche par rapport au massif : l'aimantation peut être modifiée en intensité et en amplitude sous l'effet d'une contrainte mécanique. Réciproquement, les distances entre atomes peuvent varier avec l'aimantation [30]. Enfin, l'anisotropie dipolaire, dite aussi « anisotropie de forme », est liée à l'énergie magnétostatique qu'on peut décrire par une répartition de charges magnétiques.

Dans les paragraphes suivants, les expressions des différentes énergies d'anisotropie sont données pour un film de cobalt (système uniaxial puisque de structure cristalline hexagonale compacte). La figure 1.3 permet de poser les notations qui vont être utilisées : l'axe perpendiculaire au plan du film est confondu avec l'axe c du réseau hexagonal du cobalt. On suppose le système monodomaine, l'aimantation \mathbf{M} est uniforme et saturée ($M = |\mathbf{M}| = M_s$).

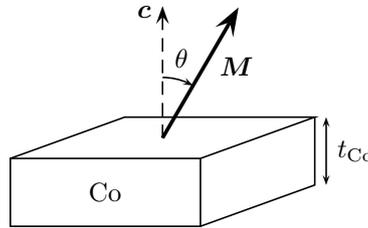


FIGURE 1.3: Définition des notations prises pour décrire le film de cobalt : l'axe perpendiculaire au plan du film est confondu avec l'axe c du réseau hexagonal du cobalt. t_{Co} est l'épaisseur de la couche. θ est l'angle que fait l'aimantation \mathbf{M} avec l'axe c .

Anisotropie magnéto-cristalline

L'anisotropie magnéto-cristalline E_{mc} comprend deux contributions de nature différente, l'une de volume, l'autre de surface :

$$E_{mc} = VE_{mc}^V + SE_{mc}^S, \quad (1.2)$$

où V est le volume de la couche ferromagnétique considérée et S sa surface. E_{mc}^V est l'énergie magnéto-cristalline du métal massif par unité de volume. E_{mc}^S est la contribution par unité de surface associée aux deux interfaces. $E_{mc}^S = E_{mc}^{S1} + E_{mc}^{S2}$, avec E_{mc}^{Si} ($i = 1, 2$) la contribution par unité de surface de l'interface i .

L'énergie magnéto-cristalline par unité de volume E_{mc}^V s'écrit :

$$E_{\text{mc}}^V = K_{1\text{mc}}^V \sin^2(\theta) + K_{2\text{mc}}^V \sin^4(\theta), \quad (1.3)$$

où $K_{1\text{mc}}^V$ et $K_{2\text{mc}}^V$ sont les constantes d'anisotropie du matériau massif. Pour une interface donnée i ($i = 1, 2$), l'énergie magnéto-cristalline par unité de surface E_{mc}^{Si} vaut :

$$E_{\text{mc}}^{Si} = K_{1\text{mc}}^{Si} \sin^2(\theta) + K_{2\text{mc}}^{Si} \sin^4(\theta), \quad (1.4)$$

où $K_{1\text{mc}}^{Si}$ et $K_{2\text{mc}}^{Si}$ sont les constantes d'anisotropie introduites par l'interface. L'anisotropie magnéto-cristalline de la couche ferromagnétique peut s'exprimer en fonction de constantes d'anisotropie effectives $K_{1\text{mc}}^{\text{eff}}$ et $K_{2\text{mc}}^{\text{eff}}$:

$$E_{\text{mc}} = V[K_{1\text{mc}}^{\text{eff}} \sin^2(\theta) + K_{2\text{mc}}^{\text{eff}} \sin^4(\theta)], \quad (1.5)$$

avec :

$$\begin{cases} K_{1\text{mc}}^{\text{eff}} = K_{1\text{mc}}^V + \frac{K_{1\text{mc}}^S}{t_{\text{Co}}}, \\ K_{2\text{mc}}^{\text{eff}} = K_{2\text{mc}}^V + \frac{K_{2\text{mc}}^S}{t_{\text{Co}}}. \end{cases} \quad (1.6)$$

Ainsi, plus l'épaisseur de la couche est fine, plus les effets de surface prédominent.

Anisotropie magnéto-élastique

Le désaccord de maille entre les métaux en contact introduit des contraintes, d'où une variation d'anisotropie dite « magnéto-élastique ». Selon l'épaisseur de la couche ferromagnétique t_{Co} , il existe deux régimes de déformation : l'anisotropie magnéto-élastique se comporte soit comme un terme de volume, soit comme un terme de surface [15, 31, 32].

La contribution de l'anisotropie magnéto-élastique est souvent incorporée dans les constantes d'anisotropie magnéto-cristalline. Dans le premier cas, la contribution de l'anisotropie magnéto-élastique est prise en compte dans le terme volumique de l'anisotropie magnéto-cristalline E_{mc}^V . Dans le second cas, l'anisotropie magnéto-élastique est prise en compte dans le terme de surface de l'anisotropie magnéto-cristalline E_{mc}^S .

Anisotropie dipolaire

Pour une couche mince, l'aimantation a tendance à s'orienter parallèlement au plan du film. L'énergie libre associée à l'anisotropie dipolaire dans la configuration de la figure 1.3 vaut :

$$E_d = -\frac{\mu_0 M^2}{2} V \sin^2(\theta), \quad (1.7)$$

avec μ_0 la perméabilité du vide. Dans le système CGS, E_d s'écrit $-2\pi M^2 V \sin^2(\theta)$.

1.1.3 Cycles d'hystérésis et direction de facile aimantation

Considérons un champ magnétique extérieur \mathbf{H}_{ext} appliqué perpendiculairement au plan de la couche de cobalt (\mathbf{H}_{ext} est donc colinéaire à l'axe \mathbf{c} de la couche de cobalt, figure 1.3). L'expression de l'enthalpie magnétique totale par unité de volume de cette couche ferromagnétique s'écrit avec 1.5 et 1.7 :

$$E_a/V = -\mu_0 \mathbf{H}_{\text{ext}} \cdot \mathbf{M} + (K_{1\text{mc}}^{\text{eff}} - \frac{\mu_0 M^2}{2}) \sin^2(\theta) + K_{2\text{mc}}^{\text{eff}} \sin^4(\theta), \quad (1.8)$$

où $-\mu_0 \mathbf{H}_{\text{ext}} \cdot \mathbf{M}$ est le couplage Zeeman de l'aimantation avec le champ magnétique extérieur \mathbf{H}_{ext} . Nous allons voir dans la section suivante que nous mesurons seulement la projection M_{\perp} de l'aimantation \mathbf{M} sur l'axe \mathbf{c} ($M_{\perp} = \mathbf{M} \cdot \mathbf{c}$). D'où, dans la discussion qui suit, une étude de M_{\perp} en fonction du champ magnétique extérieur.

Selon l'épaisseur de la couche de cobalt t_{Co} , on trouve trois types de cycles d'hystérésis (voir figure 1.4) :

$$- t_{\text{Co}} \leq t_{\text{perp}} = \frac{K_{1\text{mc}}^S}{\frac{\mu_0 M^2}{2} - K_{1\text{mc}}^V} :$$

le terme d'anisotropie de surface domine. A champ nul, les minima d'énergie libre correspondent à $\theta = 0$ ou π et $M_{\perp} = M$. D'où l'expression « cycle carré » utilisée pour décrire une telle situation. L'axe de facile aimantation en champ nul¹ est perpendiculaire au plan de la couche ferromagnétique. On parle de couche à anisotropie perpendiculaire. D'un point de vue microscopique, la frustration de l'interaction d'échange aux interfaces est plus coûteuse que les termes d'anisotropie dipolaire (formation de charges magnétiques aux interfaces) et d'anisotropie magnéto-élastique. Les spins s'alignent donc perpendiculairement au plan des couches.

$$- t_{\text{perp}} \leq t_{\text{Co}} \leq t_{\text{plan}} = \frac{K_{1\text{mc}}^S + 2K_{2\text{mc}}^S}{\frac{\mu_0 M^2}{2} - K_{1\text{mc}}^V - 2K_{2\text{mc}}^V} :$$

le cycle d'hystérésis est « arrondi » : la composante perpendiculaire à rémanence $M_{\text{rém}}$ est inférieure à M . L'axe de facile aimantation en champ nul se trouve sur un cône de demi-

angle au sommet θ tel que $\sin^3(\theta) = \frac{\frac{\mu_0 M^2}{2} - K_{1\text{mc}}^{\text{eff}}}{2K_{2\text{mc}}^{\text{eff}}}$. Dans la plage $[t_{\text{perp}}, t_{\text{plan}}]$, l'aimantation du film de cobalt a une composante à la fois dans le plan du film et perpendiculairement à ce dernier.

$$- t_{\text{plan}} < t_{\text{Co}} :$$

la composante perpendiculaire de l'aimantation varie de manière réversible. L'axe de facile aimantation en champ nul se trouve dans le plan des couches. On parle de couche à anisotropie planaire.

Pour des tricouches Au/Co/Au, $(\frac{\mu_0 M^2}{2} - K_{1\text{mc}}^V) = 5,5 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ et $K_{1\text{mc}}^S \equiv K_{1\text{mc}}^{S1} + K_{1\text{mc}}^{S2} = 10^{-3} \text{ J/m}^2$, ainsi t_{perp} vaut 20 Å, soit environ 10 plans atomiques².

¹ou encore l'orientation spontanée à champ nul.

²dans le système CGS, $(2\pi M^2 - K_{1\text{mc}}^V) = 5,5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ et $K_{1\text{mc}}^S \equiv K_{1\text{mc}}^{S1} + K_{1\text{mc}}^{S2} = 1 \text{ erg/cm}^2$. La distance

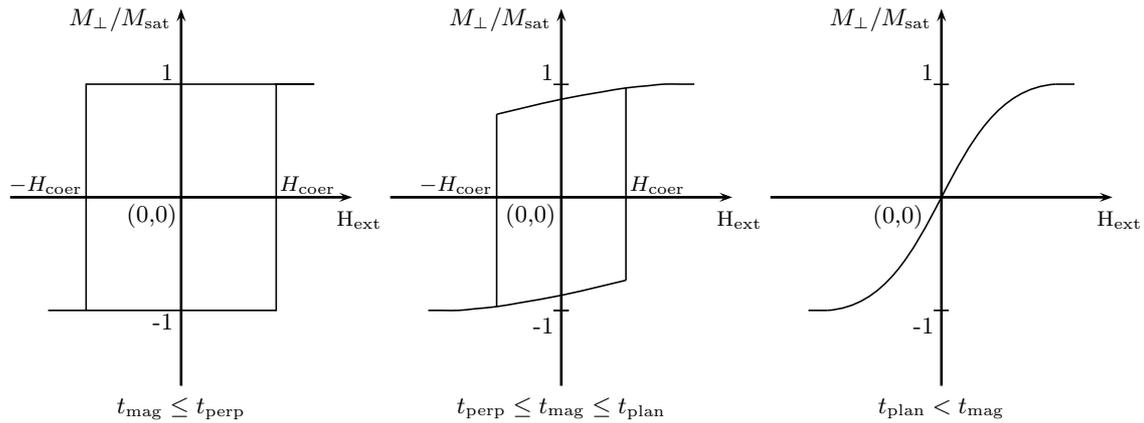


FIGURE 1.4: Allures des cycles d'hystérésis en champ magnétique perpendiculaire au plan de la couche ferromagnétique. M_{\perp} désigne la composante perpendiculaire de l'aimantation \mathbf{M} au plan du film, donc parallèle au champ magnétique extérieur \mathbf{H}_{ext} .

1.2 Les effets Kerr magnéto-optiques en statique

Dans cette section, nous définissons les effets Kerr magnéto-optiques pour un système magnétique à l'équilibre. Une description phénoménologique ainsi que microscopique est donnée. Dans un dernier temps, nous détaillons une méthode de calcul de la réponse magnéto-optique Kerr polaire d'une structure en couches minces.

1.2.1 Définition des effets Kerr magnéto-optiques

Les effets magnéto-optiques résultent de l'interaction de la lumière polarisée linéairement avec un milieu magnétique ou placé dans un champ magnétique.

L'effet Kerr magnéto-optique est un effet magnéto-optique du premier ordre c'est-à-dire proportionnel à l'aimantation ou au champ appliqué. Ce phénomène optique se manifeste par une modification de l'état de polarisation de la lumière réfléchi par le matériau. Ainsi, une mesure ellipsométrique de l'onde réfléchi permet d'avoir des renseignements sur l'état d'aimantation du matériau. L'état de polarisation de l'onde transmise est également modifié par rapport à celui de l'onde incidente : il s'agit de l'effet Faraday magnéto-optique. Pour un milieu métallique semi-infini (d'épaisseur beaucoup plus grande que l'épaisseur de peau), il n'y a pas d'onde transmise. L'effet Faraday magnéto-optique n'est donc pas observable. L'effet Kerr magnéto-optique correspond qualitativement à un effet Faraday sur un aller-retour sur une épaisseur de l'ordre de l'épaisseur de peau du matériau.

Selon l'orientation relative du vecteur d'onde de la lumière incidente et de l'aimantation \mathbf{M} dans l'échantillon, on distingue trois configurations de base, voir figure 1.5 :

- configuration polaire : l'onde incidente arrive normalement à la surface. L'effet Kerr est dit « polaire », il dépend uniquement de la composante perpendiculaire de l'aimantation du matériau et pas de la direction de polarisation de l'onde incidente.

entre plans atomiques vaut pour le cobalt 2,04 Å et pour l'or 2,36 Å.

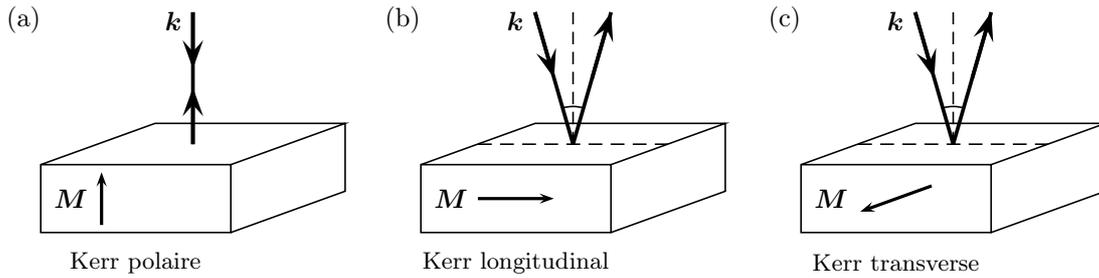


FIGURE 1.5: Les trois configurations de base des effets Kerr magnéto-optiques : (a) polaire, (b) longitudinal (\mathbf{M} est dans le plan d'incidence et n'a pas de composante perpendiculaire), (c) transverse (\mathbf{M} est perpendiculaire au plan d'incidence).

- configuration longitudinale : le faisceau arrive en incidence oblique, l'aimantation n'a pas de composante perpendiculaire et se trouve dans le plan d'incidence de la lumière. La modification de l'état de polarisation de l'onde réfléchi dépend de la direction de polarisation de l'onde incidente.
- configuration transverse : incidence oblique, aimantation perpendiculaire au plan d'incidence. L'effet Kerr transverse se traduit par une variation de l'intensité réfléchi pour une polarisation incidente \mathbf{p} lorsqu'on inverse l'aimantation du matériau. Il n'y a pas d'effet pour une polarisation incidente \mathbf{s} .

Les mesures ellipsométriques ne sont pas le seul moyen d'investigation de l'état d'aimantation du matériau. Une mesure des coefficients de réflexion des ondes polarisées circulairement droite et gauche (mesure de réflectivité différentielle circulaire ou dichroïsme circulaire) permet de déterminer en partie l'état d'aimantation du matériau (configuration transverse) [33].

Le cobalt massif a un angle de rotation Kerr polaire de $-0,30^\circ$ à température ambiante et dans le visible ($\lambda = 633 \text{ nm}$). L'effet Kerr longitudinal est difficile à distinguer de l'effet Kerr polaire en incidence oblique. Il est nécessaire de faire varier l'angle d'incidence pour pouvoir distinguer les deux effets. La configuration Kerr transverse est préférée expérimentalement à la configuration longitudinale : des mesures de dichroïsme circulaire sont alors mises en œuvre. Pour le cobalt en couche mince, $\Delta R/R$ vaut au maximum $1,5 \times 10^{-2}$ [30].

Configuration adoptée

A aimantation égale, la configuration polaire est celle de plus grande sensibilité. Dans toute la suite, nous nous sommes placés dans cette configuration, l'onde incidente est polarisée rectilignement. Nous nous servons de la représentation de Jones pour décrire les états de polarisation [34]. Le champ électrique \mathbf{E}_{inc} de l'onde incidente s'écrit :

$$\mathbf{E}_{\text{inc}} = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (1.9)$$

avec l'axe \mathbf{x} de ce repère confondu avec la direction de la polarisation incidente. L'onde réfléchie a pour état de polarisation :

$$\mathbf{E}_r = \begin{bmatrix} \cos(\alpha_K) \cos(\eta_K) - i \sin(\alpha_K) \sin(\eta_K) \\ \sin(\alpha_K) \cos(\eta_K) + i \cos(\alpha_K) \sin(\eta_K) \end{bmatrix}, \quad (1.10)$$

où α_K désigne l'angle de rotation de l'axe principal de l'ellipse par rapport à la direction initiale de polarisation et η_K l'ellipticité de l'onde réfléchie. On regroupe souvent ces deux paramètres en un seul : $\theta_K = \alpha_K + i\eta_K$, θ_K est appelé « rotation Kerr polaire complexe ». La figure 1.6 permet de mieux se représenter les angles α_K et η_K .

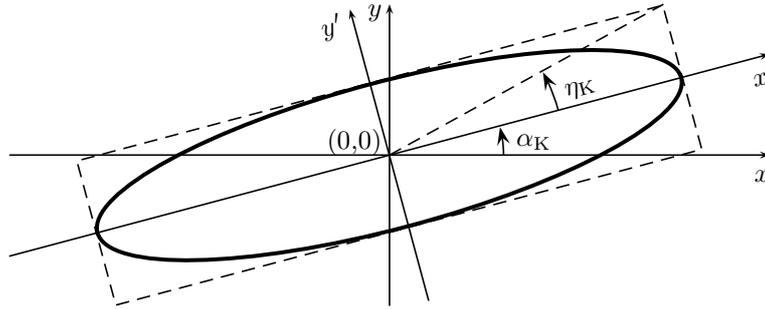


FIGURE 1.6: Représentation de l'état de polarisation de l'onde réfléchie.

1.2.2 Description phénoménologique des effets Kerr magnéto-optiques

Soit un matériau initialement isotrope. L'apparition d'une aimantation pour ce matériau brise certaines symétries. Supposons qu'une aimantation \mathbf{M} apparaisse selon l'axe \mathbf{z} . En considérant des effets au premier ordre en M et les relations d'Onsager³, le tenseur diélectrique $[\varepsilon]$ de ce matériau s'écrit :

$$[\varepsilon] = \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & 0 \\ -\varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{xx} \end{bmatrix}. \quad (1.11)$$

Les éléments de ce tenseur diélectrique sont complexes, le terme diagonal ε_{xx} ne dépend pas de l'aimantation au premier ordre et le terme non diagonal ε_{xy} est proportionnel à l'aimantation via un facteur F complexe :

$$\varepsilon_{xy} = FM. \quad (1.12)$$

F dépend, entre autres, de la composition du matériau et de la pulsation de l'onde lumineuse incidente.

L'étude de la propagation de la lumière selon l'axe \mathbf{z} montre que les modes propres de propagation sont ceux des ondes électromagnétiques de polarisations circulaires σ_+ et σ_- , dont

³ $\varepsilon_{ii}(\mathbf{M}) = \varepsilon_{ii}(-\mathbf{M})$ et pour $i \neq j$, $\varepsilon_{ij}(\mathbf{M}) = -\varepsilon_{ij}(-\mathbf{M})$.

les champs électriques \mathbf{E}_{σ_+} et \mathbf{E}_{σ_-} s'écrivent :

$$\mathbf{E}_{\sigma_{\pm}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ \pm i \end{bmatrix}. \quad (1.13)$$

Ils sont associés aux indices propres complexes \tilde{n}_{\pm} , solutions de l'équation de propagation :

$$[\varepsilon]\mathbf{E}_{\sigma_{\pm}} = \tilde{n}_{\pm}^2 \mathbf{E}_{\sigma_{\pm}}, \quad (1.14)$$

où $\tilde{n}_{\pm}^2 = \varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy}$. L'indice propre complexe se note sous la forme d'un développement au premier ordre en $\varepsilon_{xy}/\varepsilon_{xx}$:

$$\tilde{n}_{\pm} = \tilde{n}_0 \pm d\tilde{n}, \quad (1.15)$$

avec $\tilde{n}_0 = \sqrt{\varepsilon_{xx}}$ l'indice du matériau sans aimantation (qui est alors isotrope) et $d\tilde{n}$ l'indice magnéto-optique complexe du matériau magnétique. $d\tilde{n} = dn + id\kappa = \frac{1}{2}\tilde{n}_0\tilde{Q}$, où \tilde{Q} , dit « paramètre magnéto-optique », vérifie la relation :

$$\varepsilon_{xy} = -i\varepsilon_{xx}\tilde{Q}. \quad (1.16)$$

Le milieu aimanté possède donc une biréfringence circulaire $\Delta\tilde{n}$ définie par :

$$\Delta\tilde{n} \equiv \tilde{n}_+ - \tilde{n}_- = 2d\tilde{n} = \tilde{n}_0\tilde{Q} = i \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}}. \quad (1.17)$$

Considérons une onde incidente polarisée rectilignement selon l'axe \mathbf{x} . Le champ électrique associé \mathbf{E}_{inc} s'écrit dans la base $\{\mathbf{E}_{\sigma_+}, \mathbf{E}_{\sigma_-}\}$:

$$\mathbf{E}_{\text{inc}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{E}_{\sigma_+} + \mathbf{E}_{\sigma_-}). \quad (1.18)$$

Le coefficient de réflexion r_{\pm} en amplitude pour le mode circulaire σ_{\pm} vaut :

$$r_{\pm} = \frac{1 - \tilde{n}_{\pm}}{1 + \tilde{n}_{\pm}}. \quad (1.19)$$

L'onde réfléchie \mathbf{E}_r est donc elliptique. La rotation complexe par rapport à l'onde incidente vaut :

$$\begin{aligned} \theta_K &\equiv \frac{\alpha_K + i\eta_K}{\varepsilon_{xy}} \\ &= \frac{\alpha_K + i\eta_K}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}(\varepsilon_{xx} - 1)}. \end{aligned} \quad (1.20)$$

On note que cet angle dépend à la fois des termes diagonaux et non diagonaux du tenseur diélectrique. Lorsque l'aimantation \mathbf{M} a des composantes sur les axes \mathbf{x} et \mathbf{y} , le tenseur diélectrique du matériau s'écrit différemment, les éléments ε_{xz} et ε_{yz} apparaissent [35–37]. Comme les effets Kerr longitudinaux et transverses s'annulent pour une onde incidente perpendiculaire, la rotation Kerr polaire complexe garde la même expression 1.20 [38–40].

Pour le traitement des effets Kerr longitudinaux et transverses (effets négligeables devant l'effet Kerr polaire), on peut se reporter aux références [35–40]. Dans notre configuration ex-

périmentale, l'angle d'incidence est de 2° . Pour un tel angle et pour le système multicouches Au(3,5nm)/Co(3nm)/Au(28nm), l'effet Kerr polaire vaut $-9,5 \times 10^{-2}^\circ$, soit trois ordres de grandeur plus grands que les effets Kerr longitudinaux ($5 \times 10^{-5}^\circ$) [41]. Nous considérerons alors que seule la rotation Kerr polaire complexe est mesurée.

1.2.3 Description microscopique des effets Kerr magnéto-optiques

L'interaction directe entre le champ magnétique de l'onde électromagnétique et les spins des électrons ne peut pas rendre compte de l'importance des effets Kerr magnéto-optiques α_K et η_K dans les ferromagnétiques. Ces effets proviennent simultanément du couplage spin-orbite et de l'interaction d'échange [42,43]. Il en résulte une différence d'absorption des modes électromagnétiques de polarisation circulaire σ_+ et σ_- (dichroïsme circulaire).

Afin d'illustrer le dichroïsme circulaire induit par l'action conjuguée du couplage spin-orbite et de l'interaction d'échange, considérons la figure 1.7 extraite de [28]. Cette figure permet d'étudier qualitativement les transitions dipolaires électriques des ondes électromagnétiques de polarisation circulaire σ_+ et σ_- sur des niveaux d'énergies électroniques où seul un état d'arrivée est considéré. Les règles de sélection des transitions dipolaires électriques imposent pour l'interaction entre l'onde électromagnétique incidente circulaire :

$$\begin{cases} \Delta l &= \pm 1, \\ \Delta m_l &= \pm 1, \end{cases} \quad (1.21)$$

La transition $p \leftrightarrow d$ est donc autorisée par la première règle de sélection. Avec la deuxième règle de sélection, les transitions avec absorption d'un photon σ_+ (respectivement σ_-) correspondent à $\Delta m_l = +1$ (respectivement $\Delta m_l = -1$). En (a) de la figure 1.7, on considère seulement l'effet de l'interaction d'échange sur les niveaux électroniques d. L'interaction d'échange lève la dégénérescence en spin du niveau d. En (b) de la figure 1.7, on considère seulement les effets du couplage spin-orbite et il n'y a pas d'interaction d'échange. Le couplage spin-orbite lève la dégénérescence orbitale des niveaux d. Dans les deux cas, les transitions avec absorption d'un photon σ_+ sont équivalentes aux transitions avec absorption d'un photon σ_- . Seule la conjugaison du couplage spin-orbite et de l'interaction d'échange permet une différence d'absorption des modes électromagnétiques de polarisation circulaire σ_+ et σ_- , figure 1.7 (c).

La figure 1.7 illustre qualitativement le dichroïsme circulaire sur un schéma simplifié de niveaux d'énergie. Lorsqu'on considère le métal ferromagnétique, il faut prendre en compte la structure de bandes du matériau et la distribution des porteurs. Le lien entre le tenseur diélectrique macroscopique $[\varepsilon]$ du métal ferromagnétique et la structure électronique microscopique s'écrit [44, 45] :

$$\varepsilon_{ij}(\omega) = \delta_{ij} + \frac{4e^2}{\pi \hbar m^2 \omega^2} \sum_{gn} \int_{BZ} \frac{\omega_{gn,\mathbf{k}} [f_{g,\mathbf{k}}(1 - f_{n,\mathbf{k}})] \left(|P_{gn,\mathbf{k}}^+|^2 \pm_{ij} |P_{gn,\mathbf{k}}^-|^2 \right)}{\omega_{gn,\mathbf{k}}^2 - \omega^2 - 2i\omega \Gamma_{gn,\mathbf{k}}} d^3k, \quad (1.22)$$

où la charge de l'électron et sa masse sont notées e et m , ω est la pulsation de l'onde électromagnétique incidente. ij vaut soit xx soit xy . L'opérateur \pm_{xx} vaut 1 et \pm_{xy} -1. n et g indexent

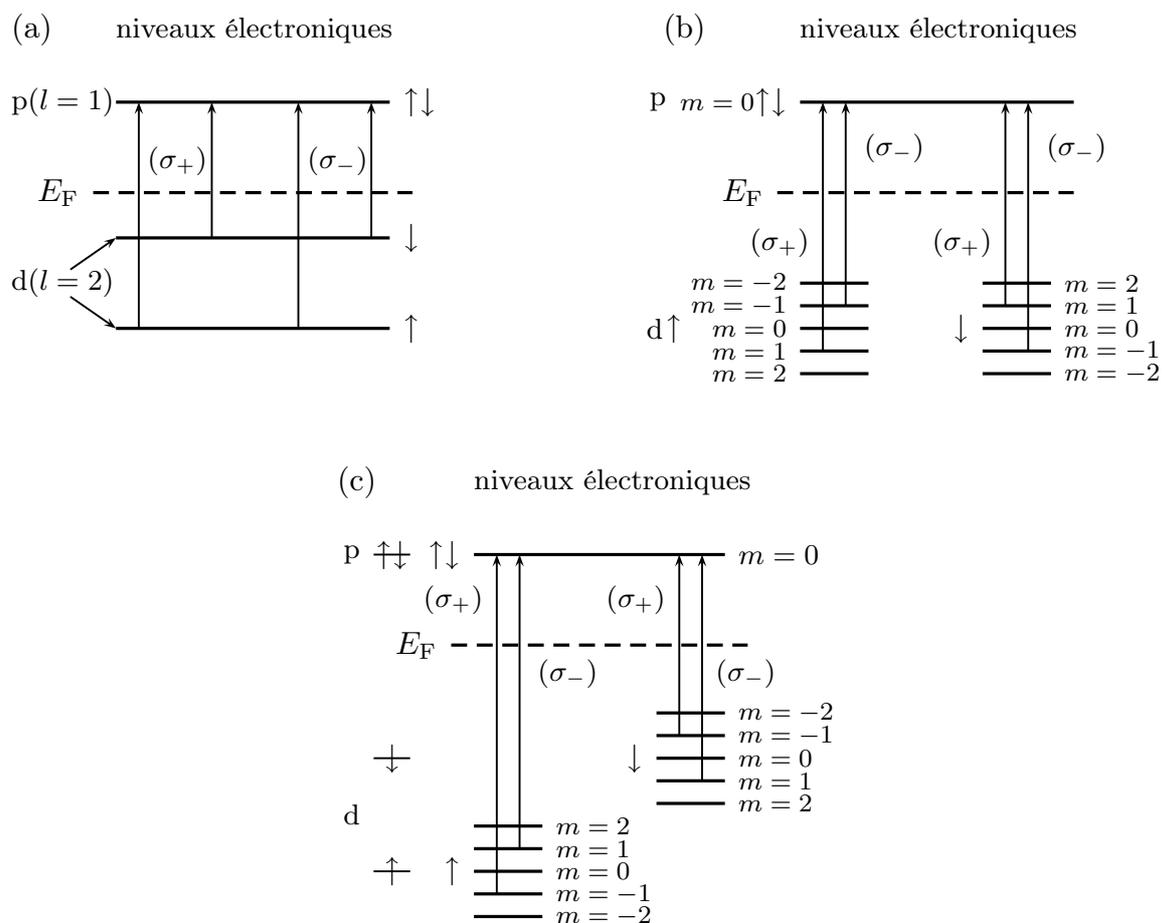


FIGURE 1.7: Figure extraite de [28] permettant d'illustrer le dichroïsme circulaire induit par le couplage spin-orbite et l'interaction d'échange. En (a), l'effet de l'interaction d'échange seule sur les niveaux électroniques. En (b), l'effet du couplage spin-orbite seul (sans interaction d'échange). En (c), la conjugaison des effets de l'interaction d'échange et du couplage spin-orbite. L'action de l'interaction d'échange a été négligée sur les niveaux p . Seules les transitions vers l'orbitale p de nombre quantique magnétique $m = 0$ ont été représentées. En (c), on voit que les transitions avec absorption d'un photon σ_+ ne sont pas compensées par les transitions avec absorption d'un photon σ_- .

les bandes d'énergie. $\hbar\omega_{n,\mathbf{k}}$ est l'énergie de l'état électronique $|n, \mathbf{k}\rangle$, $\omega_{gn,\mathbf{k}} = \omega_{g,\mathbf{k}} - \omega_{n,\mathbf{k}}$. $f_{n,\mathbf{k}}$ est la probabilité d'occupation de l'état $|n, \mathbf{k}\rangle$. On somme sur la zone de Brillouin BZ et sur toutes les bandes. $\hbar\Gamma_{gn,\mathbf{k}}$ désigne l'élargissement de la transition $|n, \mathbf{k}\rangle \rightarrow |g, \mathbf{k}\rangle$. L'élément de matrice $P_{gn,\mathbf{k}}^\pm$ vaut :

$$\langle g, \mathbf{k} | p_\pm | n, \mathbf{k} \rangle . \quad (1.23)$$

Les états $|n, \mathbf{k}\rangle$ et $|g, \mathbf{k}\rangle$ sont couplés via l'opérateur $p_\pm = -i\hbar(\nabla_x \pm i\nabla_y)$.

En régime stationnaire, l'aimantation M du métal s'écrit :

$$M = L_e + gS_e , \quad (1.24)$$

avec L_e le moment orbital du système électronique, S_e celui de spin et g le facteur de Landé. Dans les métaux ferromagnétiques 3d tels que le cobalt, le moment orbital est quasiment nul à cause des effets du champ cristallin [44], l'aimantation est donc principalement due au spin. Le couplage spin-orbite introduit une corrélation entre les parties orbitales et de spin des fonctions d'ondes électroniques. Cette corrélation assure un lien de proportionnalité entre M et L_e et permet d'utiliser les effets magnéto-optiques comme sonde de l'aimantation : l'onde incidente « sonde » le moment cinétique orbital qui est proportionnel à S_e et donc finalement à M . Ainsi, le couplage du champ électromagnétique se fait ainsi indirectement avec les spins. En régime dynamique, divers problèmes apparaissent et sont examinés par la suite.

Pour le calcul du tenseur diélectrique $[\varepsilon]$ du métal ferromagnétique à partir de la structure de bandes du matériau, on peut également consulter les références [43, 46–50] qui ont traité le couplage spin-orbite soit comme une perturbation soit au moyen d'une équation de départ relativiste. Pour ce travail, l'expression 1.22 a pour intérêt de souligner la relation entre la distribution des porteurs et les termes du tenseur diélectrique du métal ferromagnétique.

1.2.4 Calculs magnéto-optiques dans des multicouches magnétiques à aimantation perpendiculaire

Dans le paragraphe 1.2.2, nous avons calculé la rotation Kerr complexe polaire pour un matériau magnétique semi-infini. Dans un système magnétique multicouches, il faut tenir compte des phénomènes d'interférences et des réflexions multiples aux différentes interfaces.

La modélisation adoptée des structures en couches minces suppose que les interfaces sont abruptes et parfaites à l'échelle de la longueur d'onde optique. En revanche, les propriétés magnétiques peuvent être modifiées par la rugosité des interfaces et les effets d'hybridation des orbitales électroniques entre les deux métaux en contact. Ces effets n'affectent pas la description et le calcul des effets magnéto-optiques, mais modifient l'aimantation portée par les couches de la structure, voir le chapitre 2.

Dans ce qui suit, nous nous plaçons dans le cas particulier de l'incidence normale de la lumière et d'une aimantation perpendiculaire pour les différentes couches magnétiques de la multicouche. Nous présentons deux approches différentes pour calculer la réponse magnéto-optique. Dans le cas général d'une aimantation quelconque et d'une incidence inclinée de la lumière, on peut se reporter aux références [37–40, 51]. On peut également consulter la référence [33] qui fait le point

sur les différents calculs et approches.

Différentes approches

Considérons une couche mince magnétique à aimantation perpendiculaire d'épaisseur t déposée sur un substrat métallique semi-infini⁴. On peut calculer des deux manières qui suivent la rotation Kerr polaire complexe θ_K pour cet empilement :

- calcul de type Fabry-Pérot où l'on tient compte des interférences multiples dues aux allers-retours du champ électromagnétique dans le film mince (méthode séquentielle).
- formalisme de Yeh ou approche matricielle [33,51], basée sur la représentation de Jones [34] : la relation vectorielle linéaire entre les champs incidents, réfléchis et transmis est décrite par une matrice $[\mathbf{M}]$, dont on peut déduire les propriétés optiques de la structure : T , R , α , et η . La matrice $[\mathbf{M}]$ est le produit des matrices associées à chaque élément de la structure.

Pour généraliser la première méthode à un empilement de N couches minces, un calcul par récurrence peut être mené [52]. On considère tout d'abord le milieu semi-infini et la première couche pour lesquels on calcule les effets Fabry-Pérot ; on détermine alors un indice virtuel équivalent qui permet de remplacer cet empilement de deux couches par un substrat semi-infini ayant pour indice l'indice virtuel calculé. Puis, on réitère le même raisonnement couche par couche en remontant jusqu'à la dernière déposée.

Nous avons adopté la seconde approche, à savoir le formalisme de Yeh. Cette approche matricielle est plus lourde pour une simple bicouche, mais beaucoup plus efficace pour les structures complexes, telles air/Au/Co/Au/verre/air que nous étudions par la suite. Le formalisme de Yeh est purement local (les couches métalliques sont décrites par leurs tenseurs diélectriques) et ne convient plus si les électrons sont délocalisés.

Formalisme de Yeh

Considérons une multicouche constituée d'un empilement de N couches homogènes. Les couches magnétiques de cette structure sont à aimantation perpendiculaire et la lumière arrive en incidence normale. Notons z l'axe perpendiculaire aux plans de toutes ces couches (figure 1.8).

Etape 1 : détermination des modes de propagation du champ électromagnétique dans chaque couche j de tenseur diélectrique $[\epsilon^j]$

La couche j est un milieu soit isotrope (pour couches non magnétiques), soit uniaxe. Dans ce dernier cas, la couche j est magnétique à aimantation perpendiculaire par hypothèse.

Les modes propres de propagation pour le champ électromagnétique $\{\mathbf{E}, \mathbf{B}\}$ sont au nombre de quatre : $\{\mathbf{e}_i^j, \mathbf{b}_i^j\}$, $i = 1, 2, 3, 4$. Ce sont les modes électromagnétiques des polarisations circulaires σ_+ et σ_- pour les deux sens de propagation (direct et rétrograde). Chaque mode propre est associé à un indice propre \tilde{n}_i^j , cf. expression 1.14 et tableau 1.1.

⁴l'approximation du substrat semi-infini sera justifiée paragraphe 2.3.2 pour le système multicouches Au/Co/Au/verre.

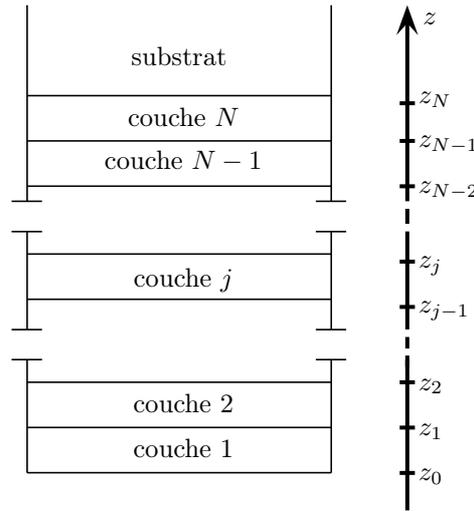


FIGURE 1.8: Structure d'une multicouche : la couche j (pour j compris entre 1 et N) a pour épaisseur t_j ($t_j = z_j - z_{j-1}$). Les deux milieux ($z < z_0$) et ($z > z_N$) sont des milieux optiquement isotropes semi-infinis.

Vecteur propre	Sens de propagation	Mode circulaire	Indice propre
e_1	$+z$	σ_+	\tilde{n}_1^j
e_2	$-z$	σ_+	$\tilde{n}_2^j = -\tilde{n}_1^j$
e_3	$+z$	σ_-	\tilde{n}_3^j
e_4	$-z$	σ_-	$\tilde{n}_4^j = -\tilde{n}_3^j$

TABLEAU 1.1: Définition des vecteurs propres $(e_i^j)_{(i=1,\dots,4)}$ du champ électrique dans la couche j . Les indices propres du sens de propagation rétrograde sont pris opposés aux indices propres du sens de propagation direct.

On définit alors la matrice de propagation $[\rho^j]$ du champ électrique dans cette couche d'épaisseur t_j . Elle s'écrit dans la base $(e_i^j)_{(i=1,\dots,4)}$:

$$[\rho^j] = \begin{bmatrix} \exp(i\frac{\omega}{c}\tilde{n}_1^j t_j) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \exp(i\frac{\omega}{c}\tilde{n}_2^j t_j) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \exp(i\frac{\omega}{c}\tilde{n}_3^j t_j) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \exp(i\frac{\omega}{c}\tilde{n}_4^j t_j) \end{bmatrix}, \quad (1.25)$$

où ω est la pulsation du champ électromagnétique et c la célérité de la lumière dans le vide.

Etape 2 : écriture du champ électrique dans la j -ième couche

Le champ électrique E^j dans la couche j est une combinaison linéaire des vecteurs propres

$$\begin{aligned}
 (\mathbf{e}_i^j)_{(i=1,\dots,4)} : \\
 \mathbf{E}^j &\equiv \mathbf{E}_0^j \exp(i(-\omega t + \mathbf{q}^j \cdot \mathbf{r})) , \\
 &= \sum_{i=1}^4 E_{0_i}^j \mathbf{e}_i^j \exp\left(i(-\omega t + \frac{\omega}{c} \tilde{n}_i^j (z - z_{j-1}))\right) ,
 \end{aligned} \tag{1.26}$$

où \mathbf{q}^j est le vecteur d'onde du champ électromagnétique dans la couche j . $(E_{0_i}^j)_{(i=1,\dots,4)}$ sont les coordonnées du vecteur amplitude \mathbf{E}_0^j du champ électrique dans la couche j dans la base $(\mathbf{e}_i^j)_{(i=1,\dots,4)}$.

Etape 3 : relations de passage des champs électromagnétiques

A l'interface $z = z_j$, au moyen des relations de continuité pour les composantes tangentielles du champ électrique, on obtient deux relations entre les champs électriques \mathbf{E}^j et \mathbf{E}^{j+1} . Les couches magnétiques sont à aimantation perpendiculaire par hypothèse, on obtient alors deux autres relations entre les champs magnétiques \mathbf{B}^j et \mathbf{B}^{j+1} par continuité des composantes tangentielles du champ magnétique. Les composantes du champ magnétique s'expriment en fonction des celles du champ électrique, on trouve ainsi une relation entre l'amplitude complexe du champ électrique \mathbf{E}^j dans la couche j et celle du champ électromagnétique \mathbf{E}^{j+1} dans la couche $j + 1$. Cette relation peut s'écrire sous forme matricielle :

$$\mathbf{E}_0^j = [T_{j,j+1}] \mathbf{E}_0^{j+1} , \tag{1.27}$$

avec :

$$[T_{j,j+1}] = [D^j]^{-1} [D^{j+1}] [\rho^j] , \tag{1.28}$$

où $[D^j]$ est une matrice, appelée « matrice dynamique » et s'écrit dans la base $(\mathbf{e}_i^j)_{(i=1,\dots,4)}$:

$$[D^j] = \begin{bmatrix} e_{1_x}^j & e_{2_x}^j & e_{3_x}^j & e_{4_x}^j \\ b_{1_y}^j & b_{2_y}^j & b_{3_y}^j & b_{4_y}^j \\ e_{1_y}^j & e_{2_y}^j & e_{3_y}^j & e_{4_y}^j \\ b_{1_x}^j & b_{2_x}^j & b_{3_x}^j & b_{4_x}^j \end{bmatrix} , \tag{1.29}$$

$e_{i_x}^j$ (resp. $e_{i_y}^j$) est la projection orthogonale de \mathbf{e}_i^j sur l'axe \mathbf{x} (resp. \mathbf{y}). Il en va de même des notations $b_{i_x}^j$ et $b_{i_y}^j$.

Comme les aimantations des couches magnétiques sont perpendiculaires, la matrice de transfert $[T_{j,j+1}]$ entre les couches j et $j + 1$ est une matrice bloc diagonale dans la base $(\mathbf{e}_i^j)_{(i=1,\dots,4)}$. Ceci traduit l'indépendance des modes circulaires + et -. Dans la base $(\mathbf{e}_i^j)_{(i=1,\dots,4)}$, $[T_{j,j+1}]$ s'écrit [33] :

$$[T_{j,j+1}] = \begin{bmatrix} [t_{j,j+1}]_{(2,2)}^+ & [0]_{(2,2)} \\ [0]_{(2,2)} & [t_{j,j+1}]_{(2,2)}^- \end{bmatrix} , \tag{1.30}$$

avec $[0]_{(2,2)}$ la matrice carrée nulle de dimension 2 et $[t_{j,j+1}]_{(2,2)}^\pm$ une matrice carrée de dimension 2 d'expression :

$$[t_{j,j+1}]_{(2,2)}^\pm = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} (1 + \tilde{u}_\pm^{j,j+1}) \exp(-i\beta_\pm^{j+1}) & (1 - \tilde{u}_\pm^{j,j+1}) \exp(i\beta_\pm^{j+1}) \\ (1 - \tilde{u}_\pm^{j,j+1}) \exp(-i\beta_\pm^{j+1}) & (1 + \tilde{u}_\pm^{j,j+1}) \exp(i\beta_\pm^{j+1}) \end{bmatrix} , \tag{1.31}$$

avec $\tilde{u}_{\pm}^{j,j+1} = \frac{\tilde{n}_{\pm}^{j+1}}{\tilde{n}_{\pm}^j}$ et $\beta_{\pm}^{j+1} = \frac{\omega}{c} \tilde{n}_{\pm}^{j+1} t_{j+1}$.

Etape 4 : obtention de la matrice $[\mathbf{M}]$ de passage entre le champ électrique du milieu ($z < z_0$) et celui du milieu ($z > z_N$)

La matrice $[\mathbf{M}]$ est le produit des matrices de transfert $[T_{j,j+1}]$ pour toutes les couches. Elle relie les vecteurs champs électriques \mathbf{E}_0^0 et \mathbf{E}_0^{N+1} dans les demi-espaces en $z = z_0$ et $z = z_N$:

$$\mathbf{E}_0^0 = \left(\prod_{j=0}^N [T_{j,j+1}] \right) \mathbf{E}_0^{N+1} = [\mathbf{M}] \mathbf{E}_0^{N+1}. \quad (1.32)$$

On suppose qu'aucune onde n'arrive sur la multicouche depuis le milieu semi-infini $z > z_N$. On note E_{\pm}^{inc} , $E_{\pm}^{réf}$ et E_{\pm}^{trans} les amplitudes des modes des ondes de polarisations circulaires σ_{\pm} respectivement incidentes, réfléchies et transmises par la structure multicouche. L'équation 1.32 se réécrit :

$$\begin{bmatrix} E_+^{inc} \\ E_+^{réf} \\ E_-^{inc} \\ E_-^{réf} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} & 0 & 0 \\ M_{21} & M_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & M_{33} & M_{34} \\ 0 & 0 & M_{43} & M_{44} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_+^{trans} \\ 0 \\ E_-^{trans} \\ 0 \end{bmatrix}. \quad (1.33)$$

Pour une onde incidente polarisée selon l'axe \mathbf{x} , la réponse magnéto-optique (T , R , α_K , η_K) de notre structure multicouche s'écrit :

$$\left\{ \begin{array}{l} T = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{|M_{11}|^2} + \frac{1}{|M_{33}|^2} \right) \\ R = \frac{1}{2} \left(\left| \frac{M_{21}}{M_{11}} \right|^2 + \left| \frac{M_{43}}{M_{33}} \right|^2 \right) \\ \alpha_K = \frac{1}{2} \arg \left(\frac{M_{11} M_{43}}{M_{21} M_{33}} \right) \\ \tan \eta_K = \frac{|M_{21} M_{33}| - |M_{11} M_{43}|}{|M_{21} M_{33}| + |M_{11} M_{43}|} \end{array} \right. \quad (1.34)$$

La rotation polaire Faraday α_F et l'ellipticité polaire Faraday η_F ont pour expressions :

$$\left\{ \begin{array}{l} \alpha_F = \frac{1}{2} \arg \left(\frac{M_{11}}{M_{33}} \right) \\ \tan \eta_F = \frac{|M_{33}| - |M_{11}|}{|M_{33}| + |M_{11}|} \end{array} \right. \quad (1.35)$$

1.3 Mise hors d'équilibre des films métalliques

Dans ce travail de thèse, la dynamique de films métalliques est réalisée et observée optiquement : une impulsion optique dite « impulsion pompe » porte le système hors d'équilibre, une

impulsion optique dite « impulsion sonde » permet de suivre l'évolution temporelle de propriétés optiques. Afin de pouvoir interpréter l'évolution temporelle de ces propriétés optiques, cette section a pour objectif de donner une description microscopique des phénomènes transitoires en jeu après l'injection optique d'énergie.

L'excitation optique et la relaxation peuvent être résumées par les étapes suivantes :

- absorption « instantanée » de l'impulsion pompe par le gaz d'électrons qui se trouvait initialement à la température T_0 . La distribution électronique créée est athermale.
- l'énergie injectée est redistribuée au sein du gaz d'électrons via des collisions entre les électrons. Le gaz d'électrons retrouve une distribution quasi-thermale, c'est à dire une distribution de Fermi-Dirac de température T_e au bout de quelques centaines de femtosecondes. Cette température est différente de celle du réseau.
- les collisions des électrons avec les phonons permettent de transférer l'énergie injectée dans le gaz d'électrons vers le réseau. La thermalisation de l'ensemble électrons/réseau à une température commune T_L se fait en quelques picosecondes. La capacité calorifique du réseau est environ 100 fois plus grande que celle du gaz d'électrons, l'élévation finale de température est faible (voir estimation 4.2.1).
- la diffusion thermique dans le substrat et dans les directions latérales constitue la dernière étape de thermalisation du système. Le métal revient à sa température initiale T_0 . Cette dernière étape se déroule sur une échelle de temps de 100 ps.

Ces étapes ne se déroulent pas séquentiellement, mais en parallèle. Cependant, les échelles de temps caractéristiques sont très différentes, ce qui donne un certain sens à cette vision séquentielle. Chacune de ces étapes fait l'objet d'une description plus détaillée dans les paragraphes suivants. Puisque la multicouche étudiée (Au/Co/Au) comporte un métal noble (Au), nous commençons par exposer la mise hors équilibre et les mécanismes de relaxation pour ce métal noble. Dans un deuxième temps, les différences et similitudes pour un métal de transition sont soulignées. Enfin, nous décrivons les phénomènes mis en jeu pour la dynamique de spins.

1.3.1 Retour à l'équilibre pour l'or

Mise hors d'équilibre

Dans nos expériences, la mise hors d'équilibre de l'or (métal noble) se fait par absorption intrabande d'une impulsion pompe d'énergie $\hbar\omega_p = 1,55$ eV. Lors de ce processus, un électron d'état d'énergie E en dessous du niveau de Fermi est porté dans un état d'énergie $E + \hbar\omega_p$, voir la figure 1.9. Ainsi, la zone d'énergie $[E_F - \hbar\omega_p, E_F]$ est en partie dépeuplée et les états d'énergie dans la zone $[E_F, E_F + \hbar\omega_p]$ sont en partie remplis. La distribution électronique créée est athermale.

La variation du nombre d'occupation $df_{\text{exc}}(E)$ peut être estimée : il suffit de calculer le nombre d'électrons arrivant dans les états d'énergie E et le nombre d'électrons quittant ces états. On trouve [53, 54] :

$$df_{\text{exc}}(E) = A_{\text{exc}} \{ n(E - \hbar\omega_p) f_0(E - \hbar\omega_p) [1 - f_0(E)] - n(E + \hbar\omega_p) f_0(E) [1 - f_0(E + \hbar\omega_p)] \}, \quad (1.36)$$

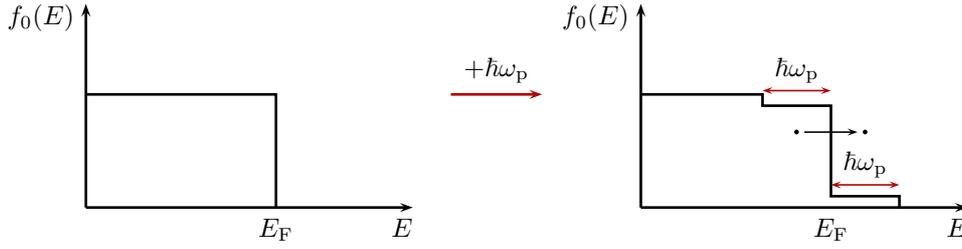


FIGURE 1.9: Schéma de principe de la mise hors d'équilibre de l'or : création d'une distribution électronique athermale via l'absorption intrabande de l'impulsion pompe par les électrons de conduction.

où $n(E)$ est la densité d'états électroniques autour de l'énergie E . $f_0(E)$ est la distribution de Fermi-Dirac du gaz électronique à l'équilibre⁵ (avant excitation optique). A_{exc} est proportionnel à l'intensité du laser de pompe et rend compte de l'énergie injectée dans le gaz d'électrons. L'expression 1.36 est valable uniquement pour une dépopulation faible. La quantité d'énergie injectée est souvent calculée en terme de température équivalente d'excitation T_{exc} , c'est à dire la température d'une distribution de Fermi-Dirac possédant la même énergie totale que la distribution perturbée :

$$\int En(E)[f_0 + df_{\text{exc}}(E)]dE \equiv \int En(E)f_{T_{\text{exc}}}(E)dE. \quad (1.37)$$

Redistribution de l'énergie injectée au sein du gaz d'électrons

Les interactions entre électrons constituent un problème à N corps très complexe. La force de Coulomb est à longue portée, chaque électron est en interaction avec les $N - 1$ électrons restants. On simplifie ce problème à N corps en introduisant la notion d'écrantage et en décrivant les électrons sous forme de quasi-particules. De manière grossière, on peut considérer chaque électron comme étant entouré d'un nuage de charges positives qui écranterait l'interaction de l'électron avec les autres. Ce nuage de charges positives rend compte de la répulsion entre électrons. Ainsi, le potentiel coulombien à longue portée en $1/r$ est écranteré par la réorganisation spatiale des charges et cède la place à un potentiel à courte portée [53–57]. Le problème est donc ramené à l'interaction d'une quasi-particule formée par un électron entouré de son nuage positif avec les autres quasi-particules à travers un potentiel écranteré. Cette interaction est traitée comme une faible perturbation (théorie de Landau des liquides de Fermi normaux [56]).

Les interactions entre les quasi-particules sont traitées comme des collisions élastiques à deux corps selon le diagramme de collisions de la figure 1.10 :

Deux quasi-particules de vecteurs d'ondes \mathbf{k}_1 et \mathbf{k}_2 et d'énergie E_1 et E_2 sont diffusés vers des états de vecteurs d'ondes \mathbf{k}_3 et \mathbf{k}_4 et d'énergie E_3 et E_4 . Au moyen de la règle d'or de Fermi, le taux de diffusion global pour l'état $|\mathbf{k}_1\rangle$ est donné par [57, 58] :

$$\left. \frac{df(\mathbf{k}_1)}{dt} \right|_{e-e} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4} |M|^2 F(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4) \delta(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4) \delta(E_1 + E_2 - E_3 - E_4), \quad (1.38)$$

⁵ $f_0(E) \equiv \frac{1}{\exp\left(\frac{E - \mu}{k_B T_0}\right) + 1}$, $\mu \approx E_F$.

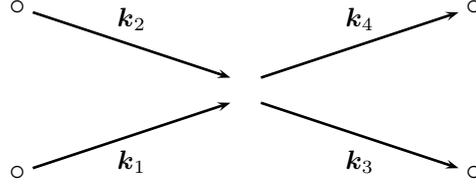


FIGURE 1.10: Diagramme de collision entre deux quasi-particules.

où :

- $\delta(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4)$ traduit la conservation de l'impulsion pendant la collision.
- $\delta(E_1 + E_2 - E_3 - E_4)$ représente la conservation de l'énergie pendant la collision.
- $F(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4)$ traduit le principe d'exclusion de Pauli. F vaut :

$$F(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4) = -f(\mathbf{k}_1)f(\mathbf{k}_2)[1 - f(\mathbf{k}_3)][1 - f(\mathbf{k}_4)] + [1 - f(\mathbf{k}_1)][1 - f(\mathbf{k}_2)]f(\mathbf{k}_3)f(\mathbf{k}_4). \quad (1.39)$$

F comporte deux termes : le premier représente la diffusion hors de l'état $|\mathbf{k}_1\rangle$, le second la diffusion vers l'état $|\mathbf{k}_1\rangle$. Si le gaz d'électrons est thermalisé, f est une distribution de Fermi-Dirac et F vaut 0 : le nombre de quasi-particules « entrants » vaut le nombre de quasi-particules « sortants ». Ainsi, les collisions électrons-électrons permettent de redistribuer l'énergie injectée au sein du gaz et la distribution électronique athermale évolue vers une distribution thermalisée.

- M est l'élément de matrice de diffusion. $M = M(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4) = \langle \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4 | H_{\text{int}} | \mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2 \rangle$, avec H_{int} l'hamiltonien d'interaction coulombienne. Cette dernière est écrantée et cela se traduit par une réduction du potentiel d'interaction coulombien d'un facteur $1/\varepsilon(\mathbf{q}, \omega)$ [55], où ε est la constante diélectrique du matériau. Via certaines approximations [53, 54], on aboutit à un modèle simple d'écrantage statique avec un potentiel d'interaction à courte portée de type Yukawa :

$$U(\mathbf{r}) = \frac{e}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r r} \exp(-q_E r), \quad (1.40)$$

où q_E représente l'inverse de la longueur d'écrantage.

Le temps de thermalisation $\tau_{e-e}(E)$ d'un état d'énergie E prend en compte l'interaction coulombienne écrantée entre les électrons et le remplissage de l'espace des phases où le principe d'exclusion de Pauli est à considérer. Ce temps de thermalisation suit la loi [53, 56, 59] :

$$\tau_{e-e}(E) \propto \frac{1}{(E - E_F)^2}. \quad (1.41)$$

La relaxation est donc rapide (fs) pour $E \gg E_F$ et ralentie considérablement pour les états proches du niveau de Fermi du fait de la réduction des états finals disponibles pour les processus de relaxation. On peut alors définir un temps effectif de thermalisation électronique $\tau_{e-e} \approx 500$ fs pour l'or observé expérimentalement et reproduit par des simulations numériques basées sur un modèle de Landau des liquides de Fermi [53–56, 60, 61]. Pour des temps inférieurs à τ_{e-e} , le gaz électronique peut être décrit phénoménologiquement comme deux populations d'électrons : une

population thermalisée à forte densité et une population athermale à faible densité [60–62].

Redistribution de l'énergie entre les électrons et le réseau

Les collisions entre électrons permettent de redistribuer l'énergie injectée au sein du gaz électronique. Cette énergie est également transférée au réseau via des collisions entre électrons et phonons, d'où une thermalisation dite externe électrons/réseau.

Un électron peut émettre ou absorber un phonon de vecteur d'onde \mathbf{q} et d'énergie $\hbar\omega_{\mathbf{q}}$. Les interactions électrons-phonons peuvent être décrites comme des collisions élastiques⁶ schématisées par le diagramme de la figure 1.11.

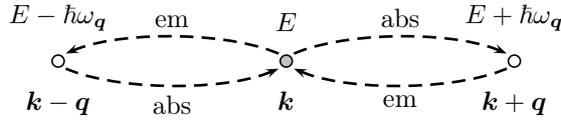


FIGURE 1.11: Diagramme de collision entre un électron et un phonon.

Le taux de diffusion de l'état $|\mathbf{k}\rangle$ est donné par [54, 63, 64] :

$$\left. \frac{df(\mathbf{k})}{dt} \right|_{e-ph} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\mathbf{q}} |M_{e-ph}(q)|^2 \{ F^-(\mathbf{k}, \mathbf{q}) \delta(E_{\mathbf{k}} - E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} - \hbar\omega_{\mathbf{q}}) + F^+(\mathbf{k}, \mathbf{q}) \delta(E_{\mathbf{k}} - E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + \hbar\omega_{\mathbf{q}}) \}, \quad (1.42)$$

avec :

$$\begin{cases} F^-(\mathbf{k}, \mathbf{q}) &= -f(\mathbf{k})[1 - f(\mathbf{k} - \mathbf{q})][1 + N_0(\mathbf{q})] + f(\mathbf{k} - \mathbf{q})[1 - f(\mathbf{k})]N_0(\mathbf{q}), \\ F^+(\mathbf{k}, \mathbf{q}) &= -f(\mathbf{k})[1 - f(\mathbf{k} + \mathbf{q})]N_0(\mathbf{q}) + f(\mathbf{k} + \mathbf{q})[1 - f(\mathbf{k})][1 + N_0(\mathbf{q})]. \end{cases} \quad (1.43)$$

$N_0(\mathbf{q})$ est le nombre d'occupation du mode de phonon d'énergie $\hbar\omega_{\mathbf{q}}$, $N_0(\mathbf{q})$ est donné par la distribution de Bose-Einstein⁷. Les facteurs $F^-(\mathbf{k}, \mathbf{q})$ et $F^+(\mathbf{k}, \mathbf{q})$ traduisent les principes de Pauli pour les électrons et de Bose pour les phonons.

Les interactions entre électrons et phonons sont de nature électrostatique. Les phonons modifient le potentiel électrostatique des ions. Ainsi, la structure de bandes n'est plus la même ainsi que les énergies des électrons. Dans les métaux nobles, ce problème à N corps très complexe peut être simplifié en décrivant les interactions entre électrons et phonons par un potentiel de déformation. L'élément de matrice de diffusion $M_{e-ph}(q)$ est calculé en développant le potentiel d'interaction en puissance de q . Au premier ordre en q , on trouve [64] :

$$|M_{e-ph}(q)|^2 = \frac{\hbar^2 \Xi^2}{2\rho V} \frac{q^2}{\hbar\omega_{\mathbf{q}}}, \quad (1.44)$$

où ρ est la masse volumique, V le volume du cristal et Ξ le paramètre de couplage. L'expression 1.44 est valable pour des faibles valeurs de q ($q < k_F$) ce qui n'est pas vérifié pour l'ensemble

⁶on néglige les processus *umklapp* [53, 54].

⁷ $N_0(\mathbf{q}) = \frac{1}{\exp(\frac{\hbar\omega_{\mathbf{q}}}{k_B T_0}) - 1}$.

des collisions électron-phonon. Néanmoins, pour des températures supérieures à la température de Debye, les auteurs de [53, 54] ont montré que la dépendance en q de $|M_{e-ph}(q)|^2$ influe peu sur les résultats à condition de prendre Ξ comme paramètre ajustable.

Pour ce travail de thèse, on retiendra l'ordre de grandeur du temps τ_{e-ph} de thermalisation des électrons avec le réseau : $\tau_{e-ph} \approx 1$ ps pour l'or [60]. Ainsi, nous constatons que les temps de thermalisation interne (entre électrons) et externe (électron et phonon) se font sur des échelles de temps comparables pour les métaux nobles. Les auteurs de [60, 62] décrivent simultanément ces deux processus de thermalisation de manière phénoménologique en subdivisant le système en trois populations :

- les électrons non thermalisés. On note N la densité volumique d'énergie contenue par cette population.
- les électrons thermalisés. Cette population est décrite par une température T_e et une capacité calorifique C_e .
- les phonons. Ces derniers sont modélisés par un réservoir avec une température T_l et une capacité calorifique C_l .

La redistribution de l'énergie injectée est donnée par un jeu d'équations couplées :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial N}{\partial t} = -\alpha N - \beta N, \\ \frac{\partial C_e T_e}{\partial t} = -G_{e-ph}(T_e - T_l) + \alpha N, \\ \frac{\partial C_l T_l}{\partial t} = G_{e-ph}(T_e - T_l) + \beta N, \end{array} \right. \quad (1.45)$$

où G_{e-ph} est la constante de couplage électron-phonon, α le taux de chauffage du gaz électronique et $\beta = G_{e-ph}/C_e$ le taux du couplage électron-phonon. Ce modèle permet de tenir compte des effets athermaux en étendant le modèle à deux températures généralement utilisé dans une première approche où l'on considère l'interaction entre deux populations (électrons et phonons) déjà thermalisées [65, 66]. En considérant de faibles élévations de températures, le système 1.45 est linéarisé et on trouve les fonctions de réponse suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} N = H(t) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{th'}}\right), \\ \Delta T_e C_e \approx \Delta T_e = H(t) \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{th}}\right)\right] \exp\left(-\frac{t}{\tau_p}\right), \end{array} \right. \quad (1.46)$$

avec $\tau_p = 1/\beta$, $\tau_{th} = 1/\alpha$ et $\tau_{th'} = 1/(\alpha + \beta)$. $H(t)$ est la fonction d'Heavyside. On identifie le temps de thermalisation électron-électron τ_{e-e} à τ_{th} et τ_{e-ph} à τ_p . Ce jeu d'équations permettra d'interpréter le temps de montée de la température de la population thermalisée d'électrons au moyen de τ_{e-e} et son temps de descente dû à l'interaction avec le réseau avec τ_{e-ph} , voir le chapitre 4. Ce modèle « global » permet ainsi de décrire la relaxation du métal noble au moyen de temps de thermalisation moyens, alors que la description microscopique (équation de Boltzmann) ne le permet pas. Pour l'or, $\tau_{e-e} \approx 500$ fs, $\tau_p \approx 1$ ps et $\tau_{th'} \approx 330$ fs.

Diffusion de l'énergie injectée en dehors de la région excitée optiquement

L'énergie injectée par l'impulsion pompe est également diffusée dans le substrat et la direction transverse. Le métal revient ainsi à sa température initiale T_0 . Cette étape de thermalisation se déroule sur une échelle de temps 100 ps [67] et ne sera pas davantage étudiée.

1.3.2 Retour à l'équilibre pour des métaux de transition

La relaxation dans les métaux de transition se fait suivant les mêmes grandes étapes que dans les métaux nobles : thermalisation interne des électrons entre eux, thermalisation externe des électrons avec le réseau et diffusion de l'énergie. Les différences majeures entre les métaux nobles et les métaux de transition résident :

- en une structure de bandes différente. Dans les métaux nobles, la surface de Fermi fait intervenir seulement les électrons de type s alors qu'un métal de transition a une surface de Fermi avec des électrons de type sp (qui sont « légers ») et des électrons de type d (qui sont « lourds »). Ces électrons d peuvent donc jouer le rôle de centres diffuseurs pour les électrons chauds ce qui leur offre un mécanisme de relaxation supplémentaire. Le métal de transition possède également une bande 3d au niveau de Fermi et présente ainsi une plus grande densité d'états libres au niveau de Fermi que le métal noble. L'espace des états possibles dans lesquels les électrons chauds peuvent diffuser est donc plus grand pour le métal de transition que pour le métal noble.

Ainsi, par sa structure de bandes, le métal de transition peut accélérer la dynamique de relaxation entre électrons. On trouve un temps de thermalisation moyen de 50 fs pour le cobalt et le nickel [68, 69].

- en la prise en compte des phonons optiques. L'or a une structure cfc, sa maille élémentaire est monoatomique. Ainsi les phonons sont seulement acoustiques. Pour le cobalt (métal de transition constituant notre système d'étude), la structure est hc, d'où la nécessité de considérer les phonons optiques. La diffusion des électrons par des phonons optiques longitudinaux de grands vecteurs d'onde q prédomine dans la relaxation des électrons avec le réseau [44]. Si on prend en compte ces phonons optiques, de même que pour les électrons, il faudrait traiter spécialement des phonons optiques « chauds » qui ne peuvent pas être décrits par une distribution de Bose [44].

1.3.3 Dynamique de spins

Position du problème

L'énergie injectée dans un métal ferromagnétique conduit à une élévation de température après thermalisation. Cette thermalisation a donc pour effet de réduire l'aimantation du système⁸. Il reste à comprendre l'évolution de l'aimantation $M(t)$, à savoir comment l'énergie des électrons excités optiquement au départ est redistribuée entre les électrons thermiques, le réseau et les

⁸l'aimantation diminue avec la température.

spins. L'aspect hors équilibre du matériau magnétique aux temps ultra-courts (< 1 ps) doit être décrit.

La figure 1.12 permet de schématiser l'état d'un matériau ferromagnétique juste après excitation optique (instant $t = 0^+$). La mise hors d'équilibre est réalisée au moyen d'une impulsion

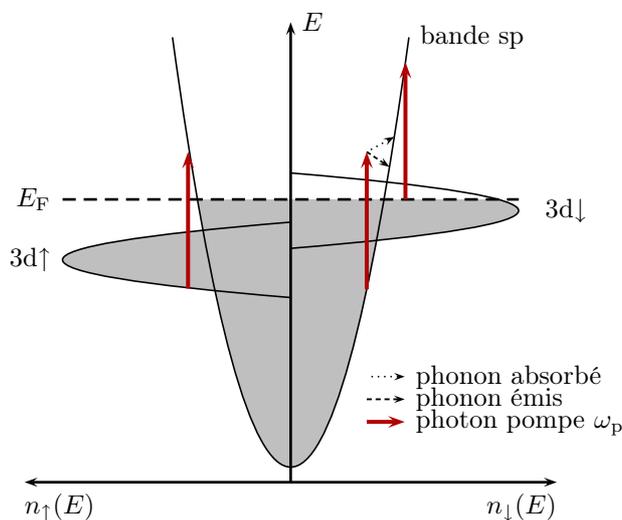


FIGURE 1.12: Schéma de l'état du matériau ferromagnétique juste après excitation optique. On a considéré un métal ferromagnétique partiellement polarisé (cas du cobalt).

pompe polarisée rectilignement : le pompage optique n'est pas spécifique en spin.

Description phénoménologique : modèle à 3 températures

Une première modélisation utilisée pour décrire la dynamique de spins est un modèle à 3 températures [5]. Le système est divisé en trois sous-systèmes : le gaz électronique, le réseau et la population de spins, voir la figure 1.13. Chacun de ces sous-systèmes est supposé en équilibre

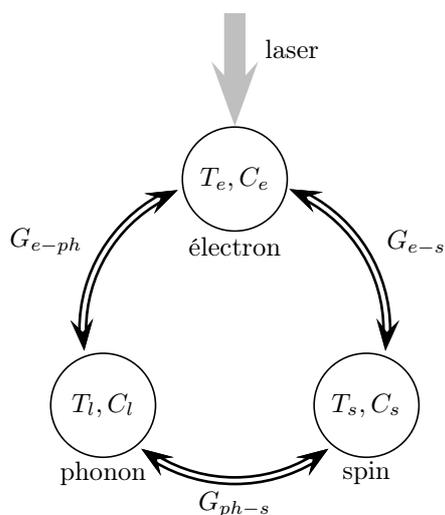


FIGURE 1.13: Modèle à 3 températures : la relaxation d'un métal ferromagnétique résulte de la distribution d'énergie injectée entre trois réservoirs interagissant entre eux.

interne et défini par une température. Cette température traduit la quantité d'énergie injectée dans ce sous-système. Ainsi l'état d'aimantation est caractérisé par une température T_s , température de spin d'une population de spins thermalisés. Les électrons sont caractérisés par une température T_e et le réseau par T_l . Les interactions entre les trois réservoirs (électrons, réseau et spin) distribuent l'énergie injectée par l'impulsion pompe jusqu'à ce que les trois températures T_e , T_l et T_s soient égales. Le modèle à 3 températures décrit l'interaction entre les trois réservoirs par un système d'équations différentielles couplées entre elles [5] :

$$\begin{cases} \frac{\partial C_e T_e}{\partial t} &= -G_{e-ph}(T_e - T_l) - G_{e-s}(T_e - T_s) + P(t), \\ \frac{\partial C_s T_s}{\partial t} &= -G_{e-s}(T_s - T_e) - G_{ph-s}(T_s - T_l), \\ \frac{\partial C_l T_l}{\partial t} &= -G_{e-ph}(T_l - T_e) - G_{ph-s}(T_l - T_s), \end{cases} \quad (1.47)$$

où $P(t)$ est l'énergie injectée dans le gaz d'électrons par l'impulsion laser. G_{e-ph} , G_{e-s} et G_{ph-s} sont les constantes de couplage entre les 3 réservoirs.

Ce modèle à 3 températures permet donc de généraliser le modèle à deux températures (paragraphe 1.3.1) en rajoutant un réservoir pour décrire le système de spins. Toutefois, contrairement au modèle à deux températures, ce modèle à 3 températures n'a pas de justification microscopique : les températures T_e , T_l et T_s sont des grandeurs thermodynamiques définies par rapport à une situation d'équilibre et les constantes de couplage sont phénoménologiques.

Description microscopique : modèles d'ondes de densité de spin et de Stoner

Afin d'expliquer la désaimantation dans ce processus de chauffage optique dans les métaux ferromagnétiques, deux modèles microscopiques ont été utilisés : le modèle d'ondes de densité de spin et le modèle de Stoner.

Dans une description en ondes de densité de spin, le désordre magnétique supplémentaire induit par chauffage provient de l'émission de magnons⁹. Les magnons émis ont leurs vecteurs d'onde q petits devant le vecteur primitif du réseau réciproque, ainsi la longueur d'onde du magnon est plus grande que le paramètre de maille du réseau [44]. De tels magnons ne modifient pas la structure de bandes électroniques, a fortiori le décalage des bandes de spins majoritaires et minoritaires reste inchangé. Les moments magnétiques locaux sont ainsi conservés, mais la direction de l'aimantation fluctue temporellement et spatialement. D'où une réduction de l'aimantation le long de sa direction moyenne.

Le modèle de Stoner décrit la désaimantation au moyen de processus de diffusion avec renversement de spin pour les électrons de la bande majoritaire qui diffusent soit vers la bande minoritaire soit vers la bande de conduction sp [44]. Un tel mécanisme peut modifier les populations de spins majoritaire et minoritaire et donc l'aimantation du système.

⁹ces magnons sont des modes d'excitations collectives que l'on peut construire comme une combinaison linéaire d'excitations individuelles de création de paire électron-trou de vecteur d'onde q avec abaissement du spin d'une unité [19]. Le mode magnon de vecteur d'onde q correspond à une modulation spatiale de la densité de spin avec un vecteur de modulation q .

Les deux précédents modèles sont complémentaires l'un de l'autre et ne permettent pas de décrire de manière satisfaisante les résultats expérimentaux. Le modèle de Stoner est contredit par les expériences de [70] qui montrent que le décalage des bandes ne disparaît pas immédiatement alors que la température électronique dépasse celle de Curie T_C . Le modèle à ondes de densité de spin (où seuls les magnons à faible vecteur d'onde \mathbf{q} sont pris en compte) est contredit par les expériences résolues en angle de photoémission de la référence [71].

En définitive, les deux modèles précédents ne permettent pas de rendre compte des observations expérimentales aux temps ultra-courts (juste après excitation optique).

1.4 Conclusion

Ce chapitre permet d'articuler les propriétés magnétiques des films ultraminces avec leurs propriétés optiques aussi bien dans le régime statique que dynamique. En portant le film magnétique hors équilibre, plusieurs effets sont possibles :

- la réponse magnéto-optique (T , R , α_K et η_K) du système peut être modifiée.
- les constantes d'anisotropie peuvent également varier, d'où éventuellement une précession de l'aimantation autour d'un champ magnétique effectif local.
- toutes les relations valables en régime statique peuvent être en défaut dans le régime dynamique, en particulier la proportionnalité entre le moment cinétique orbital des électrons L_e et celui de spins S_e . Ainsi, la rotation Kerr magnéto-optique ne serait plus une sonde fidèle de l'aimantation en dynamique (voir chapitre 4).

Nous avons vu dans ce chapitre le rôle central que joue le tenseur diélectrique $[\varepsilon]$ d'un film ferromagnétique :

- les propriétés optiques du film peuvent être exprimées en fonction des coefficients de ce tenseur.
- les coefficients du tenseur sont directement reliés à la structure de bandes et à la distribution des porteurs du matériau.

Ainsi, la relaxation d'un film ferromagnétique porté hors équilibre par excitation optique induit des changements du tenseur diélectrique et par conséquent modifie les propriétés optiques du film. L'étude de l'évolution temporelle des propriétés optiques pourra nous renseigner sur les mécanismes microscopiques via l'évolution du tenseur diélectrique du matériau qui est la grandeur adaptée pour faire le lien entre les processus microscopiques d'interaction et l'évolution temporelle d'une observable expérimentale donnée.

Chapitre 2

Le système Au/Co/Au en régime quasi-statique

Ce chapitre décrit les propriétés physiques en régime quasi-statique de la structure multicouche magnétique étudiée dans cette thèse, à savoir un empilement Au/Co/Au. Dans un premier temps, nous donnons les caractéristiques structurales de l'échantillon ainsi que la méthode de fabrication. Nous présentons ensuite le dispositif expérimental développé pour la mesure des effets Kerr polaires magnéto-optiques. Enfin, une étude de la réponse magnéto-optique de cet échantillon est analysée, en particulier une étude en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. Les valeurs expérimentales sont comparées aux valeurs obtenues dans le cadre de la théorie présentée dans le chapitre précédent. La dépendance en température de la rotation Kerr à saturation est comparée à celle de l'aimantation du cobalt.

2.1 Description de l'échantillon

L'échantillon Au/Co/Au étudié a été élaboré dans l'équipe de P. Beauvillain à l'Institut d'Electronique Fondamentale (Orsay). Il porte le numéro de référence i9305.

Cet empilement de films métalliques (voir la figure 2.1) a été réalisé par évaporation des métaux dans une enceinte à ultra-vide (pression initiale inférieure à 10^{-10} torr). Une lame de silice (BK7) d'épaisseur 1 mm et de surface très lisse (*float glass*) sert de substrat. La première couche déposée est une couche d'or d'épaisseur 28 nm. L'or croît en structure cfc selon l'axe (111). Cette couche sert de tampon et est recuite à 175°C . Cette étape améliore la rugosité de la couche : cette dernière est alors d'un à deux plans atomiques. Le cobalt est ensuite déposé, un cache mobile permet de faire varier l'épaisseur de cette couche. Son épaisseur t_{Co} varie entre 4 et 12 plans atomiques (PA¹) par marche atomique de longueur environ égale à 1,5 nm. Le cobalt croît sous la forme hcp selon l'axe c (0001). La couche de cobalt est constituée de cristallites dont l'extension latérale est de 200 Å. Afin d'éviter l'oxydation du cobalt, une couche de couverture d'or (111) cfc d'épaisseur 15 PA² est déposée sur le cobalt.

¹la distance entre plans atomiques vaut pour le cobalt 2,04 Å.

²la distance entre plans atomiques vaut pour l'or 2,36 Å.

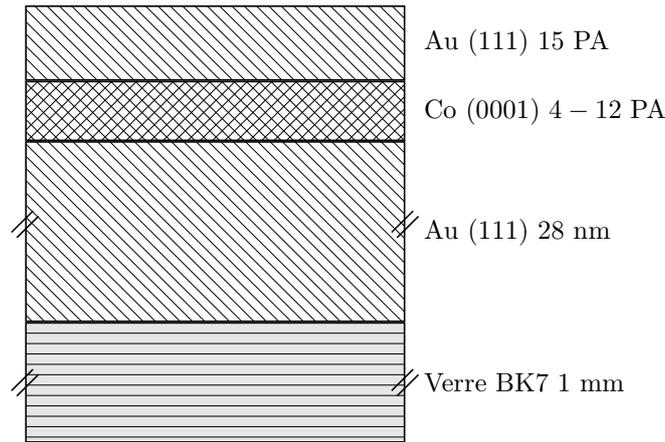


FIGURE 2.1: Schéma de la structure de la multicouche Au/Co/Au. L'échelle n'est pas respectée.

Au cours de la croissance de l'échantillon, la texture et la structure sont contrôlées par de nombreuses caractérisations, en particulier :

- microscopie électronique. Elle permet une vue de profil de l'empilement pour voir la continuité, la planéité des films et d'éventuels défauts. En transmission, cette technique permet de voir l'orientation des différents grains et la taille des zones atomiques planes.
- diffraction en réflexion sous incidence rasante d'électrons de haute énergie (RHEED). Cette technique est sensible à la surface du film. Ceci permet de connaître le mode de croissance du film et de la distance entre les spots de diffraction, on peut déduire les paramètres du réseau dans le plan du film. L'intensité diffractée au niveau d'un spot varie en fonction du remplissage de la couche supérieure : on peut contrôler ainsi l'épaisseur et une éventuelle dégradation de la qualité des couches.
- mesures des rotations Kerr magnéto-optiques pour avoir des renseignements sur les propriétés magnétiques du multicouche tout au long de la croissance.

Pour plus de renseignements, on peut se reporter aux références [15, 29, 72–76]. Le magnétisme des couches ultraminces de cobalt dépend fortement de la texture des couches et donc du mode de préparation [29, 33].

2.2 Dispositif expérimental de caractérisation magnéto-optique de l'échantillon

Notre sonde magnétique est l'effet Kerr polaire magnéto-optique. Il s'agit donc de réaliser une mesure ellipsométrique de l'onde réfléchie par l'échantillon. La rotation Kerr polaire complexe a pour ordre de grandeur en module la dizaine de millidegrés aussi bien sur α que η . Une telle sensibilité est réalisable au moyen d'un modulateur photo-élastique [77, 78].

2.2.1 Technique de mesure : le modulateur photo-élastique

Un modulateur photo-élastique, « PEM », est un matériau transparent isotrope sur lequel un cristal piézo-électrique exerce une contrainte mécanique modulée dans le temps. Ce matériau présente ainsi une biréfringence induite modulée. La matrice de Jones $[M_{\text{PEM}}]$ associée au modulateur photo-élastique s'écrit :

$$[M_{\text{PEM}}] = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \exp(iA \cos \Omega t) \end{bmatrix}, \quad (2.1)$$

avec A l'amplitude de la modulation et Ω la fréquence de modulation, fréquence imposée par le cristal piézo-électrique.

2.2.2 Le modulateur photo-élastique dans la configuration 0°

Considérons le montage de la figure 2.2 dite « configuration 0° ». La dénomination « 0° » vient du fait que les différents repères sont pris par rapport aux axes optiques du modulateur. En

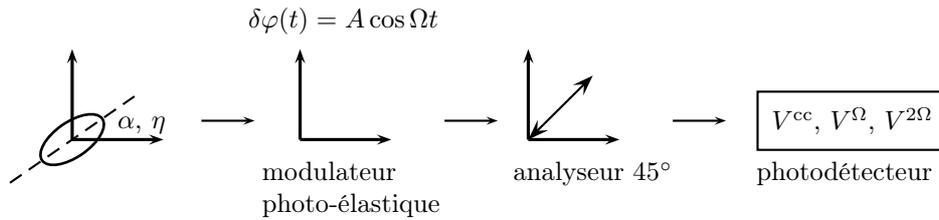


FIGURE 2.2: Montage du modulateur photo-élastique dans la configuration 0° : une onde d'état de polarisation elliptique (α, η) arrive sur le modulateur photo-élastique auquel est accolé un analyseur. Les différents repères sont pris par rapport aux axes optiques du modulateur.

utilisant les notations de cette figure, l'analyse de Fourier de la tension lue par le photodétecteur V_{mesure} s'écrit :

$$V_{\text{mesure}} = V^{\text{cc}} + V^\Omega \cos(\Omega t) + V^{2\Omega} \cos(2\Omega t) + \dots, \quad (2.2)$$

avec :

$$\begin{cases} V^{\text{cc}} & \propto [1 + J_0(A) \sin(2\alpha)] I_{\text{inc}}, \\ V^\Omega & \propto 2J_1(A) \sin(2\eta) I_{\text{inc}}, \\ V^{2\Omega} & \propto 2J_2(A) \sin(2\alpha) I_{\text{inc}}, \end{cases} \quad (2.3)$$

où $J_k(A)$ (k valant respectivement 0, 1 et 2) est la valeur que prend la fonction de Bessel J d'ordre k en A . I_{inc} est l'intensité de l'onde incidente. L'amplitude A de la modulation du photo-élastique est choisie de telle manière que $J_0(A) \approx 0$. Pour des angles α et η petits devant 1, les expressions 2.3 s'écrivent :

$$\begin{cases} V^{\text{cc}} & \propto I_{\text{inc}}, \\ V^\Omega & \propto 4J_1(A)\eta I_{\text{inc}}, \\ V^{2\Omega} & \propto 4J_2(A)\alpha I_{\text{inc}}. \end{cases} \quad (2.4)$$

Dans cette configuration et pour des angles α et η petits devant 1° , V^Ω et $V^{2\Omega}$ sont proportionnels respectivement à l'ellipticité η et à la rotation α de l'onde incidente par rapport aux

axes du modulateur photo-élastique.

2.2.3 Dispositif et protocole expérimentaux de mesures des cycles d'hystérésis

Dispositif expérimental

Le cycle d'hystérésis de l'échantillon est obtenu par la mesure de la rotation Kerr polaire complexe en fonction du champ magnétique extérieur appliqué. Le faisceau incident fait un angle de 2° avec la normale de l'échantillon³, d'où la configuration polaire figure 2.3. L'électroaimant utilisé peut monter en champ jusqu'à 1 T pour un entrefer de 4 cm permettant de placer l'échantillon et une sonde de Hall. L'ensemble {modulateur photo-élastique, analyseur} permet la mesure ellipsométrique de l'onde réfléchie par l'échantillon. Une détection synchrone⁴ référencée à Ω (respectivement à 2Ω) permet de mesurer V^Ω (respectivement $V^{2\Omega}$), tension proportionnelle à l'ellipticité η (respectivement à la rotation α) de l'onde réfléchie. Afin de s'affranchir des fluctuations de la source, une portion du faisceau incident est prélevée avant l'échantillon et ainsi on obtient une référence proportionnelle à l'intensité de la source I_{inc} . On effectue la division directement au niveau de la détection synchrone. Pour la mesure du cycle d'hystérésis, l'électroaimant balaie une plage de champ $[H_{\text{max}}, H_{\text{min}}]$ puis $[H_{\text{min}}, H_{\text{max}}]$, ceci au moyen d'une alimentation bipolaire⁵. Pour chaque consigne du courant dans cette alimentation, le signal en sortie de la détection synchrone et le signal d'une sonde Hall sont mesurés. La mesure du cycle d'hystérésis est pilotée par ordinateur.

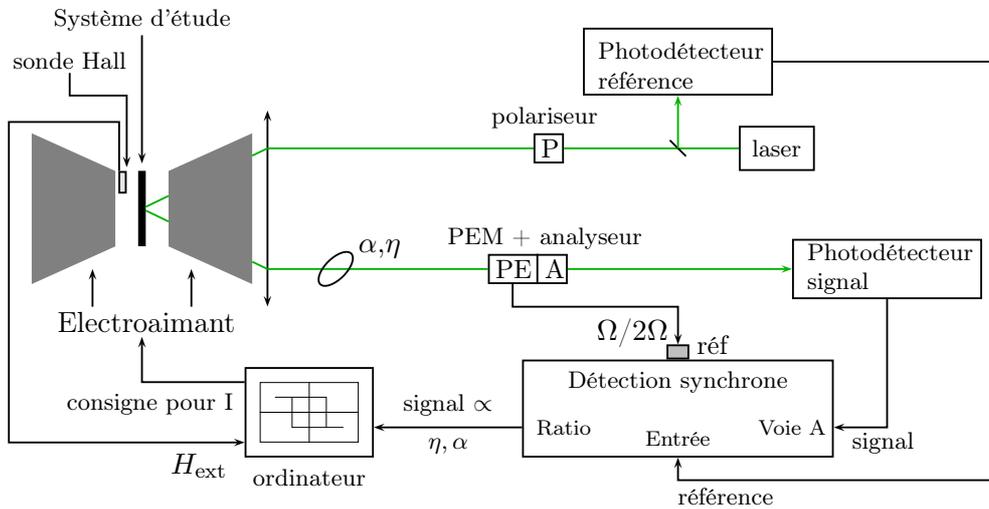


FIGURE 2.3: Schéma du montage des mesures de rotation Kerr et ellipticité Kerr. Les angles au niveau de l'entrefer sont exagérés.

L'état de polarisation de l'onde réfléchie diffère de la rotation Kerr complexe $\theta_K = \alpha_K + i\eta_K$

³pour un tel angle, l'effet Kerr polaire est deux ordres de grandeur plus grands que les effets Kerr longitudinaux. Nous considérerons alors que seule la rotation Kerr polaire complexe est mesurée, voir paragraphe 1.2.2.

⁴SRS Stanford Research System Model SR830 DSP Lock-In Amplifier.

⁵alimentation bipolaire Kepco (± 20 V, ± 20 A).

de l'échantillon par des valeurs de décalage :

$$\begin{cases} \alpha &= \alpha_K + \alpha_{\text{offset}} , \\ \eta &= \eta_K + \eta_{\text{offset}} , \end{cases} \quad (2.5)$$

où α_{offset} et η_{offset} proviennent de la rotation Faraday complexe due à la lentille de focalisation accolée au pôle de l'électroaimant et de l'erreur d'alignement de l'axe du polariseur avec les axes optiques du modulateur photo-élastique.

Pour ajuster η_{offset} , le polariseur de l'onde incidente est placé en amont de deux miroirs M1 et M2, voir la figure 2.4. En sortie du polariseur, l'onde est rectiligne. Si elle n'est pas polarisée

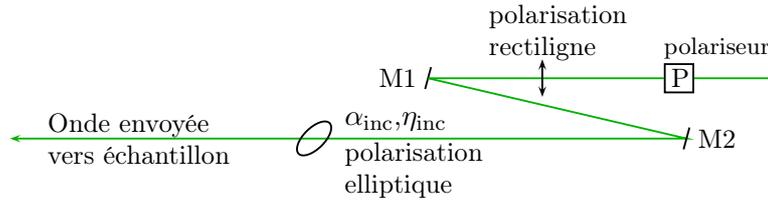


FIGURE 2.4: Schéma du montage du polariseur P.

« \mathbf{p} », les miroirs M1 et M2 rendent la polarisation légèrement elliptique. η_{offset} est modifié en tournant le polariseur (ceci joue aussi α_{offset}). Le modulateur photo-élastique est monté sur un plateau tournant⁶ motorisé. On peut ensuite ajuster l'orientation du modulateur photo-élastique de manière à annuler la contribution statique α_{offset} .

Protocole expérimental de la mesure de la rotation Kerr polaire α_K

La détection synchrone est référencée à 2Ω . Le signal en sortie est proportionnel à l'angle α de l'onde réfléchiée. La calibration en angle de ce signal est réalisée en tournant le modulateur photo-élastique d'un angle arbitraire faible (de manière à rester dans une plage linéaire entre $V^{2\Omega}$ et α , cf. l'expression 2.4) en notant la tension $V^{2\Omega}$ induite.

La figure 2.5 (a) présente un exemple représentatif de cycle d'hystérésis brut obtenu pour une épaisseur de cobalt valant 8 PA. Le cycle n'est pas centré à cause de α_{offset} et présente près de la saturation une variation linéaire. Ce comportement linéaire résulte en partie d'une contribution Faraday de la lentille de focalisation (qui est accolée au pôle de l'électroaimant, d'où des effets magnéto-élastiques) et d'une contribution Kerr des impuretés magnétiques dans le substrat en verre. Il semblerait qu'il y ait d'autres contributions non-identifiées. Pour obtenir la rotation Kerr α_K de l'échantillon, on ajuste les parties près des saturations H_{max} et H_{min} par une fonction linéaire. On calcule a_{moy} le coefficient moyen des deux fonctions linéaires trouvées et on retranche la droite d'équation $y = a_{\text{moy}} H_{\text{ext}}$ au cycle. Puis, on recentre le cycle pour corriger α_{offset} . La figure 2.5 (b) montre le cycle d'hystérésis obtenu après correction.

La rotation Kerr à saturation α_{sat} n'est déterminée correctement que si l'on trace le cycle majeur. Deux précautions sont à prendre :

⁶Newport plateau tournant M-URM 150PP pas à pas motorisé de précision le millidegré.

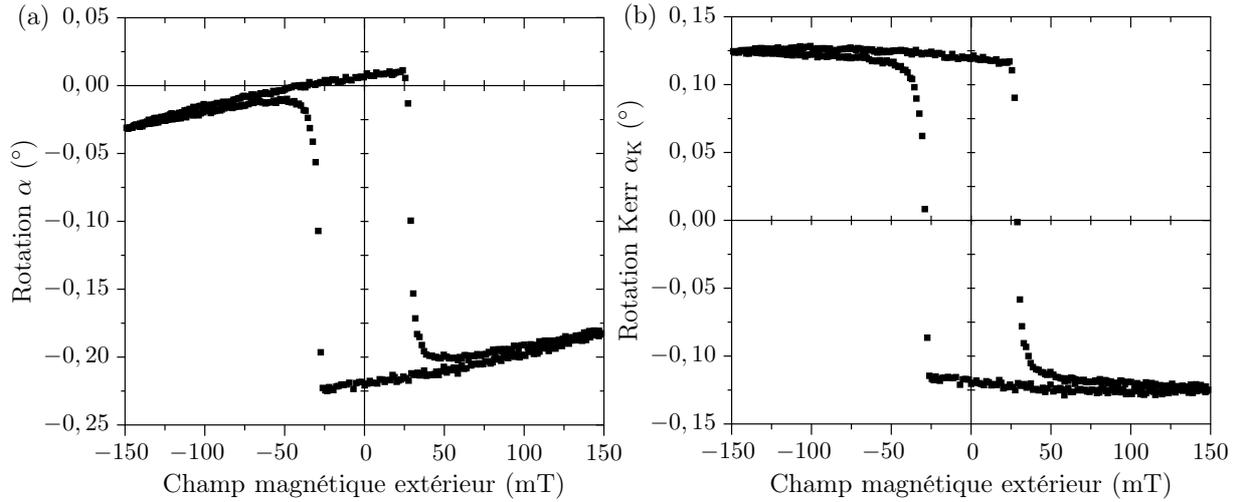


FIGURE 2.5: Exemples représentatifs de cycles d'hystérésis brut et corrigé : en (a) cycle brut et en (b) cycle corrigé.

- la valeur maximale du champ magnétique extérieur doit permettre de porter l'échantillon à saturation. Pour un cycle droit, le choix $H_{\max} = -H_{\min} = 2H_{\text{coer}}$ convient. Lorsque les cycles sont arrondis (aimantation partiellement dans le plan), pour un ajustement correct de la partie anhystérétique du cycle « loin » de la région du champ coercitif qui est arrondie, on utilise des champs magnétiques forts (200 mT). Pour déterminer α_{sat} , seules les parties « linéaires » comptent.
- le système doit se trouver à l'équilibre thermodynamique pour chaque point du cycle. Sinon, le système peut se trouver dans un état métastable, l'aimantation tend à se renverser progressivement dans le temps : phénomène de traînage magnétique [29, 30]. Afin de nous assurer que le système est à l'équilibre à chaque instant du cycle, nous avons vérifié que le cycle n'est pas modifié en variant la vitesse de balayage du champ magnétique extérieur.

2.3 Caractérisation magnéto-optique de l'échantillon Au/Co/Au

2.3.1 Evolution qualitative des cycles d'hystérésis avec l'épaisseur de cobalt

La figure 2.6 représente les cycles d'hystérésis de films de cobalt ayant respectivement 5 PA et 11 PA d'épaisseur. Ces cycles ont été mesurés par rotation Kerr polaire à la longueur d'onde $\lambda = 500$ nm. L'allure du cycle permet de déterminer l'axe de facile aimantation de la couche magnétique de cobalt, voir paragraphe 1.1.3 et figure 1.4. Pour $t_{\text{Co}} = 5$ PA, (figure 2.6 (a)), le cycle est droit : la rotation Kerr à rémanence $\alpha_{\text{rém}}$ est égale à la rotation Kerr à saturation α_{sat} . La direction de facile aimantation est donc perpendiculaire au plan pour une telle épaisseur de cobalt. Ceci est dû à une importante anisotropie magnétique d'interface. Pour $t_{\text{Co}} = 11$ PA (figure 2.6 (b)), $\alpha_{\text{rém}}$ est plus petite que α_{sat} : la direction de facile aimantation est partiellement dans le plan de la couche de cobalt. Pour une interprétation microscopique détaillée des cycles d'hystérésis, on peut consulter les références [29, 30, 33]. Très brièvement, les mécanismes fondamentaux du

retournement de l'aimantation sont au nombre de trois : en premier la nucléation (formation de noyaux d'aimantation inverse), la formation du domaine initial (émergence de parois associées autour du volume d'aimantation opposée, étape courte devant le temps de nucléation) et la croissance de ce domaine (propagation de parois).

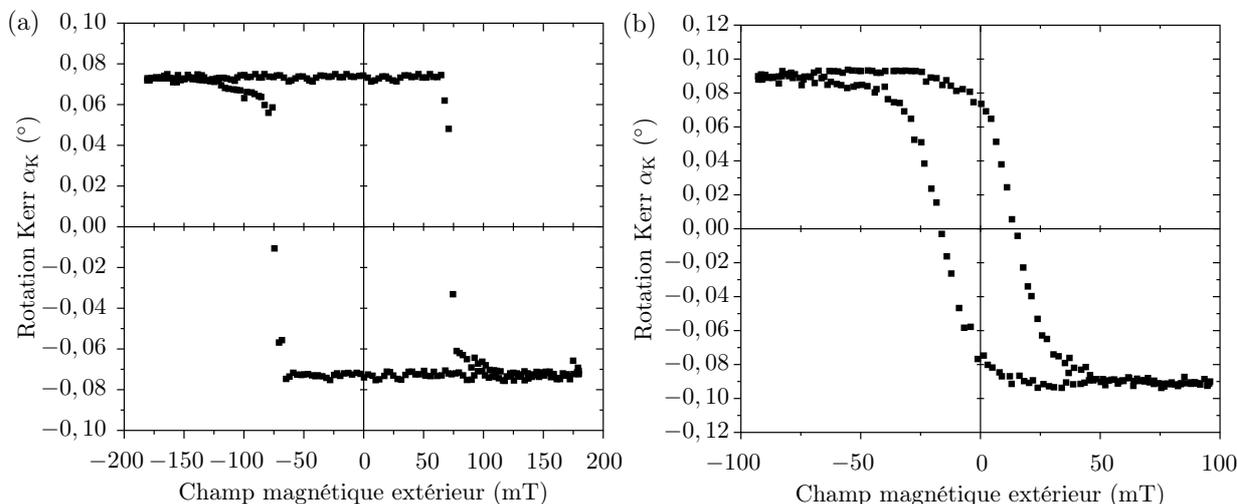


FIGURE 2.6: Allures des cycles d'hystérésis de l'échantillon Au/Co/Au pour deux épaisseurs de cobalt t_{Co} : en (a) $t_{Co} = 5$ PA et en (b) $t_{Co} = 11$ PA.

La figure 2.7 (a) montre la variation de $\alpha_{rém}/\alpha_{sat}$ en fonction de t_{Co} . L'épaisseur de basculement du film magnétique vaut 9 PA. Ceci est en bon accord avec la valeur $t_{perp} = 10$ PA calculée dans le paragraphe 1.1.3. La figure 2.7 (b) représente la variation de $\alpha_{rém}$ en fonction de la position sur l'échantillon. La fiche technique de réalisation de l'échantillon permet de connaître l'épaisseur de cobalt en fonction de la position sur l'échantillon. L'épaisseur de cobalt varie environ tous les 1,6 mm, une structuration en gradin bien marquée est visible sur la figure 2.7 (b).

Lorsque l'aimantation se couche dans le plan du film de cobalt, il faudrait effectuer des mesures des effets Kerr longitudinal et transverse pour une étude détaillée de l'anisotropie. Dans ce qui suit, nous nous limiterons à la plage $t_{Co} \leq 8$ PA.

2.3.2 Comparaison au calcul de la réponse magnéto-optique

La simulation de la réponse magnéto-optique d'une structure multicouche nécessite la connaissance des constantes diélectriques des métaux constituant cette multicouche (paragraphe 1.2.4). Les constantes diélectriques pour des films ultraminces d'or et de cobalt ne sont pas connues. Nous nous sommes donc servis de celles des matériaux massifs ou de films épais. On trouvera dans les références [53, 54] une justification de cette approximation pour des films minces d'or d'épaisseur supérieure à 20 nm. L'identification des constantes diélectriques pour le film ultramine de cobalt à celles du matériau massif est davantage discutable. Nous verrons par la suite une méthode qui rend compte des écarts à la valeur « massif » de façon effective (couche morte magnétique).

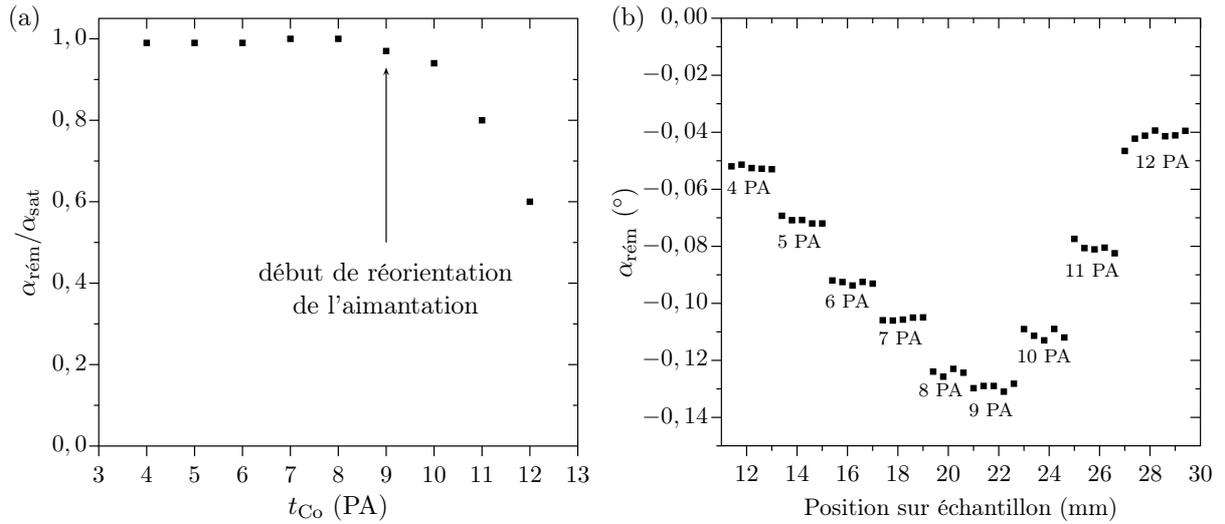


FIGURE 2.7: En (a) : $\alpha_{\text{rém}}/\alpha_{\text{sat}}$ en fonction de t_{Co} . En (b) : variation de $\alpha_{\text{rém}}$ en fonction de la position sur l'échantillon.

Choix des constantes diélectriques de l'or et du cobalt

On trouve dans la littérature plusieurs jeux de valeurs des constantes diélectriques de l'or et du cobalt avec parfois des désaccords significatifs entre ces valeurs. Ceci provient de la grande sensibilité des constantes optiques à la texture des échantillons étudiés, à la qualité de la surface, à l'orientation cristalline du métal et donc à la méthode de fabrication de l'échantillon.

Nous nous sommes basés sur le choix effectué par les auteurs de la référence [33] qui ont travaillé sur des films magnétiques de la même provenance que notre échantillon. Ces auteurs ont effectué une analyse détaillée des différents jeux de paramètres existant dans la littérature. Leur choix s'est basé sur différents types de critères :

- en premier qualitatifs. Un soin particulier a été porté à la similarité des métaux déposés dans notre système Au/Co/Au/verre avec les métaux utilisés pour les tables de constantes optiques. Leur comparaison porte sur l'identité structurale des métaux déposés, les conditions de fabrication des échantillons (type de dépôt) et l'orientation cristalline du métal étudié.
- puis quantitatifs. Les jeux de valeurs permettant de reproduire l'allure des spectres expérimentaux (courbes de dispersions d'absorption, de transmission, de rotation Kerr complexe) ont été retenus. Pour ce qui concerne les constantes magnéto-optiques, les valeurs prises sont celles fournissant les plus grands effets magnéto-optiques, témoignant ainsi d'une meilleure qualité de dépôt.

Les données de la référence [79] ont été prises pour l'or, celles de [80] pour le cobalt et enfin celles de [81] pour l'activité magnéto-optique du cobalt. L'indice n_{verre} du verre est pris égal à 1,52 (pas de dispersion de n_{verre} dans la plage spectrale explorée [82]). Nous nous servons d'impulsions optiques courtes pour les mesures de rotation Kerr (chapitre 3). La longueur de cohérence de ces impulsions sonde (environ égale à $60 \mu\text{m}$) est très petite devant l'épaisseur du substrat de verre (1 mm) : les ondes correspondant aux différents réflexions dans le substrat de verre sont

t_{Co} (PA)	$\alpha_{\text{sat}}^{\text{exp}}$ expérimentale ($^{\circ}$)	$\alpha_{\text{sat}}^{\text{simu}}$ simulée ($^{\circ}$)	Ecart relatif (%)
4	-0,054	-0,063	16
5	-0,072	-0,076	6
6	-0,092	-0,089	3,5
7	-0,105	-0,102	3
8	-0,125	-0,113	9,6

TABLEAU 2.1: Valeurs expérimentales et simulées des rotations Kerr polaires à saturation α_{sat} en fonction de l'épaisseur de cobalt t_{Co} , à $\lambda=500$ nm.

incohérentes entre elles, il n'y a donc pas d'effet Fabry-Pérot dans le substrat de verre que nous avons considéré comme semi-infini ⁷ [33, 83].

Variation de la rotation Kerr à saturation α_{sat} en fonction de t_{Co}

Le tableau 2.1 montre les valeurs mesurées et calculées de la rotation Kerr polaire à saturation α_{sat} en fonction de l'épaisseur du film de cobalt t_{Co} . Seules les valeurs correspondant à une anisotropie perpendiculaire sont montrées. L'énergie de la sonde utilisée vaut 2,48 eV, soit $\lambda = 500$ nm. La précision des valeurs expérimentales est de $\pm 3 \times 10^{-3}$ $^{\circ}$. L'écart relatif moyen est inférieur à 8%. Ceci paraît convenable par rapport la dispersion des indices tabulés dans la littérature : pour l'activité magnéto-optique du cobalt, la dispersion des valeurs est de 30% à $\lambda=500$ nm [33].

Une loi affine $\alpha_{\text{sat}} = k(t_{\text{Co}} - t_0)$ permet de reproduire les valeurs expérimentales avec $t_0 = 1$ PA (figure 2.8). Le modèle multicouche prévoit une valeur $\alpha_{\text{sat}}^{\text{simu}}$ nulle à épaisseur de cobalt nulle. Les auteurs de [15] montrent que la contribution de t_0 à α_{sat} est d'origine interfaciale, et résulte de plusieurs effets : la rugosité, l'interdiffusion de l'or et du cobalt, la polarisation de l'or par des hybridations de bandes, et la modification de la structure électronique du cobalt aux interfaces. Les auteurs de [15] proposent de soustraire à la couche de cobalt une certaine épaisseur afin de rendre compte de cet effet d'interface. Cela revient à introduire dans le modèle une couche « morte » pour diminuer l'effet global de la couche de cobalt. Compte tenu de l'accord convenable entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées dans le cadre du modèle Au/Co/Au/verre, nous n'avons pas considéré cette couche morte, car nous nous intéresserons seulement aux épaisseurs supérieures à 4 plans atomiques pour lesquelles l'influence relative de cette couche morte est modérée. Enfin, nous avons attribué le désaccord des pentes entre les valeurs calculées et les valeurs expérimentales des rotations Kerr à une méconnaissance des constantes diélectriques pour les films ultraminces de cobalt. Du fait d'effets magnéto-élastiques,

⁷un calcul plus exact serait de sommer les intensités de toutes les ondes réfléchies à l'interface verre/air. Nous avons ainsi négligé les 4 % de réflexion sur la face arrière du verre qui de toutes façons ne sont pas modifiés par la pompe dans nos mesures en dynamique, et donc n'interviendront pas dans nos mesures de variations relatives de grandeurs optiques ($\Delta T/T$, $\Delta R/R$, $\Delta \alpha/\alpha$ et $\Delta \eta/\eta$) (voir chapitre 3).

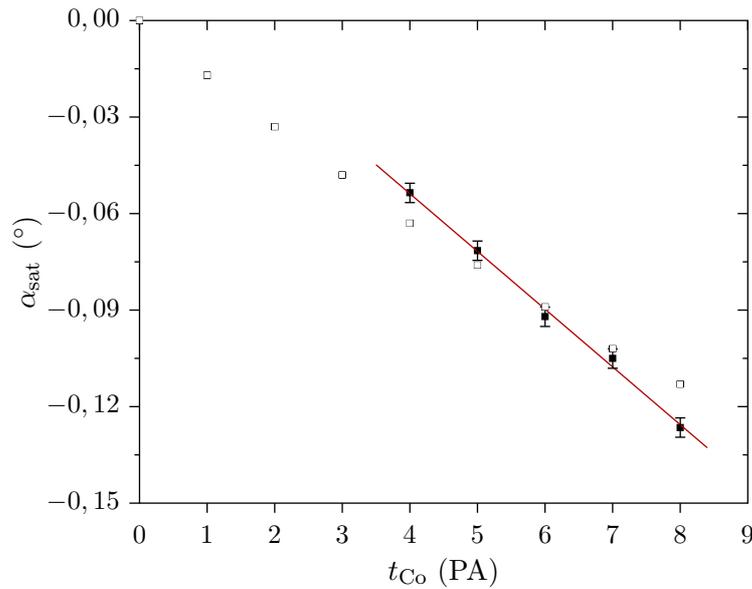


FIGURE 2.8: Variation de la rotation Kerr polaire à saturation α_{sat} en fonction de t_{Co} dans la plage correspondant à une anisotropie perpendiculaire. La longueur d'onde de sonde vaut $\lambda=500$ nm. Les valeurs expérimentales sont en carrés noirs, la ligne rouge est l'ajustement de ces points par une loi affine. Les carrés blancs représentent les valeurs calculées dans le cadre du modèle multicouche Au/Co/Au/verre.

ces constantes diélectriques doivent être des fonctions de l'épaisseur de la couche de cobalt t_{Co} .

Dispersion des effets magnéto-optiques

La figure 2.9 montre les courbes de dispersion calculées de la réponse magnéto-optique pour la structure Au(15 PA)/Co(6 PA)/Au(28 nm)/verre. La dispersion de la réponse magnéto-optique du système Au/Co/Au/verre reflète principalement la dépendance spectrale de l'or. Au voisinage du seuil des transitions interbandes pour l'or (2,34 eV ou $\lambda = 530$ nm), la rotation Kerr α_K et la transmission présentent un extrémum, l'ellipticité Kerr η_K présente un changement abrupt de signe et la réflectivité chute rapidement. Nous avons mesuré la réponse magnéto-optique du système multicouche à quatre longueurs d'onde (500, 530, 633 et 800 nm) et vérifié que les valeurs obtenues se placent convenablement sur les courbes de dispersion.

Les auteurs de [33, 83, 84] en se basant également sur le formalisme de Yeh ont testé toute la dispersion et ont comparé les courbes de dispersion expérimentale et calculée pour la réponse magnéto-optique (T,R, α_K et η_K) d'une structure Au/Co/Au/verre. Les principales conclusions tirées sont :

- les courbes de dispersion calculées reproduisent bien l'allure des courbes expérimentales.
- le désaccord quantitatif entre les valeurs expérimentales et calculées est attribué aux valeurs prises pour les constantes optiques et magnéto-optiques.

2.3.3 Dépendance en température de la rotation Kerr à rémanence

Nous nous intéressons à la dépendance en température de la rotation Kerr à rémanence en vue des futures expériences pompe-sonde où il y aura une forte élévation transitoire de température.

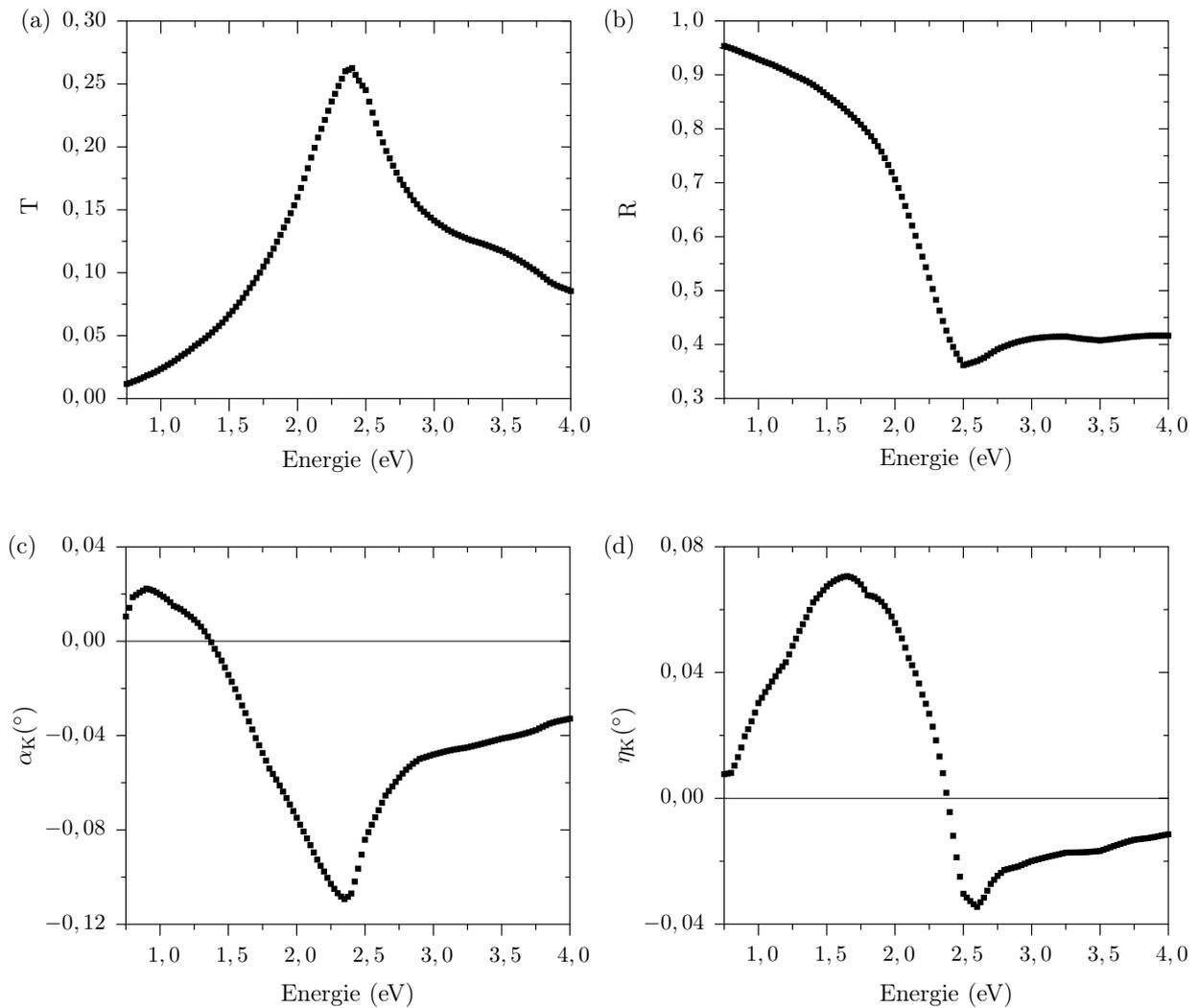


FIGURE 2.9: Courbes de dispersion calculées de la réponse magnéto-optique de la structure Au(15 PA)/Co(6 PA)/Au(28 nm)/verre. En (a) : T . En (b) : R . En (c) : α_K . En (d) : η_K .

La rotation Kerr à rémanence en régime statique est proportionnelle à l'aimantation M du système :

$$\alpha_K = GM, \quad (2.6)$$

avec G le facteur de proportionnalité. La dépendance en température de α_K provient de la combinaison des dépendances en température de G et M .

Pour mesurer la dépendance en température de la rotation Kerr à rémanence, nous avons utilisé une plaque de cuivre comme porte-échantillon. Nous nous sommes servis de deux résistances chauffantes pour élever la température de ce porte-échantillon sur lequel nous avons collé une résistance de platine pour déterminer la température. Nous nous sommes assurés que l'échantillon n'était pas endommagé par ces élévations de température en vérifiant le cycle d'hystérésis obtenu une fois revenu à température ambiante. Nous nous sommes également limités à une certaine plage de température (élévation maximale de température limitée à 100°C) : lors de la fabrication de l'échantillon la couche tampon d'or est recuite à 175°C, ce qui constitue une valeur

plafond pour cette étude en température au-delà de laquelle on risque de modifier la structure de l'échantillon.

La figure 2.10 permet de comparer la dépendance en température de la rotation Kerr à rémanence avec celle de l'aimantation du cobalt [85]. Aux erreurs commises près, les dépendances en température de la rotation Kerr et de l'aimantation sont identiques : les variations de G sont négligeables sur cette plage de température. Notons p la pente de la variation relative de la

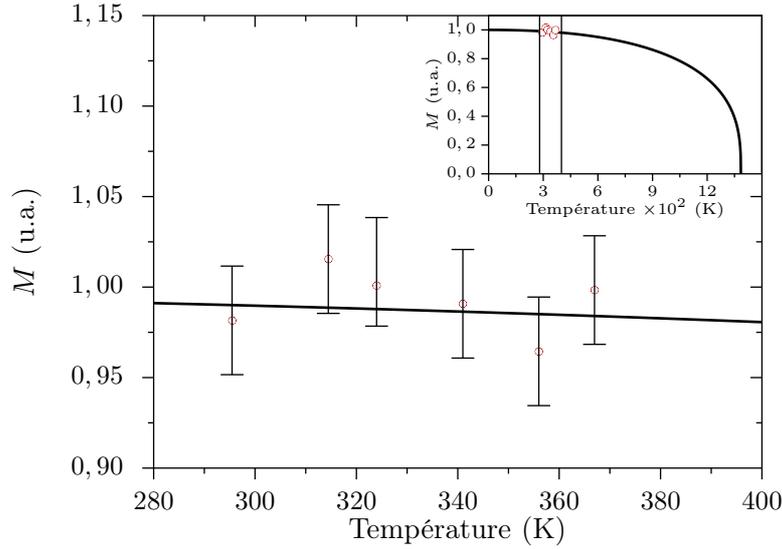


FIGURE 2.10: Comparaison de la dépendance en température de l'aimantation du cobalt (trait plein) et de celle de la rotation Kerr à saturation (cercles). La rotation Kerr à saturation a été normalisée par la valeur calculée dans le cadre du modèle multicouches Au/Co/Au/verre. Inset : mêmes grandeurs sur une autre échelle de température.

rotation Kerr en statique avec la température :

$$p \equiv \frac{d(\Delta\alpha/\alpha_K)}{dT}, \quad (2.7)$$

avec α_K la valeur calculée de la rotation Kerr dans le cadre du modèle Au/Co/Au/verre. On trouve : $p = 5 \times 10^{-4} \pm 2 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$.

2.4 Conclusion

En plus de la fonction protectrice contre l'oxydation, l'or joue un rôle important dans la réponse magnéto-optique du système multicouches Au/Co/Au : les mesures de transmission, de réflexion, de rotation Kerr polaire et d'ellipticité Kerr polaire présentent un comportement singulier dans la zone spectrale autour du seuil des transitions interbandes de l'or. L'or permet en particulier d'amplifier la réponse magnéto-optique vers 530 nm (ou 2,34 eV) [86]. En effet, la valeur de la rotation Kerr par unité d'épaisseur de cobalt pour le système multicouches à $\lambda = 500 \text{ nm}$ vaut $0,08^\circ/\text{nm}^{-1}$, soit presque un ordre de grandeur plus grand que la valeur du cobalt massif à cette même longueur d'onde de sonde $0,01^\circ/\text{nm}^{-1}$ [30].

La singularité des effets magnéto-optiques au voisinage de 530 nm nous a incités à effectuer les mesures dynamiques dans cette gamme spectrale, comme nous le verrons dans le chapitre 4.

Chapitre 3

Techniques expérimentales de mesure en dynamique

Les études résolues en temps ont été réalisées en effectuant des expériences de pompe-sonde à deux couleurs.

Dans ce chapitre, nous décrivons tout d'abord les sources optiques femtosecondes utilisées.

Puis nous présentons les différents dispositifs expérimentaux pompe-sonde mis en œuvre.

Nous détaillons en particulier une technique de mesure originale pour connaître les changements de rotation et ellipticité Kerr en dynamique de nos échantillons magnétiques.

3.1 Les sources d'impulsions optiques femtosecondes

Les expériences pompe-sonde à deux couleurs ont été réalisées en utilisant deux sources optiques :

- un amplificateur régénératif commercial (RegA) injecté par un oscillateur Ti : Saphir femtoseconde (Vitesse).
- un amplificateur paramétrique optique (OPA) pompé par l'amplificateur régénératif pour l'obtention d'impulsions femtosecondes accordables en longueur d'onde dans la gamme 500 – 700 nm.

L'amplificateur paramétrique optique fait l'objet d'une présentation plus détaillée puisque cette source a été développée au laboratoire au cours de cette thèse.

3.1.1 L'oscillateur Ti :Saphir, le Vitesse

Le Vitesse, système commercial de la société Coherent, est un laser Ti : Saphir pompé par un laser Verdi 1,7 W. Il fonctionne en mode bloqué et délivre des impulsions à 800 nm au taux de répétition 80 MHz, soit une impulsion toutes les 12,5 ns. La puissance moyenne en sortie du Vitesse est d'environ 300 mW. La durée des impulsions est environ égale à 120 fs. L'énergie par impulsion vaut environ 4 nJ, soit une puissance crête de 37,5 kW.

Les impulsions en sortie du Vitesse sont injectées ensuite dans un amplificateur régénératif (RegA).

3.1.2 L'amplificateur régénératif, le RegA

Le RegA, système commercial de la société Coherent, contient une cavité dans laquelle se trouve un cristal Ti : Saphir pompé par un laser Verdi 10 W. Cette cavité permet d'amplifier les impulsions en sortie du Vitesse.

L'amplification d'une impulsion du Vitesse est constituée des étapes suivantes :

- blocage de la cavité du RegA : un modulateur acousto-optique, « Q-switch », empêche la cavité du RegA de « laser ». Le Q-switch est arrêté juste avant l'injection de l'impulsion.
- injection d'une impulsion du Vitesse dans la cavité : l'injection est assurée par un modulateur acousto-optique. Ce modulateur est appelé « cavity-dumper ».
- amplification de l'impulsion injectée : l'impulsion circule dans la cavité du RegA et effectue un certain nombre d'aller-retours (de l'ordre de 30). Elle est amplifiée à chaque passage dans le cristal Ti : Saphir du RegA.
- éjection de l'impulsion : lorsque le maximum d'intensité est extrait du cristal Ti : Saphir, le cavity dumper éjecte l'impulsion amplifiée.
- blocage de la cavité du RegA : lorsque l'éjection est réalisée, le Q-switch « obture » de nouveau la cavité du RegA. Ceci permet au cristal Ti : Saphir d'emmagasiner de l'énergie avant que le Q-switch ne se débloque pour une nouvelle injection d'une impulsion du Vitesse.

Un isolateur de Faraday interdit à l'impulsion une fois éjectée de suivre le même chemin que l'impulsion injectée. Cette séquence d'opérations est contrôlée temporellement en réglant l'horloge de mise en route et d'extinction des différents modulateurs acousto-optiques. Le taux de répétition des impulsions du RegA est réduit d'un facteur environ mille par rapport à celui du Vitesse. Inversement, l'énergie par impulsion du RegA est environ mille fois plus importante que celle du Vitesse.

L'impulsion amplifiée a une durée temporelle d'environ 40 ps. Ceci est dû à une dispersion des composantes spectrales de l'impulsion lors des aller-retours dans la cavité du RegA. Un compresseur constitué par un système de 2 réseaux de diffraction et d'une lentille¹ permet d'obtenir des impulsions de forme à peu près gaussienne et de durée temporelle environ égale à 220 fs.

Le RegA délivre ainsi des impulsions à 800 nm avec une fréquence de répétition ajustable entre 100 et 250 kHz. La puissance en sortie à 250 kHz, soit une impulsion toutes les 4 μ s, est de 1,1 W. Chaque impulsion a une énergie environ égale à 4 μ J, soit une puissance crête de 20 MW.

Une telle puissance crête en sortie de l'amplificateur régénératif permet de faire fonctionner notre OPA, acronyme anglais pour Amplificateur Paramétrique Optique. De plus, en travaillant au taux de répétition le plus élevé, le photodétecteur moyenne plusieurs impulsions et le rapport signal à bruit est meilleur.

¹les réseaux corrigent le terme du premier ordre de la dispersion de la vitesse de groupe [87], la lentille le terme du second ordre [88].

3.1.3 L'amplificateur paramétrique optique, l'OPA

L'amplificateur paramétrique optique est une source optique qui délivre des impulsions femtosecondes amplifiées accordables en longueur d'onde dans la gamme 500-700 nm. Un signal idler allant de 0,94 à 2,4 μm , un résidu de faisceau à 400 nm et un continuum de lumière blanche peuvent également constituer des faisceaux de sortie.

Cette source [89] a été réalisée au laboratoire au cours de cette thèse avec l'aide de nos services techniques.

Rappel du principe de fonctionnement

L'amplification paramétrique optique est un processus optique non linéaire du second ordre. Il consiste en un mélange d'ondes dans un cristal non linéaire possédant une susceptibilité du second ordre non nulle :

- une onde intense dite « pompe » d'énergie $\hbar\omega_{\text{pp}}$ et d'impulsion \mathbf{k}_{pp} .
- une onde dite « signal » beaucoup moins intense d'énergie $\hbar\omega_s$ et d'impulsion \mathbf{k}_s .

A noter également que $\hbar\omega_s$ est plus petite que $\hbar\omega_{\text{pp}}$ et que les ondes pompe et signal se propagent selon le même vecteur d'onde.

Le processus d'amplification paramétrique [90] amplifie l'onde signal et génère une onde dite « complémentaire » ou plus communément « idler » d'énergie $\hbar\omega_i = \hbar\omega_{\text{pp}} - \hbar\omega_s$ (conservation de l'énergie) et d'impulsion \mathbf{k}_i . L'efficacité de ce processus d'amplification est optimisée quand la condition dite d'accord de phase est vérifiée $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_{\text{pp}} - \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i = \mathbf{0}$. Ceci équivaut à la conservation de l'impulsion et s'écrit en termes d'indice $n(\omega)$ pour le cristal non linéaire :

$$\hbar\omega_{\text{pp}}n(\omega_{\text{pp}}) = \hbar\omega_s n(\omega_s) + \hbar\omega_i n(\omega_i). \quad (3.1)$$

D'un point de vue quantique, ce processus d'amplification optique revient à l'absorption virtuelle d'un photon pompe suivie de l'émission d'un photon signal et d'un photon idler.

Conception de l'OPA

Nous avons utilisé un cristal de BBO (β -Barium Borate) pour le mélange paramétrique. L'intérêt de ce cristal BBO est double :

- le BBO possède une susceptibilité du second ordre $\chi^{(2)}$ élevée. Le gain paramétrique de l'amplification étant proportionnel à ce facteur $\chi^{(2)}$ est de ce fait d'autant plus grand.
- le BBO est un cristal biréfringent uniaxe. La condition d'accord de phase peut alors être satisfaite géométriquement en orientant correctement le cristal (à savoir en ajustant l'angle d'incidence des faisceaux avec le cristal) et en polarisant correctement les faisceaux incidents signal et pompe. Nous avons adopté la configuration de type I pour le BBO : l'onde pompe se propage sur l'axe extraordinaire, les ondes signal et idler sur l'axe ordinaire.

L'amplification paramétrique nécessite au préalable la génération des faisceaux pompe et signal :

- comme nous souhaitons couvrir la gamme spectrale du visible avec le faisceau signal, la pompe doit être plus énergétique. L'OPA est pompé à 400 nm, fréquence obtenue par doublage de fréquence de 650 mW du RegA. La génération de la seconde harmonique est réalisée dans un autre cristal de BBO, $\hbar\omega_{pp} = 2\hbar\omega_{\text{RegA}}$. Le cristal doubleur de BBO est utilisé en type I. A partir d'abaques [91], nous avons pris un BBO taillé à $29,2^\circ$ de façon à optimiser la génération de la seconde harmonique.

Maintenant que l'on connaît l'énergie de pompe $\hbar\omega_{pp}$ pour l'OPA, un cristal BBO taillé à 28° [91] a été pris pour l'amplification paramétrique optique dans la gamme spectrale du visible.

- les 250 mW restant du faisceau du RegA sont focalisés dans un cristal de Saphir. Par auto-modulation de phase (processus optique non linéaire d'ordre 3 [90]), un continuum de lumière blanche s'étendant du visible jusqu'à l'infrarouge est généré. Le faisceau signal pour l'OPA est une composante spectrale de ce continuum. La composante amplifiée est définie par l'accord de phase dans le processus d'amplification, à savoir par l'angle d'inclinaison du cristal BBO-OPA.

Description de l'OPA

La figure 3.1 permet de voir la disposition géométrique des différents étages non linéaires constituant l'OPA ainsi que les caractéristiques de certains éléments optiques.

Un filtre coloré² permet de filtrer spectralement le signal de l'idler ainsi que la plage spectrale infrarouge résiduelle dans le continuum de lumière blanche. Ceci constitue la sortie de l'OPA.

Procédure de réglage et performances de l'OPA

Nous jouons principalement sur les paramètres suivants :

- une bonne amplification de l'OPA nécessite un mode bien gaussien d'ordre 0 pour le continuum. Ce mode est ajusté au moyen d'un diaphragme placé entre la séparatrice S1 et la lentille de focalisation dans le cristal de Saphir.
- la puissance du faisceau pompe est optimisée en ajustant finement l'accord de phase dans le cristal BBO doubleur. Le cristal BBO doubleur peut avoir un rendement supérieur à 30 %. La qualité du mode est contrôlée en champ lointain.
- le faisceau pompe peut être trop intense et générer dans le cristal BBO-OPA des processus optiques non linéaires rentrant alors en compétition avec celui de l'amplification paramétrique. Pour éviter cela, nous translatons la lentille L1 de focalisation de la pompe de manière à focaliser avant le cristal BBO-OPA.
- le recouvrement spatial des faisceaux pompe et continuum est réalisé avec les miroirs dichroïques MD1 et MD2 pour le premier passage. Pour le second passage, nous nous servons des miroirs M1 et M2.

²filtre Schott BG 18.

3.2 Techniques de mesures pompe-sonde

Nous voulons étudier à des échelles de temps sub-picosecondes la relaxation de systèmes portés hors d'équilibre. Seule l'optique au moyen d'impulsions femtosecondes permet une telle résolution temporelle.

3.2.1 Principe d'une mesure pompe-sonde

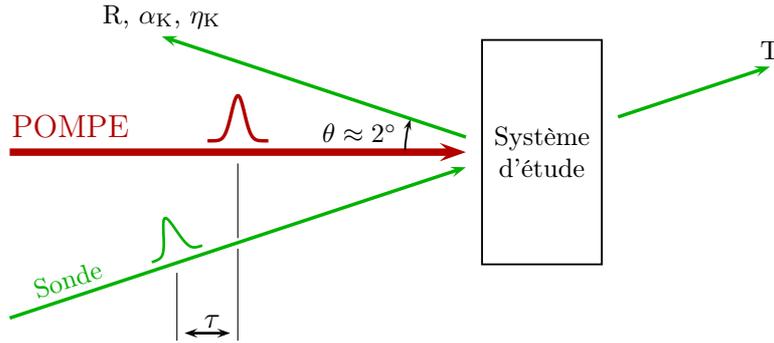


FIGURE 3.2: Schéma de principe d'une mesure pompe-sonde.

La figure 3.2 présente le schéma de principe d'une mesure pompe-sonde. Une première impulsion énergétique dite « pompe » porte le système d'étude hors d'équilibre. Après un certain retard temporel que l'on notera τ , une seconde impulsion dite « sonde » arrive sur le système. Cette impulsion est de faible intensité afin de perturber faiblement le système. Différentes caractéristiques du faisceau de sonde (intensité transmise ou réfléchié, état de polarisation de la réflexion de la sonde) peuvent être mesurées après transmission ou réflexion de l'échantillon. En faisant varier le retard temporel pompe-sonde τ , les mesures optiques permettent de déterminer l'évolution temporelle de l'état du système induit par la pompe. Dans ce travail de thèse, les impulsions du RegA ont été utilisées comme les impulsions pompe, les impulsions signal de l'OPA comme impulsions sonde.

Notons $\text{Rép}(t)$ la réponse du système d'étude à une excitation de Dirac. La réponse $S(t)$ du système à une impulsion pompe de profil temporel $I_p(t)$ est le produit de convolution $S(t) = (\text{Rép} \star I_p)(t) \equiv \int \text{Rép}(y) I_p(t - y) dy$. Le signal mesuré par la sonde de profil temporel $I_s(t)$ arrivant au retard temporel τ après la pompe s'écrit [53, 92] :

$$\begin{aligned}
 \text{signal}(\tau) &= \int S(t) I_s(t - \tau) dt, \\
 &= \int \text{Rép}(y) \left(\int I_p(t - y) I_s(t - \tau) dt \right) dy, \\
 &= \int \text{Rép}(y) \left(\int I_p(t + (\tau - y)) I_s(t) dt \right) dy, \\
 &= \int \text{Rép}(y) \text{Corr}(\tau - y) dy, \\
 &\equiv (\text{Rép} \star \text{Corr})(\tau),
 \end{aligned} \tag{3.2}$$

où $\text{Corr}(\tau) = \int I_p(t)I_s(t - \tau)dt$ est la corrélation croisée entre la pompe et la sonde. Le signal mesuré est donc le produit de convolution de la réponse du système à une excitation de Dirac $\text{Rép}(t)$ avec la corrélation croisée pompe-sonde $\text{Corr}(\tau)$. La durée de la corrélation entre la pompe et la sonde limite ainsi la résolution temporelle des mesures.

Mesure de la corrélation croisée pompe-sonde

Pour déterminer $\text{Corr}(\tau)$, on utilise un système dont la réponse $\text{Rép}(t)$ est une fonction Dirac, 3.2 s'écrit alors : $\text{signal}(\tau) = \text{Corr}(\tau)$. Le système utilisé est un cristal de BBO³ où l'on effectue la sommation de fréquences⁴ des impulsions pompe et sonde. La corrélation entre la pompe et la sonde est réalisée au même endroit de l'expérience en substituant l'échantillon par le cristal BBO du corrélateur : ceci permet de prendre en compte la dispersion totale de la vitesse de groupe des impulsions pompe et sonde sur les chemins parcourus et donc de connaître la durée de la corrélation à l'endroit de l'expérience.

La figure 3.3 montre un exemple représentatif de corrélation croisée pompe-sonde. La sonde est à 530 nm. La durée de la corrélation est de 350 fs. En théorie, nous pourrions avoir des impulsions de l'OPA avec une durée de l'ordre de la dizaine de femtosecondes ce qui diminuerait la durée de la corrélation pompe-sonde. Pour nos expériences, une telle résolution temporelle n'est pas nécessaire et nous n'avons donc pas comprimé les impulsions en sortie de l'OPA.

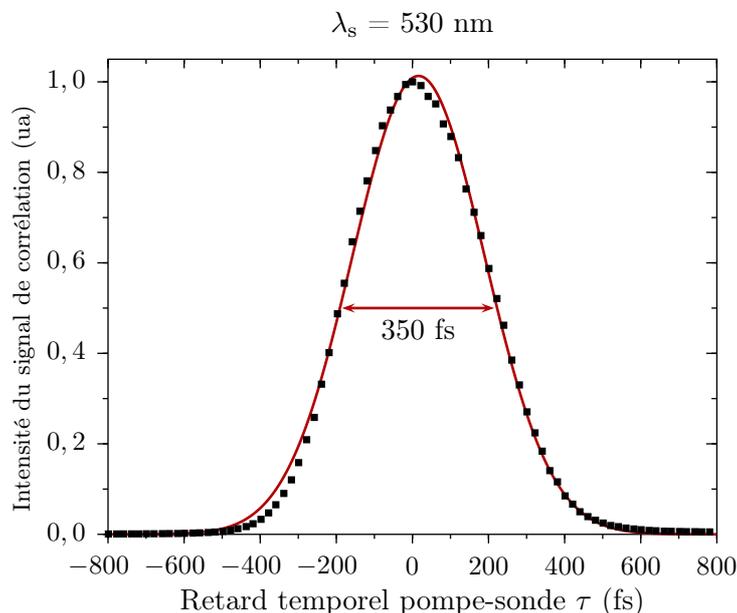


FIGURE 3.3: Exemple représentatif de signal de corrélation croisée pompe-sonde (carrés). Dans cet exemple, la sonde est à 530 nm. L'ajustement par une gaussienne est donné en trait continu.

³BBO taillé à 35,7° utilisé en type I.

⁴processus optique inverse de celui de l'OPA. La corrélation donne une impulsion somme dans l'ultraviolet. Un photomultiplicateur HAMAMATSU réf. R212 est utilisé pour la détection de cette impulsion somme.

3.2.2 Principe d'un dispositif pompe-sonde à deux couleurs

Le retard temporel entre les impulsions pompe et sonde dépend des longueurs de trajet parcouru par chacune de ces impulsions. Le chemin optique de la sonde est fixé et on fait varier la longueur du chemin optique de la pompe au moyen d'une ligne à retard⁵, composée d'une platine de translation⁶ pas à pas motorisée sur laquelle un coin de cube est monté. Le pas temporel pour la longueur des chemins optiques est de 0,66 fs. Ce pas est bien inférieur à la durée de la corrélation pompe-sonde, voir le paragraphe 3.2.1.

Pour ne pas détecter le faisceau pompe intense, nous avons pris deux précautions :

- les chemins de pompe et de sonde font un angle de 2°. Ceci permet de bloquer la pompe sans diaphragmer la sonde après échantillon.
- les impulsions pompe et sonde (respectivement RegA et OPA) sont à des longueurs d'onde bien distinctes. Pour s'affranchir d'une éventuelle diffusion de la pompe dans le photodétecteur, on utilise des filtres colorés.

Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés sur l'échantillon au moyen d'une lentille achromatique⁷. Les diamètres des taches focales pour la pompe et la sonde valent respectivement 50 et 40 μm . Il est important que la sonde ait une tache focale plus petite que celle de la pompe afin de sonder une zone où l'excitation est homogène.

3.2.3 Mesure de changement de transmission et de réflexion par détection synchrone différentielle

La technique de mesure pompe-sonde pour les changements de transmission et de réflexion est identique. Dans ce qui suit, nous détaillerons seulement le raisonnement pour la transmission.

La transmission T à un retard temporel pompe-sonde τ fixé s'écrit comme la somme de deux termes :

$$T(\tau) = T_0 + \Delta T(\tau), \quad (3.3)$$

où T_0 est la valeur de la transmission à l'équilibre (sans pompe) et $\Delta T(\tau)$ la variation due à la perturbation induite par l'impulsion pompe au retard τ . La variation relative induite par la pompe a pour ordre de grandeur 10^{-3} , voire moins. Les fluctuations d'intensité de nos sources optiques sont de l'ordre de 5 %, si l'on ne prend pas de précautions particulières, le signal est noyé dans le bruit des sources.

Détection synchrone

Un hacheur mécanique de fréquence ω_c est placé sur le faisceau de pompe. La variation induite par la pompe dans l'intensité transmise est donc modulée à cette même fréquence. Une détection synchrone⁸ démodule l'intensité transmise mesurée par le photodétecteur et amplifie la

⁵nous avons préféré faire varier le chemin optique de la pompe et non de la sonde : un mauvais alignement de la ligne à retard sur le chemin de sonde aurait modifié l'incidence du faisceau sonde sur les photodétecteurs.

⁶Newport platine de translation de course moyenne M-UTM 150CC.1.

⁷Achromat de focale 76 mm et de diamètre 25,4 mm.

⁸*lock-in* en anglais.

composante du signal d'entrée ayant même fréquence que la référence. Ce système de détection est équivalent à un filtre passe-bande très sélectif autour de cette fréquence de référence, de largeur l'inverse de la constante de temps τ_{DS} . Le bruit de la source se trouvant en dehors de la plage spectrale $[\omega_c - 1/\tau_{DS}, \omega_c + 1/\tau_{DS}]$ est éliminé. La tension lue par la détection synchrone vaut :

$$V^{DS}(\tau) = K^{\omega_c} (T_0 \Delta I_s^{\omega_c} + \Delta T(\tau) I_s^{\text{moy}}), \quad (3.4)$$

où K^{ω_c} est le gain du système d'amplification {résistance de lecture et détection synchrone référencée à ω_c }. I_s^{moy} est l'intensité moyenne de la sonde et $\Delta I_s^{\omega_c}$ s'écrit :

$$\Delta I_s^{\omega_c} = \int_{\omega_c - \frac{1}{\tau_{DS}}}^{\omega_c + \frac{1}{\tau_{DS}}} I_s(\omega) d\omega. \quad (3.5)$$

Mesure différentielle

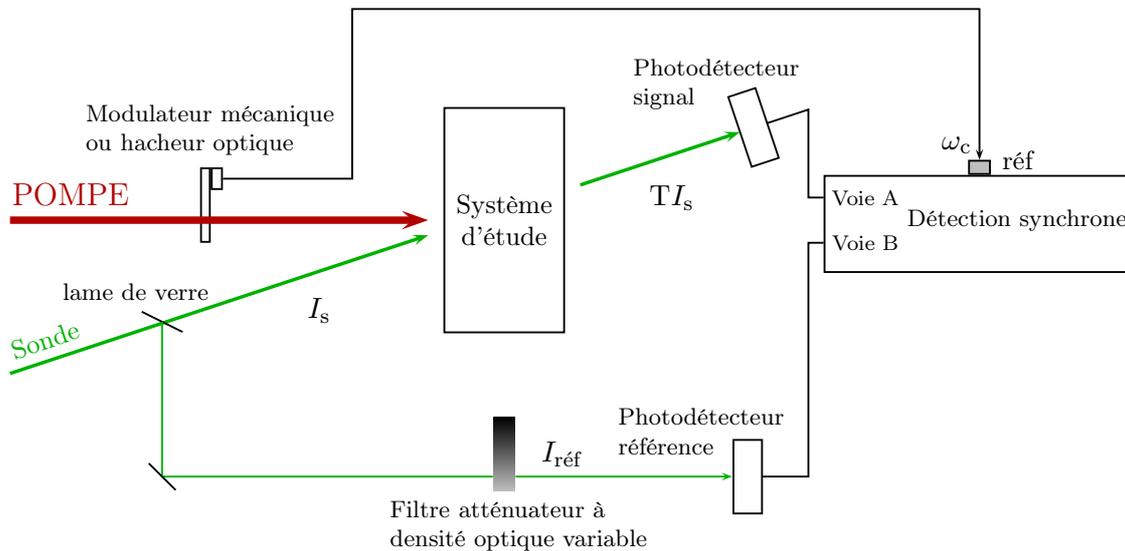


FIGURE 3.4: Schéma de principe de mesure pompe-sonde en transmission par détection synchrone différentielle.

Le rapport signal à bruit peut être amélioré par une mesure différentielle, voir figure 3.4 : une partie du faisceau de sonde est prélevée avant échantillon et l'intensité de ce faisceau référence est mesurée par un photodétecteur identique à celui utilisé pour la mesure de la puissance transmise. Un filtre gris de densité optique variable permet d'égaliser les valeurs moyennes des puissances des faisceaux référence et transmis. L'égalisation de ces valeurs moyennes est ainsi réalisée de manière optique et non de manière électronique : ceci permet d'avoir les mêmes résistances de lecture et de ne pas changer la bande passante du système de détection. La détection synchrone est utilisée en mode différentiel A-B : le photodétecteur de lecture du signal transmis est branché sur la voie A de la détection synchrone et le photodétecteur du faisceau référence sur la voie B. Le rapport signal à bruit est amélioré d'un facteur 10 au moyen de cette mesure différentielle.

Soit $G_{\text{réf}}$ le facteur d'atténuation pour le faisceau référence. Le photodétecteur référence

délivre une tension $V_{\text{réf}}$ proportionnelle à $G_{\text{réf}}I_s$. La tension lue par la détection synchrone différentielle vaut :

$$V^{\text{DS}}(\tau) = K^{\omega_c} \Delta T(\tau) I_s^{\text{moy}} + K^{\omega_c} (T_0 - G_{\text{réf}}) \Delta I_s^{\omega_c}. \quad (3.6)$$

$G_{\text{réf}}$ a été ajusté de manière à égaler les valeurs moyennes des intensités de référence et de signal, $T_0 = G_{\text{réf}}$. Ainsi la tension mesurée par la détection synchrone vaut :

$$V^{\text{DS}}(\tau) = K^{\omega_c} \Delta T(\tau) I_s^{\text{moy}}. \quad (3.7)$$

En définitive, on a éliminé le bruit à l'ordre de ΔT .

Obtention de la variation de transmission

Une fois la mesure pompe-sonde réalisée, les faisceaux pompe et référence sont bloqués et le hacheur est placé sur la voie de sonde. La détection synchrone lit seulement la tension en sortie du photodétecteur signal. Cette tension correspond à l'intensité transmise de la sonde, l'échantillon étant à l'équilibre. La tension mesurée vaut :

$$V_0^{\text{DS}} = K^{\omega_c} T_0 I_s^{\text{moy}}. \quad (3.8)$$

La division de $V^{\text{DS}}(\tau)$ par V_0^{DS} vaut :

$$\boxed{\text{signal}(\tau) = \frac{V^{\text{DS}}(\tau)}{V_0^{\text{DS}}} = \frac{\Delta T(\tau)}{T_0}}. \quad (3.9)$$

Cette méthode permet d'accéder à la valeur absolue du changement relatif de transmission.

Obtention de la variation de réflexion

Le protocole expérimental est identique à celui pour mesurer la variation de transmission. Un photodétecteur⁹ mesure l'intensité de la sonde réfléchie.

$$\boxed{\text{signal}(\tau) = \frac{V^{\text{DS}}(\tau)}{V_0^{\text{DS}}} = \frac{\Delta R(\tau)}{R_0}}. \quad (3.10)$$

En fait, le dispositif de mesure pompe-sonde utilisé permet de réaliser simultanément les mesures de changements de transmission et de réflexion, comme on le verra dans le paragraphe 3.2.5.

3.2.4 Mesure de changement de rotation et ellipticité Kerr par double modulation

Introduction à la mesure en double démodulation

Lors d'une mesure pompe-sonde, la pompe induit une variation des propriétés optiques de l'échantillon (figure 3.5). La rotation Kerr (respectivement ellipticité Kerr) est obtenue en régime

⁹trois photodétecteurs identiques ont été utilisés : un pour la transmission, un second pour la réflexion et le dernier pour la référence. Il s'agit de photodiodes PhD Fermionics FD 2000W. Ces photodiodes sont polarisées en inverse par une tension de 3 V délivrée par une pile (bruit réduit). La résistance de lecture vaut 18 kΩ.

statique par démodulation à la fréquence 2Ω (respectivement Ω) du modulateur photo-élastique (paragraphe 2.2.3). L'objectif de la mesure pompe-sonde est d'extraire dans la tension V^{DS1} les variations induites par la pompe. Pour cela, on hache la pompe à une fréquence ω_c et on cherche dans V^{DS1} la modulation à ω_c avec une deuxième détection synchrone (figure 3.5).

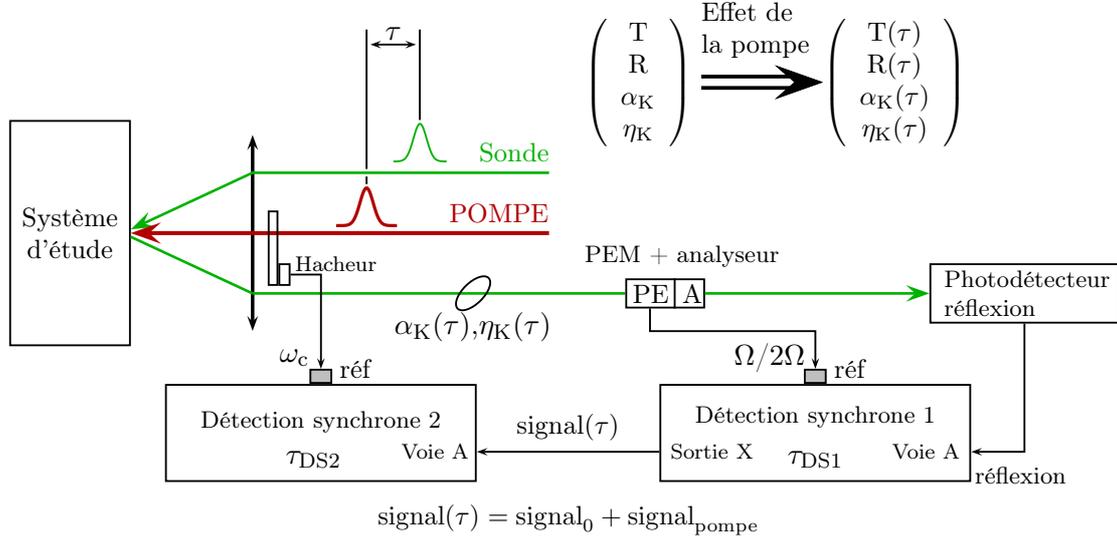


FIGURE 3.5: Principe de la mesure en double démodulation.

Position du problème

En appliquant le même raisonnement que pour la transmission T et pour la réflexion R , la rotation Kerr α_K et l'ellipticité Kerr η_K dépendent du retard temporel pompe-sonde τ et s'écrivent comme la somme de deux termes :

$$\begin{cases} \alpha_K(\tau) = \alpha_0 + \Delta\alpha(\tau), \\ \eta_K(\tau) = \eta_0 + \Delta\eta(\tau), \end{cases} \quad (3.11)$$

où l'indice 0 désigne la valeur à l'équilibre (sans pompe) et la notation Δ la variation due à la pompe.

Rappelons les expressions obtenues au premier ordre en la rotation complexe Kerr en statique après traversée du modulateur photo-élastique dans la configuration 0° (expressions 2.2 et 2.4) :

$$V_{\text{mesure}} = V^{\text{cc}} + V^{\text{DS1},\Omega} \cos(\Omega t) + V^{\text{DS1},2\Omega} \cos(2\Omega t), \quad (3.12)$$

avec :

$$\begin{cases} V^{\text{cc}} & \propto R I_s, \\ V^{\text{DS1},\Omega} & \propto 4J_1(A) R \eta I_s, \\ V^{\text{DS1},2\Omega} & \propto 4J_2(A) R \alpha I_s, \end{cases} \quad (3.13)$$

où l'intensité de l'onde incidente I_{inc} vaut $R I_s$, $\alpha = \alpha_K + \alpha_{\text{offset}}$ et $\eta = \eta_K + \eta_{\text{offset}}$ (expression 2.5). $V^{\text{DS1},\Omega}$ (respectivement $V^{\text{DS1},2\Omega}$) est la tension lue par la première détection synchrone référencée

à la fréquence Ω (respectivement 2Ω) du modulateur photo-élastique. Avant de faire la mesure pompe-sonde, l'échantillon est porté à rémanence (paragraphe 4.3.1).

Lors d'une mesure pompe-sonde, les variations observées sur $V^{\text{DS1},\Omega}$ et $V^{\text{DS1},2\Omega}$ sont une combinaison des variations de R , α_K et η_K . Les expressions V^{cc} , $V^{\text{DS1},\Omega}$ et $V^{\text{DS1},2\Omega}$ s'écrivent :

$$\begin{cases} V^{\text{cc}}(\tau) & \propto (R_0 + \Delta R(\tau))I_s, \\ V^{\text{DS1},\Omega}(\tau) & \propto 4J_1(A)(R_0 + \Delta R(\tau))(\eta_{\text{offset}} + \eta_0 + \Delta\eta(\tau))I_s, \\ V^{\text{DS1},2\Omega}(\tau) & \propto 4J_2(A)(R_0 + \Delta R(\tau))(\alpha_{\text{offset}} + \alpha_0 + \Delta\alpha(\tau))I_s. \end{cases} \quad (3.14)$$

Principe de la mesure

Comme les fluctuations en intensité de la sonde sont importantes, nous procédons de la même manière que pour les mesures de changement de transmission et de réflexion pour réduire la bande d'intégration du bruit : un hacheur mécanique module le faisceau de pompe à une fréquence ω_c , voir la figure 3.5. Dans les expressions $V^{\text{cc}}(\tau)$, $V^{\text{DS1},\Omega}$ et $V^{\text{DS1},2\Omega}$, les variations induites par la pompe $\Delta R(\tau)$, $\Delta\alpha(\tau)$ et $\Delta\eta(\tau)$ sont modulées à la fréquence du modulateur mécanique.

Le raisonnement qui suit est identique pour l'ellipticité Kerr et la rotation Kerr. On ne traite que le cas de la rotation Kerr. Pour déterminer la variation induite par la pompe sur la rotation Kerr α_K , on « double-démodule » le faisceau sonde transmis par le modulateur photo-élastique [93, 94] :

- une première détection synchrone référencée au photo-élastique pour mesurer $V^{\text{DS1},2\Omega}(\tau)$.
- une deuxième détection synchrone référencée au hacheur optique ayant en entrée $V^{\text{DS1},2\Omega}(\tau)$ pour filtrer dans ce signal la fréquence de modulation de la pompe.

La tension mesurée par cette deuxième détection synchrone $V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau)$ vaut :

$$V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau) = 4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}[\Delta R(\tau)(\alpha_{\text{offset}} + \alpha_0) + R_0\Delta\alpha(\tau)]I_s, \quad (3.15)$$

où $K^{\text{DS2},2\Omega}$ est le gain du système d'amplification {résistance de lecture et les deux détections synchrones en série}.

Obtention de la variation relative des rotation et ellipticité Kerr

Continuons le raisonnement pour le cas où la première détection synchrone est référencée à 2Ω . Le raisonnement est identique lorsque la référence vaut Ω .

Avant d'effectuer la mesure pompe-sonde, le système magnétique est porté à saturation sous champ, puis laissé à rémanence. Notons α_0 la valeur de la rotation Kerr de l'échantillon à rémanence positive, la rotation Kerr à rémanence négative vaut $-\alpha_0$ ¹⁰. $\Delta\alpha(\tau)$ dépend également de l'orientation de l'aimantation. Notons $\Delta\alpha(\tau)$ la variation induite par la pompe à rémanence positive. Ainsi à rémanence négative, la pompe induit une variation opposée $-\Delta\alpha(\tau)$. La tension

¹⁰par antisymétrie du tenseur diélectrique avec l'aimantation.

mesurée en double démodulation dépend de l'état de rémanence¹¹ de l'échantillon et s'écrit :

$$\begin{cases} V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+}(\tau) &= 4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}[\Delta R(\tau)(\alpha_{\text{offset}} + \alpha_0) + R_0\Delta\alpha(\tau)]I_s, \\ V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^-}(\tau) &= 4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}[\Delta R(\tau)(\alpha_{\text{offset}} - \alpha_0) - R_0\Delta\alpha(\tau)]I_s. \end{cases} \quad (3.16)$$

En réalisant successivement les mesures pompe-sonde dans les deux états de rémanence, la différence des tensions mesurées vaut :

$$\begin{aligned} \Delta V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau) &\equiv V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+}(\tau) - V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^-}(\tau), \\ &= 8J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}[\Delta R(\tau)\alpha_0 + R_0\Delta\alpha(\tau)]I_s. \end{aligned} \quad (3.17)$$

Une fois les mesures pompe-sonde réalisées pour les deux états de rémanence, la pompe est bloquée, le hacheur optique placé sur la voie de sonde, le système de détection restant le même. Pour les deux états de rémanence, les tensions mesurées en double démodulation valent :

$$\begin{cases} V_0^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+} &= 4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}R_0(\alpha_{\text{offset}} + \alpha_0)I_s, \\ V_0^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^-} &= 4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}R_0(\alpha_{\text{offset}} - \alpha_0)I_s, \end{cases} \quad (3.18)$$

soit :

$$\begin{aligned} \Delta V_0^{\text{DS2},2\Omega} &\equiv V_0^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+} - V_0^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^-}, \\ &= 8J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}R_0\alpha_0I_s. \end{aligned} \quad (3.19)$$

La division de $\Delta V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau)$ par $\Delta V_0^{\text{DS2},2\Omega}$ donne :

$$\text{signal}(\tau) = \frac{\Delta V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau)}{\Delta V_0^{\text{DS2},2\Omega}} = \frac{\Delta R(\tau)}{R_0} + \frac{\Delta\alpha(\tau)}{\alpha_0}. \quad (3.20)$$

Cette méthode ne permet pas d'accéder directement à la valeur absolue du changement de rotation Kerr α . Il faut retrancher le changement de réflexion de l'échantillon mesuré au préalable par simple modulation $\Delta R(\tau)/R_0 = V^{\text{DS}}(\tau)/V_0^{\text{DS}}$, cf. 3.10.

$$\boxed{\frac{\Delta\alpha(\tau)}{\alpha_0} = \frac{\Delta V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau)}{\Delta V_0^{\text{DS2},2\Omega}} - \frac{V^{\text{DS}}(\tau)}{V_0^{\text{DS}}}}. \quad (3.21)$$

Pour déterminer le changement relatif induit par la pompe dans l'ellipticité Kerr, la première détection synchrone doit être référencée à Ω .

$$\boxed{\frac{\Delta\eta(\tau)}{\eta_0} = \frac{\Delta V^{\text{DS2},\Omega}(\tau)}{\Delta V_0^{\text{DS2},\Omega}} - \frac{V^{\text{DS}}(\tau)}{V_0^{\text{DS}}}}. \quad (3.22)$$

D'un point de vue expérimental, l'obtention des variations relatives de rotation Kerr et ellipticité Kerr nécessite plusieurs mesures qui ne sont pas simultanées. Il est important que la source optique ne fluctue pas afin d'être dans les mêmes conditions pour toutes ces mesures.

¹¹par des mesures pompe-sonde en réflexion, nous avons constaté que la réflexion R de l'échantillon ne dépend pas de l'orientation de l'aimantation.

3.2.5 Dispositif expérimental et protocoles pour les différentes mesures pompe-sonde

Dispositif expérimental

La figure 3.6 présente le schéma du montage expérimental utilisé pour les mesures pompe-sonde en transmission, réflexion, rotation Kerr et ellipticité Kerr. Le dispositif expérimental

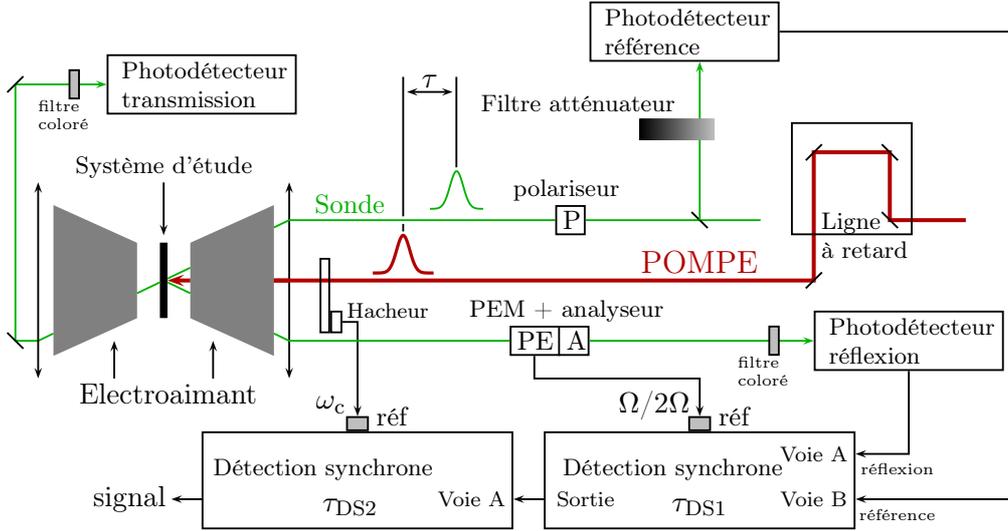


FIGURE 3.6: Schéma du montage des mesures pompe-sonde en transmission, réflexion, rotation Kerr et ellipticité Kerr. Sur ce schéma, on voit les branchements pour une mesure pompe-sonde en rotation complexe Kerr par double démodulation avec mesure différentielle.

est la combinaison du montage utilisé pour mesurer la rotation Kerr polaire complexe (paragraphe 2.2.3) et d'un montage pompe-sonde. Afin d'améliorer le rapport signal à bruit, une mesure différentielle est réalisée, cf. 3.2.3.

Dans un premier temps, on mesure en dynamique le changement relatif de la réflexion par la technique de détection synchrone différentielle, cf. 3.10. On utilise seulement la détection synchrone DS2 pour mesurer $\Delta R(\tau)/R_0$.

Dans un deuxième temps, on réalise les mesures pompe-sonde en double modulation pour chaque état de rémanence de l'échantillon M^\pm . Le signal et la référence sont branchés sur DS1. On obtient $\Delta V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau)/\Delta V_0^{\text{DS2},2\Omega}$ (resp. $\Delta V^{\text{DS2},\Omega}(\tau)/\Delta V_0^{\text{DS2},\Omega}$)¹².

On soustrait $\Delta R(\tau)/R_0$ à $\Delta V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau)/\Delta V_0^{\text{DS2},2\Omega}$ (resp. $\Delta V^{\text{DS2},\Omega}(\tau)/\Delta V_0^{\text{DS2},\Omega}$) pour obtenir la rotation (respectivement ellipticité) Kerr.

Dans un dernier temps, on mesure $\Delta T(\tau)/T_0$ en utilisant seulement DS2.

Par conséquent, un même dispositif expérimental permet les mesures de changement de transmission, de réflexion et de rotation complexe Kerr et d'être ainsi dans les mêmes conditions de focalisation de pompe et sonde. Au total, six mesures pompe-sonde sont réalisées :

- une pour la transmission.

¹²lorsque l'on mesure $\Delta V_0^{\text{DS2},\Omega}$ et $\Delta V_0^{\text{DS2},2\Omega}$ (cf. 3.18) la référence et la pompe sont bloquées. La détection synchrone DS1 est en mode A.

- une pour la réflexion.
- deux pour la rotation Kerr : une à M^+ , l'autre à M^- .
- deux pour l'ellipticité Kerr : une à M^+ , l'autre à M^- .

Réglages de la chaîne de détections synchrones

Considérons une mesure pompe-sonde en rotation Kerr, le raisonnement qui suit étant identique en ellipticité Kerr. La première détection synchrone est donc référencée à 2Ω .

Si la bande passante de la première détection synchrone est assez large, l'analyse spectrale du signal lu par cette détection synchrone $V^{2\Omega}(\tau)$ (cf. 3.14 et voir figure 3.7) présente trois composantes :

- une à 2Ω : composante principale d'amplitude proportionnelle à $4J_2(A)(R_0)(\alpha_{\text{offset}} + \alpha_0)I_s$.
- les deux autres à $2\Omega - \omega_c$ et $2\Omega + \omega_c$: raies satellites dues à la modulation du faisceau pompe, d'amplitude proportionnelle à $4J_2(A)[\Delta R(\tau)(\alpha_{\text{offset}} + \alpha_0) + R_0\Delta\alpha(\tau)]I_s$. L'information pompe-sonde est contenue dans l'amplitude de ces raies satellites.

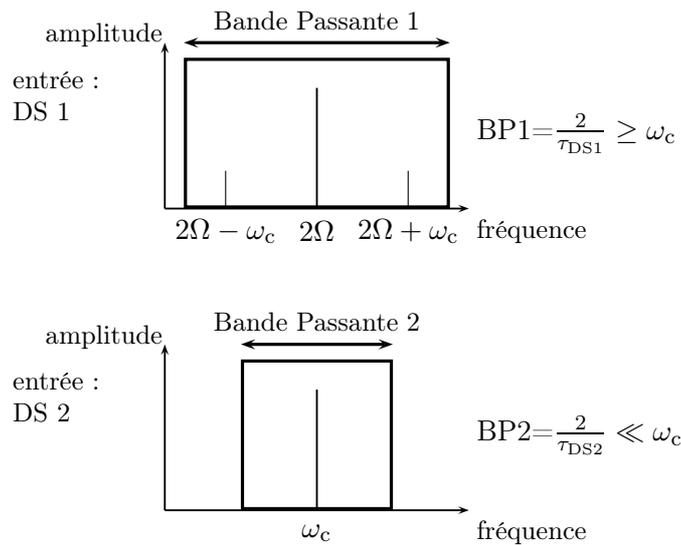


FIGURE 3.7: Réglages de la chaîne de détections synchrones : la première détection synchrone filtre la plage spectrale $[\omega_c - 1/\tau_{\text{DS1}}, \omega_c + 1/\tau_{\text{DS1}}]$. La deuxième placée en série est référencée au modulateur optique ω_c .

Il est impératif de choisir l'inverse de la constante de temps τ_{DS1} de DS1 supérieur à la fréquence de modulation du hacheur ω_c ($1/\tau_{\text{DS1}} > \omega_c$) : les raies satellites sont alors contenues dans la bande passante de la détection synchrone.

La détection synchrone¹³ utilisée pour la démodulation du photo-élastique a deux sorties :

- la sortie « CH1 » qui délivre une tension proportionnelle à la voie désirée (X, Y, R, etc). La constante de temps de la détection synchrone doit être prise supérieure à 5 ms.
- la sortie « Fast X » qui délivre une tension proportionnelle à la voie X. La constante de temps doit être prise inférieure à 640 μs .

¹³Egg Signal Recovery Model 7225 DSP Lock-in Amplifier.

La sortie CH1 nous autorise à monter à une fréquence maximum de modulation de la pompe à 200 Hz, la sortie Fast X jusqu'à 25 kHz. Une telle fréquence n'est pas possible avec notre hacheur. Nous nous sommes limités à 2 kHz.

La constante de temps de la deuxième détection synchrone¹⁴ servant à la démodulation du hacheur est choisie de manière à avoir une bande passante étroite autour de ω_c . A noter qu'un filtre supplémentaire peut être activé pour cette détection synchrone lorsque la fréquence de modulation est inférieure à 200 Hz. Ce filtre dit « filtre synchrone » permet d'éjecter les harmoniques d'une fréquence de référence inférieure à 200 Hz, principalement la seconde harmonique, sans avoir recours à une grande constante de temps qui rendrait le temps de mesure rédhitoire.

Nous avons conduit une série de tests avec différents réglages de ces deux détections synchrones pour retenir la configuration ayant le meilleur rapport signal à bruit. Nous avons fait varier les constantes de temps des deux détections synchrones, la fréquence de modulation du hacheur (celle du photo-élastique est imposée), le nombre de scans moyennés. Nous avons également testé l'apport du filtrage synchrone et l'intérêt d'une mesure différentielle. Nous listons dans le tableau 3.1 les réglages retenus donnant le meilleur rapport signal à bruit¹⁵, à savoir souvent supérieur à 10 et parfois égalant 20.

		Réglage
Détection synchrone PEM	Fréquence	42/84 kHz
	Constante de temps	80 μ s
	Sortie	Fast X
Détection synchrone Hacheur	Fréquence	180 Hz
	Constante de temps	100 ou 300 ms
	Filtre Synchrone	activé
Mesure différentielle		oui
Nombre de scans moyennés		1 ou 3

TABLEAU 3.1: Liste des réglages retenus des détections synchrones pour les mesures en double démodulation.

3.2.6 Etude de l'obtention de la variation relative du signal Kerr et de la technique de mesure en double démodulation

Validation du principe de la différence numérique

La mesure du changement relatif induit par la pompe dans la rotation (resp. ellipticité) Kerr (voir les expressions 3.21 et 3.22) se fait en deux temps : la rotation (resp. ellipticité)

¹⁴SRS Stanford Research System Model SR830 DSP Lock-In Amplifier.

¹⁵rapport défini par l'amplitude du signal sur l'amplitude du bruit.

Kerr est obtenue par soustraction entre $\Delta V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau)/\Delta V_0^{\text{DS2},2\Omega}$ (resp. $\Delta V^{\text{DS2},\Omega}(\tau)/\Delta V_0^{\text{DS2},\Omega}$) et $V^{\text{DS}}(\tau)/V_0^{\text{DS}}$. Cette soustraction n'est pas réalisée expérimentalement mais a posteriori entre séries de mesures. Elle est donc numérique et il est nécessaire de tester cette méthode.

On utilise le montage expérimental des mesures pompe-sonde en double démodulation mais on étudie un film d'or pour lequel on n'attend pas de changement des grandeurs α_K et η_K induit par la pompe. Une lame de verre prélève une portion du faisceau de sonde après le bloc {modulateur photo-élastique, analyseur}. On réalise les mesures pompe-sonde suivantes, voir figure 3.8 :

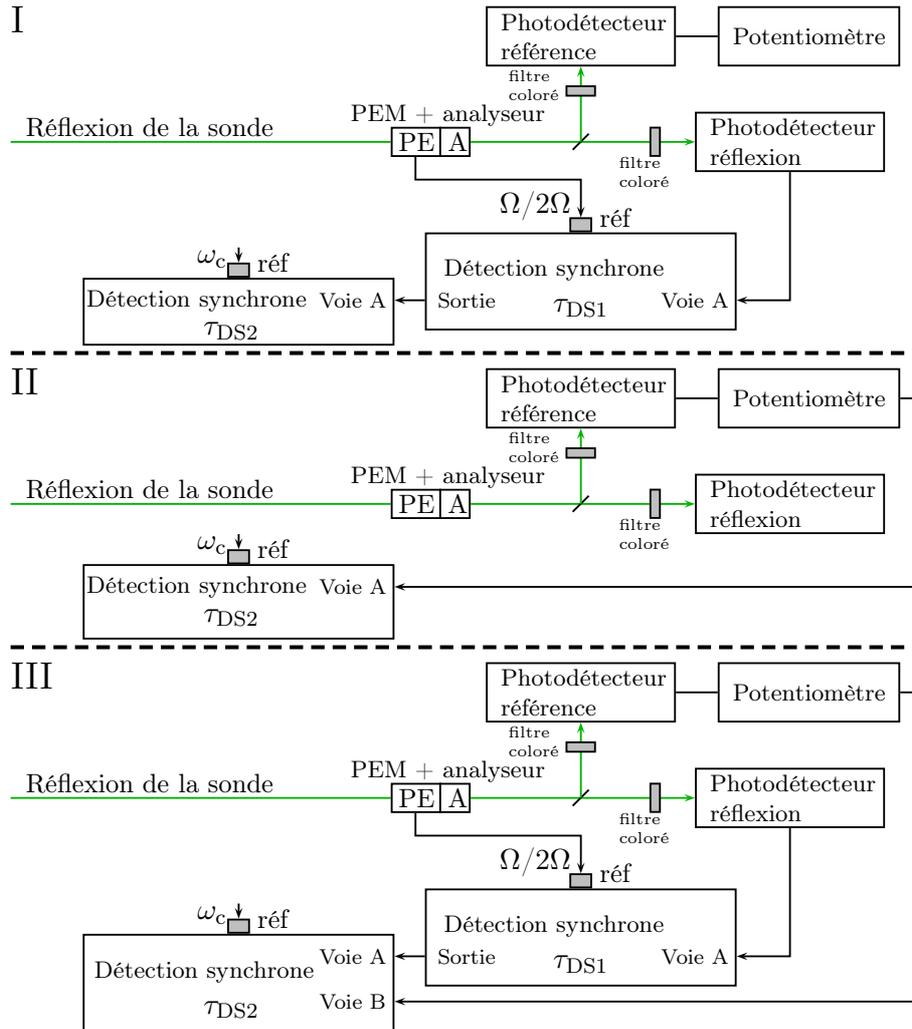


FIGURE 3.8: Schéma du dispositif de détection utilisé pour vérifier la différence numérique. Expérience I : mesure pompe-sonde en double démodulation afin de lire une tension proportionnelle au changement de réflexion de l'or. Expérience II : mesure pompe-sonde du changement de réflexion au moyen d'un photodétecteur référence et d'une simple modulation. Expérience III : on effectue la soustraction entre le signal mesuré en I et du signal mesuré en II.

- mesure I : mesure pompe-sonde en double démodulation. On se sert des relations 3.14 et 3.15 en imposant une valeur significative de l'offset sur la rotation α_{offset} au moyen d'une rotation arbitraire du modulateur photo-élastique. La première détection synchrone mesure une

tension proportionnelle à $(R_0 + \Delta R(\tau))\alpha_{\text{offset}}I_s$. La deuxième détection synchrone mesure :

$$V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau) = 4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}\Delta R(\tau)\alpha_{\text{offset}}I_s, \quad (3.23)$$

tension proportionnelle au changement de réflexion $\Delta R(\tau)$ de l'échantillon d'or.

- mesure II : mesure pompe-sonde « classique » du changement de réflexion en utilisant une seule détection synchrone. La photodiode à avalanche mesure une tension proportionnelle à $V_{\text{mesure}}(\tau)$. Cette tension est démodulée à la fréquence du hacheur (cela revient à démoduler $V^{\text{cc}}(\tau)$, cf. 3.12). Le potentiomètre permet d'ajuster l'amplitude maximale du signal lu avec l'amplitude maximale $V_{\text{max}}^{\text{DS2},2\Omega}$ du signal mesuré en I.
- mesure III : mesure pompe-sonde en double démodulation. La deuxième détection synchrone est en mode différentiel : sur la voie A, le signal en sortie de la première détection synchrone. Sur la voie B, le signal en sortie de la photodiode à avalanche.

La mesure III effectue la différence des mesures I et II que l'on compare à la différence numérique, voir figure 3.9. On voit que les graphes des différences expérimentale et numérique se superposent

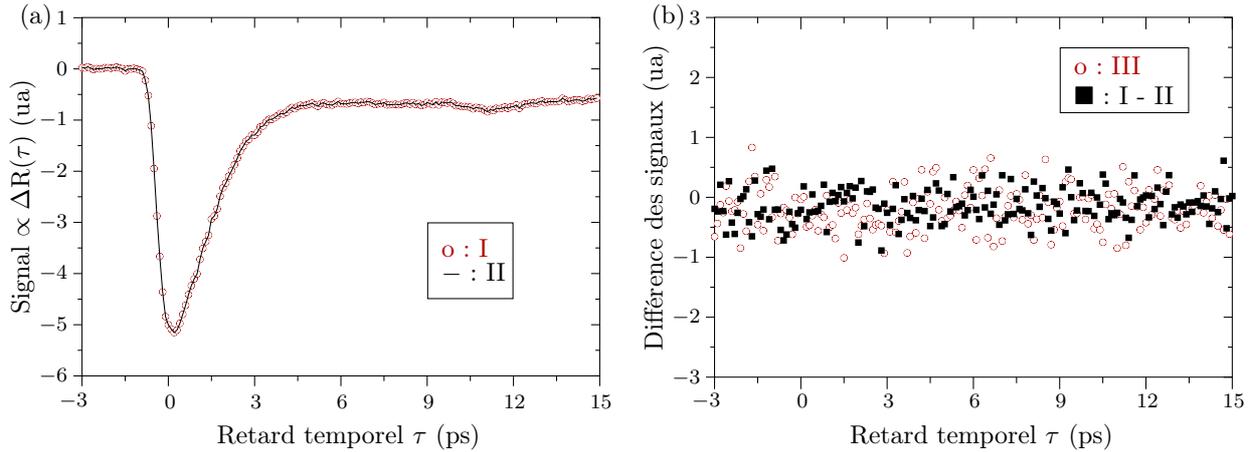


FIGURE 3.9: Mise en évidence expérimentale de la validité de la différence numérique. En (a) : changement de réflexion transitoire $\Delta R(\tau)$ mesuré dans les expériences I et II. En (b) : graphes des différences expérimentale et numérique.

bien, ce qui valide le principe de la différence numérique.

Etude de la mesure de la variation relative de la rotation Kerr

Rappelons les expressions 3.16 donnant la tension mesurée en double démodulation en fonction de l'état de rémanence de l'échantillon :

$$\begin{cases} V^{\text{DS2},2\Omega}|_{M^+}(\tau) &= 4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}[\Delta R(\tau)(\alpha_{\text{offset}} + \alpha_0) + R_0\Delta\alpha(\tau)]I_s, \\ V^{\text{DS2},2\Omega}|_{M^-}(\tau) &= 4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}[\Delta R(\tau)(\alpha_{\text{offset}} - \alpha_0) - R_0\Delta\alpha(\tau)]I_s. \end{cases}$$

Pour obtenir la variation relative de la rotation Kerr, on a fait la différence entre ces deux

dernières expressions. Si on effectue la somme, on obtient :

$$\begin{aligned}\sum V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau) &\equiv V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+}(\tau) + V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^-}(\tau), \\ &= 8J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}\Delta R(\tau)\alpha_{\text{offset}}I_s.\end{aligned}\quad (3.24)$$

De la même manière, on somme les valeurs moyennes obtenues pour $V_0^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+}$ et $V_0^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^-}$ lorsque la sonde est modulée et la pompe bloquée :

$$\begin{aligned}\sum V_0^{\text{DS2},2\Omega} &\equiv V_0^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+} + V_0^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^-}, \\ &= 8J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}R_0\alpha_{\text{offset}}I_s.\end{aligned}\quad (3.25)$$

Par division, on obtient :

$$\frac{\sum V^{\text{DS2},2\Omega}(\tau)}{\sum V_0^{\text{DS2},2\Omega}} = \frac{\Delta R(\tau)}{R_0}.\quad (3.26)$$

On mesure ainsi le changement relatif induit par la pompe dans la réflexion.

On peut exploiter différemment les expressions 3.16 réécrites ci-dessus. On se place à rémanence positive pour l'échantillon, on ajuste l'orientation du modulateur photo-élastique de manière à annuler la contribution statique α_0 de l'échantillon : $\alpha_{\text{offset}} = -\alpha_0$. La tension mesurée en double démodulation s'écrit :

$$V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+, \alpha_{\text{offset}} = -\alpha_0}(\tau) = 4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}R_0\Delta\alpha(\tau)I_s.\quad (3.27)$$

Une fois la mesure pompe-sonde effectuée, on renverse l'aimantation et on se met à rémanence négative. On tourne le modulateur photo-élastique de telle façon que $\alpha_{\text{offset}} = +\alpha_0$. On mesure alors en double démodulation :

$$V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^-, \alpha_{\text{offset}} = +\alpha_0}(\tau) = -4J_2(A)K^{\text{DS2},2\Omega}R_0\Delta\alpha(\tau)I_s.\quad (3.28)$$

A partir de cette analyse, nous avons effectué sur notre échantillon magnétique la série de mesures suivantes :

- expérience I : mesure de changement relatif de la réflexion en double démodulation en exploitant la relation 3.26.
- expérience II : mesure pompe-sonde de variation relative de la réflexion en démodulant $V^{\text{cc}}(\tau)$ par une détection synchrone référencée au hacheur, cf. 3.10.
- expérience III : mesure pompe-sonde de la variation relative de la rotation Kerr en double démodulation (relation 3.21).
- expérience IV : mesure en double démodulation de la variation $V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+, \alpha_{\text{offset}} = -\alpha_0}(\tau)$ de la rotation Kerr de l'échantillon en tournant le modulateur photo-élastique de manière à annuler la contribution statique α_0 , l'échantillon est à rémanence positive.
- expérience V : même mesure que pour l'expérience IV pour une rémanence négative.

Les figures 3.10 et 3.11 montrent les graphes de ces mesures. On voit sur la figure 3.10 (a) que les graphes des expériences I et II se superposent bien, ce qui montre que les tensions mesurées en double démodulation $V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^+}(\tau)$ et $V^{\text{DS2},2\Omega}|_{\text{M}^-}(\tau)$ comprennent la variation de la réflexion.

Les graphes des expériences IV et V sont bien symétriques l'un de l'autre (figure 3.10 (b)). Ceci est attendu : la tension mesurée est proportionnelle à $\Delta\alpha(\tau)$ (expressions 3.27 et 3.28).

Les graphes des expériences III et IV se superposent bien (figure 3.11 (a)). La mesure IV (qui est proportionnelle à $\Delta\alpha(\tau)$) a été normalisée pour avoir même amplitude maximum que la mesure III.

On remarque également que l'amplitude de la variation relative de la rotation Kerr est de l'ordre de 30 %, à savoir au moins un ordre de grandeur plus grand que la variation relative de la réflexion. Sur la figure 3.11 (b), on ne voit pas l'effet de la soustraction de la variation relative de la réflexion sur la mesure expérimentale $\Delta V^{\text{DS}2,2\Omega}(\tau)/\Delta V_0^{\text{DS}2,2\Omega} = \Delta R(\tau)/R_0 + \Delta\alpha(\tau)/\alpha_0$. En effet, pour l'échantillon magnétique utilisé, on peut négliger $\Delta R(\tau)/R_0$ (amplitude maximale égale à -7×10^{-3}) devant $\Delta\alpha(\tau)/\alpha_0$ (amplitude maximale égale à $-0,25$).

Etude de la mesure de la variation relative de l'ellipticité Kerr

Nous avons conduit de manière identique une série de mesures pour tester la technique de mesure d'ellipticité Kerr en dynamique. Pour ajuster η_{offset} , on tourne le polariseur P de la sonde qui est placé en amont de deux miroirs (voir la figure 2.4) :

- expérience I : mesure de changement relatif de la réflexion en double démodulation en exploitant la relation 3.26 pour l'ellipticité.
- expérience II : mesure pompe-sonde de variation relative de la réflexion en démodulant $V^{\text{cc}}(\tau)$ par une seule détection synchrone référencée au hacheur, cf. 3.10.
- expérience III : mesure pompe-sonde de la variation relative de l'ellipticité Kerr en double démodulation (relation 3.22).
- expérience IV : mesure en double démodulation de la variation $V^{\text{DS}2,\Omega}|_{\text{M}^+, \eta_{\text{offset}} = -\eta_0}(\tau)$ de l'ellipticité Kerr de l'échantillon en tournant le polariseur de la sonde de manière à annuler la contribution statique η_0 , l'échantillon est à rémanence positive.
- expérience V : même mesure que pour l'expérience IV pour une rémanence négative.

Les figures 3.12 et 3.13 montrent les graphes de ces mesures. Les conclusions et remarques sont identiques à celles obtenues pour l'étude de la rotation Kerr.

En définitive, ces deux études sont en accord avec toute l'analyse effectuée et les expressions établies.

Etude de la division pour s'affranchir de la soustraction numérique

Réécrivons les expressions 3.14 donnant les tensions mesurées $V^{\text{cc}}(\tau)$, $V^{\text{DS}1,\Omega}$ et $V^{\text{DS}1,2\Omega}$ en pompe-sonde :

$$\begin{cases} V^{\text{cc}}(\tau) & \propto & (R_0 + \Delta R(\tau))I_s, \\ V^{\text{DS}1,\Omega}(\tau) & \propto & 4J_1(A)(R_0 + \Delta R(\tau))(\eta_{\text{offset}} + \eta + \Delta\eta(\tau))I_s, \\ V^{\text{DS}1,2\Omega}(\tau) & \propto & 4J_2(A)(R_0 + \Delta R(\tau))(\alpha_{\text{offset}} + \alpha_0 + \Delta\alpha(\tau))I_s. \end{cases}$$

Nous avons essayé de diviser la tension de sortie $V^{\text{DS}1,\Omega}(\tau)$ ou $V^{\text{DS}1,2\Omega}(\tau)$ de la première détection synchrone par une tension proportionnelle à la grandeur physique $R_0 + \Delta R(\tau)$ de

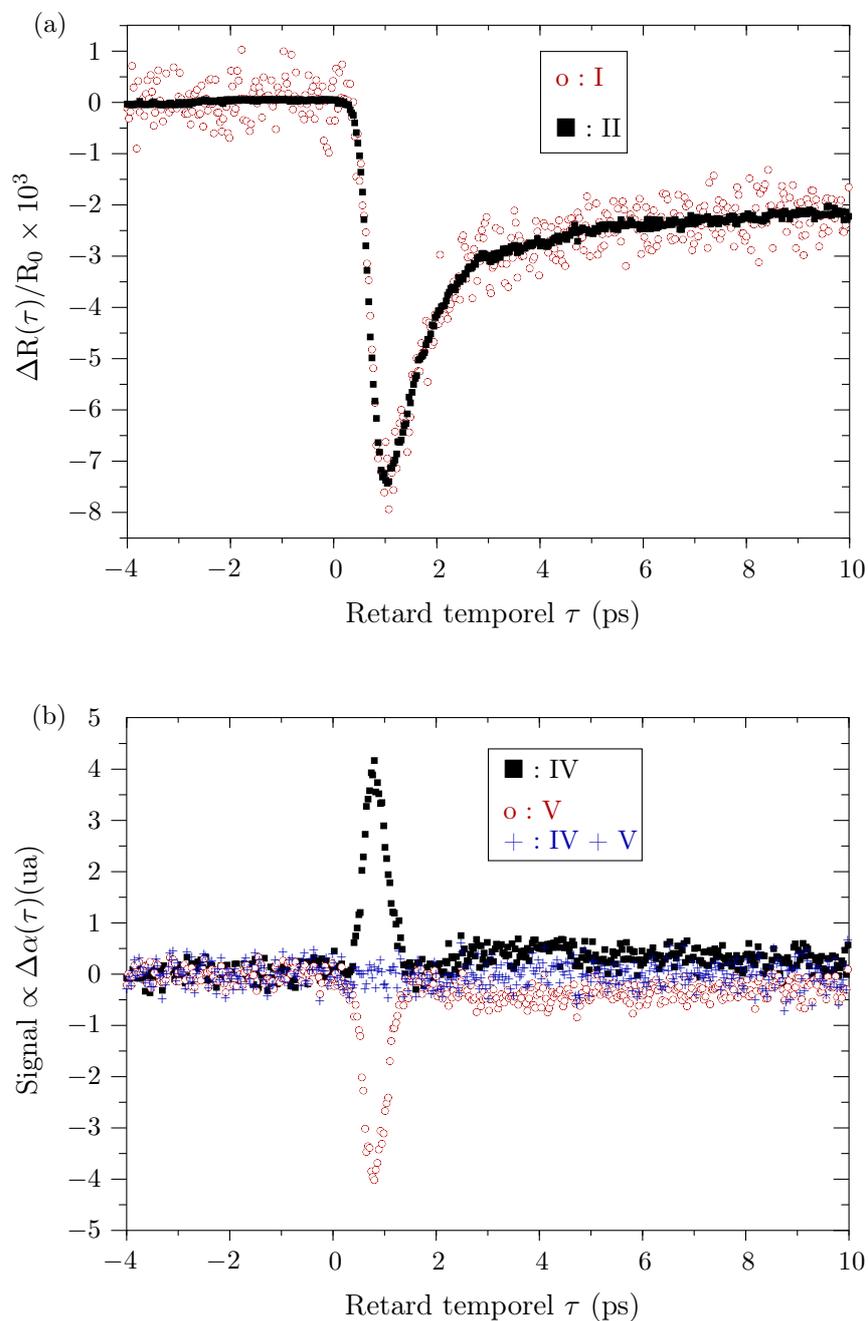


FIGURE 3.10: Étude du protocole de mesure de la rotation Kerr en dynamique (première partie). En (a) : variation relative de la réflexion mesurée par les mesures I et II. En (b) : variation de la rotation Kerr obtenue par les expériences IV et V en tournant le modulateur photo-élastique.

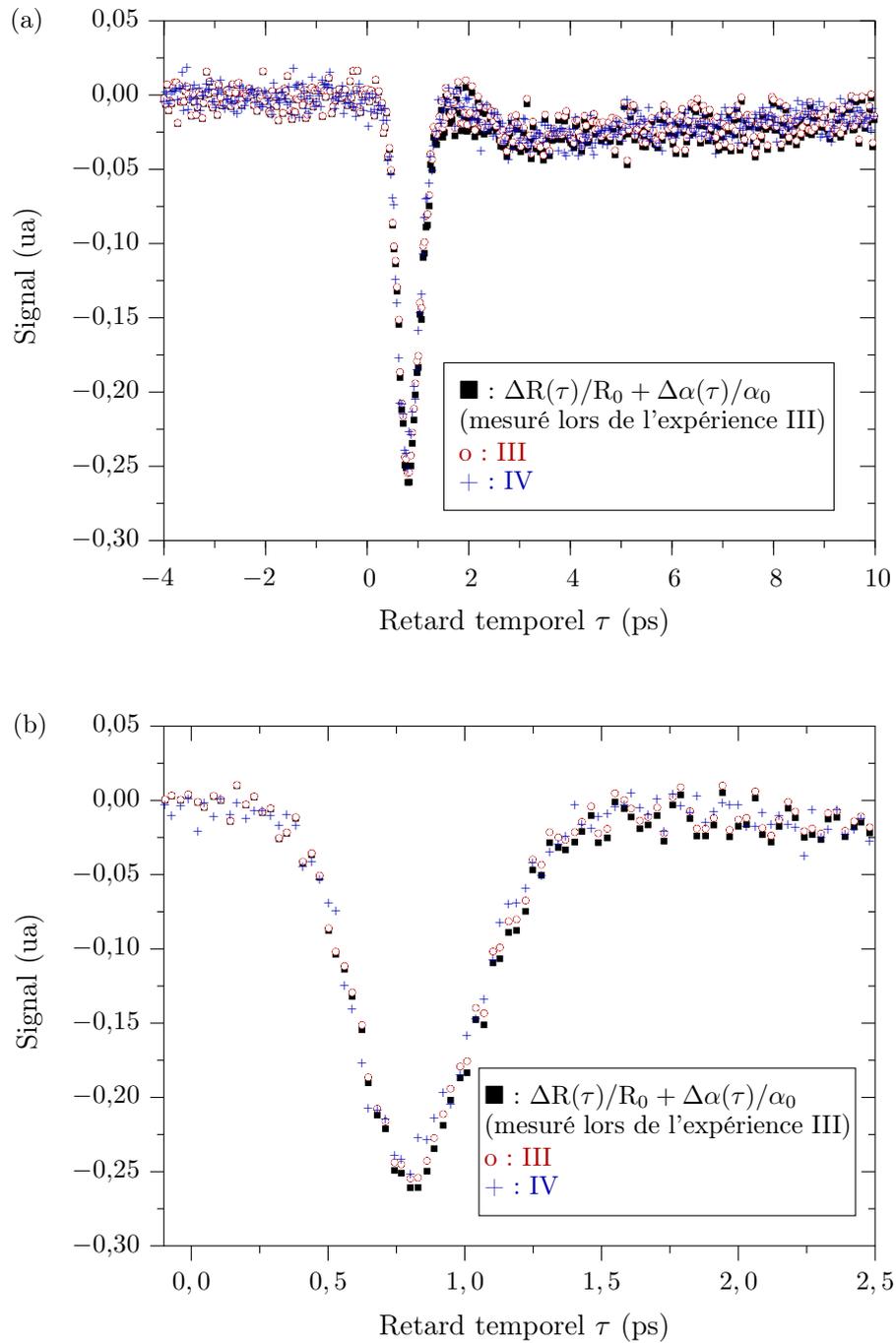


FIGURE 3.11: Étude du protocole de mesure de la rotation Kerr en dynamique (seconde partie). En (a) : changement transitoire de la rotation Kerr obtenu par les expériences III et IV. En (b) : agrandissement de la figure (a) pour la plage temporelle $[-0,1 \text{ ps} - 2,5 \text{ ps}]$.

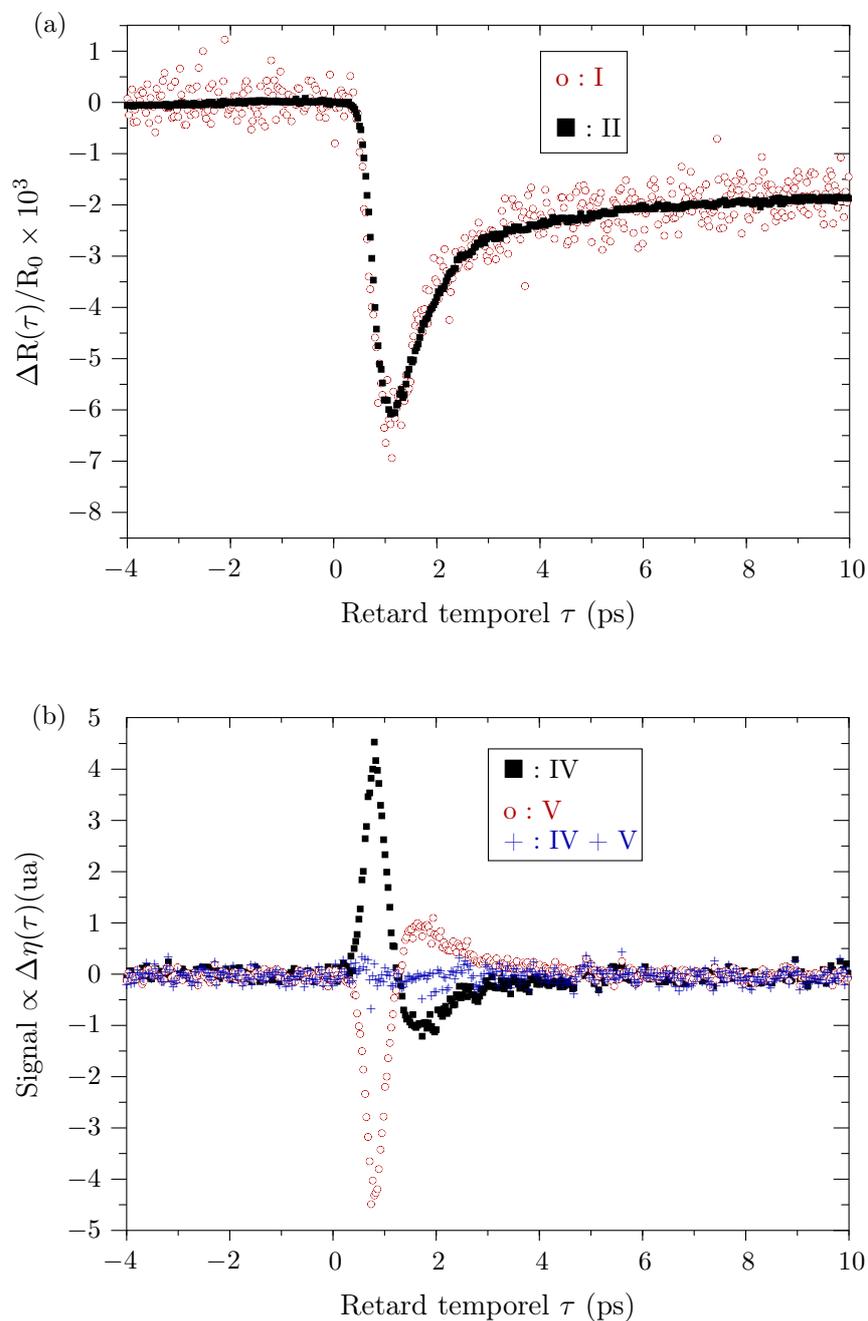


FIGURE 3.12: Étude du protocole de mesure de l'ellipticité Kerr en dynamique (première partie). En (a) : variation relative de la réflexion mesurée par les mesures I et II. En (b) : variation de l'ellipticité Kerr obtenue par les expériences IV et V en tournant le polariseur P .

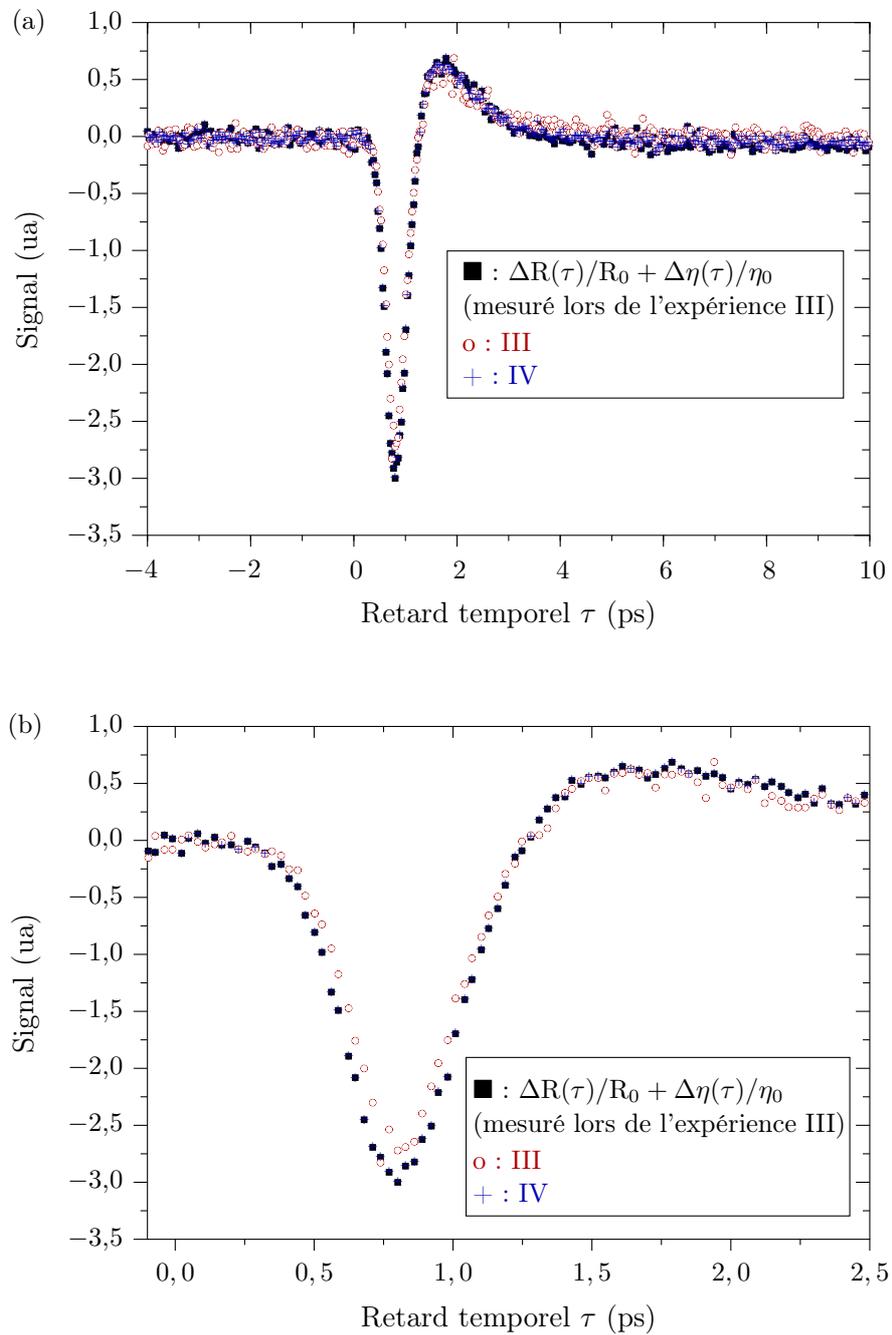


FIGURE 3.13: Étude du protocole de mesure de l'ellipticité Kerr en dynamique (seconde partie). En (a) : changement transitoire de l'ellipticité Kerr obtenu par les expériences III et IV. En (b) : agrandissement de la figure (a) pour la plage temporelle $[-0,1 \text{ ps} - 2,5 \text{ ps}]$.

manière à générer un signal ne faisant plus intervenir le changement de réflexion. On démodulerait ce signal « division » au moyen de la deuxième détection synchrone référencée au hacheur pour avoir une tension proportionnelle seulement au changement de rotation Kerr complexe induit par la pompe. Une mesure pompe-sonde unique donnerait alors accès à $\Delta\alpha(\tau)$ sans ambiguïté.

Nous prélevons une portion du faisceau de sonde après le bloc {modulateur photo-élastique, analyseur}, portion envoyée dans un photodétecteur, voir la figure 3.14. Un filtre RC passe-bas

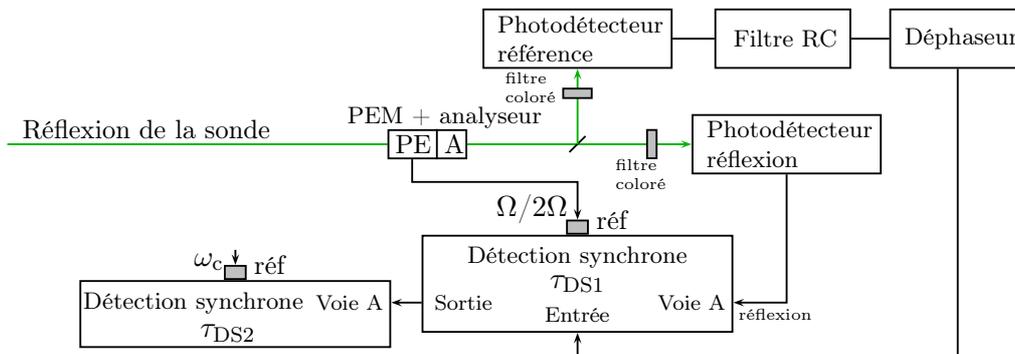


FIGURE 3.14: Etude de la division pour s'affranchir de la soustraction numérique.

est placé en sortie de la photodiode à avalanche. Sa fréquence de coupure est choisie plus grande que la fréquence de modulation de la pompe et plus petite que les fréquences de modulation du photo-élastique. Ainsi, en sortie de ce filtre, nous avons un signal proportionnel à $R_0 + \Delta R$. ΔR est modulé à la fréquence du hacheur, un circuit électronique déphaseur permet d'égaliser la phase de la référence avec celle du signal.

Il reste à effectuer la division : la commande **RATIO** de la première détection synchrone a été utilisée. Cette commande permet de diviser le signal en entrée de la détection synchrone par l'entrée auxiliaire 1. La division a échoué : la bande passante de l'entrée auxiliaire 1 coupe la fréquence de modulation de la pompe. Nous n'avons pas poussé plus loin nos investigations quant à la réalisation d'une division et avons utilisé par la suite la méthode de double-démodulation avec différence numérique.

Validation de la technique de mesure en double démodulation par des mesures sur un échantillon « témoin » (CoPt_3)

E. Beurepaire de l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg nous a donné un film mince de CoPt_3 , système sur lequel des mesures pompe-sonde à deux couleurs ont été publiées [95]. Nous avons cherché à reproduire leurs résultats afin de valider notre dispositif expérimental ainsi que notre technique de mesure de rotation Kerr complexe en double modulation.

Dans cet article [95], l'impulsion pompe est à 400 nm, l'impulsion sonde est accordable en longueur d'onde sur la gamme [480 nm, 700 nm]. Il a été conclu que les variations relatives de la rotation Kerr polaire et de l'ellipticité Kerr polaire sont égales dans la plage spectrale [480 nm, 700 nm] ainsi que les variations relatives des rotations complexes Kerr et Faraday. Pour nos mesures, les conditions d'excitation sont différentes : l'impulsion pompe est à 800 nm. La

durée des impulsions est également légèrement différente : nos impulsions ont une durée de 280 fs, celles de [95] de 150 fs. La figure 3.15 (a) représente les variations relatives des rotation et ellipticité Kerr que nous avons mesurées à une longueur d'onde de sonde égale à 500 nm. Les évolutions temporelles des rotation et ellipticité Kerr sont identiques. La figure 3.15 (b) est une reproduction de la figure 5 de [95] qui montre les variations relatives des rotations complexes Kerr et Faraday mesurées à deux longueurs d'onde différentes (530 nm et 620 nm). Sur cette même figure 3.15 (b), nous y avons superposé la courbe que nous avons obtenue pour la variation relative de l'ellipticité Kerr. Notre mesure a été normalisée de manière à ce que l'amplitude maximum soit égale à celle des mesures de la référence [95], ceci permettant de prendre en compte la différence entre les densités d'excitation. Nous constatons l'accord entre notre courbe et celles publiées dans la référence [95]. Les légères différences entre les courbes sont vraisemblablement liées aux conditions d'excitation [93].

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre, les différents aspects expérimentaux des mesures en dynamique ont été présentés :

- les sources optiques femtosecondes.
- les techniques de mesure pompe-sonde en transmission, réflexion, rotation Kerr et ellipticité Kerr.

Par une technique de détection synchrone différentielle, nous sommes capables de mesurer des changements relatifs de transmission et de réflexion de l'ordre de 10^{-5} . La technique de mesure en double démodulation permet de mesurer quant à elle des changements relatifs de rotation Kerr complexe de 10^{-2} .

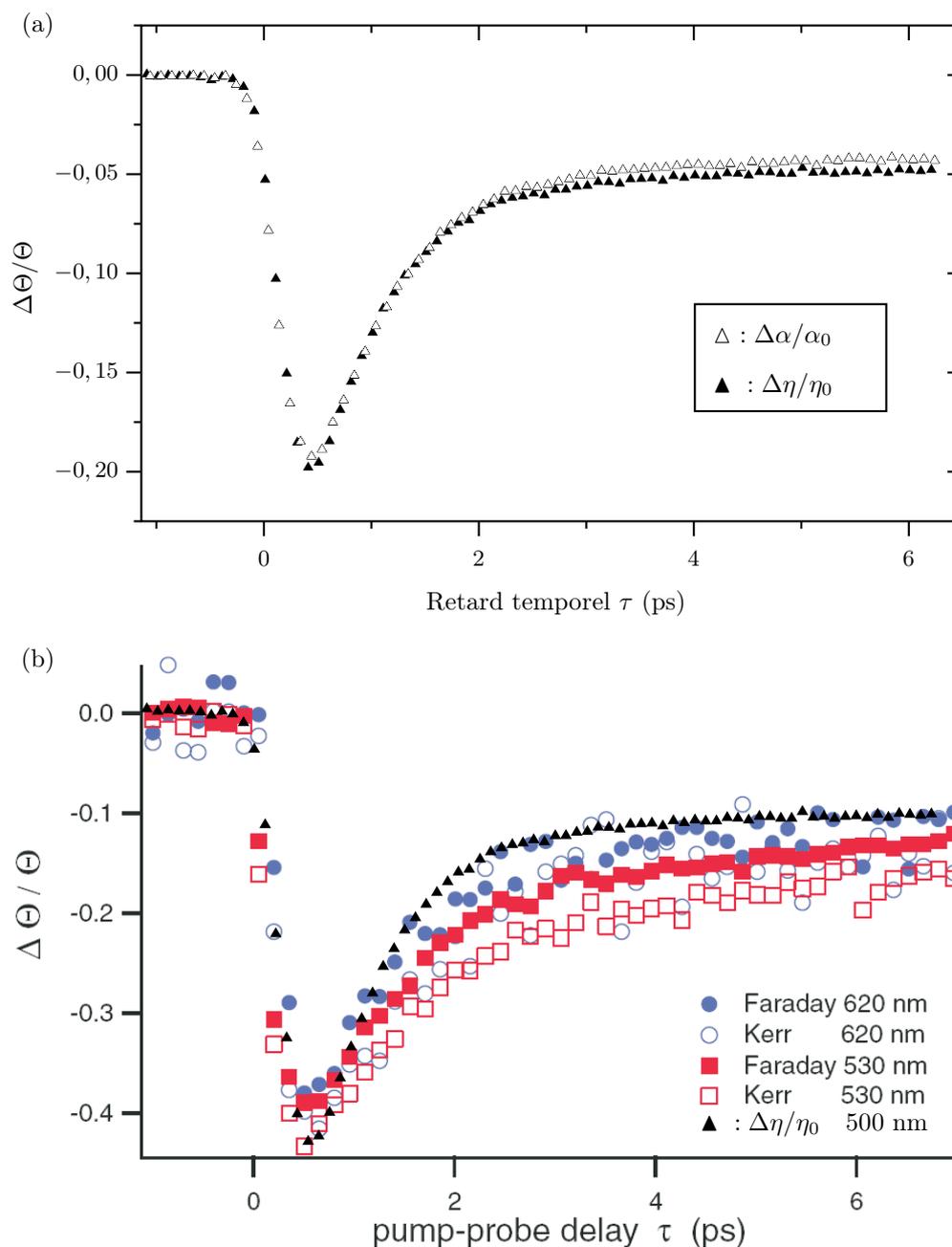


FIGURE 3.15: Validation de la technique de mesure en double démodulation par des mesures sur un échantillon « témoin » (CoPt_3). En (a) : variations relatives de la rotation Kerr $\Delta\alpha/\alpha_0$ (en triangles vides Δ) et de l'ellipticité Kerr $\Delta\eta/\eta_0$ (en triangles remplis \blacktriangle) que nous avons obtenues en sondant à $\lambda = 500$ nm. En (b) : nous avons reproduit la figure 5 de [95] qui représente les variations relatives des rotations complexes Kerr et Faraday mesurées à deux longueurs d'onde différentes (530 nm et 620 nm). Les triangles pleins (\blacktriangle) représentent l'évolution temporelle de l'ellipticité Kerr $\Delta\eta/\eta_0$ que nous avons obtenue pour une longueur d'onde de sonde égale à 500 nm. Notre mesure a été normalisée de manière à ce que l'amplitude maximum soit égale à celle des mesures de la référence [95].

Chapitre 4

Le système Au/Co/Au en régime dynamique

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats des études résolues en temps menées sur le système multicouches Au/Co/Au au moyen d'expériences pompe-sonde à deux couleurs. La première section a pour but de montrer comment découpler le système et remonter à la dynamique de charges et à la dynamique magnéto-optique par estimation des constantes diélectriques. La deuxième partie se concentre sur la dynamique de charges et en particulier sur le rôle du cobalt. La dernière section fait le point sur la validité d'une mesure pompe-sonde sur un film ferromagnétique et présente l'étude de la dynamique magnéto-optique du système multicouches.

4.1 Mesures optiques et changements de constantes diélectriques

4.1.1 Position du problème

L'analyse des phénomènes microscopiques transitoires en jeu dans la relaxation du système multicouches Au/Co/Au après injection optique d'énergie peut se déduire par l'évolution temporelle à fréquence de sonde ω_s donnée de la constante diélectrique ε_{Au} de l'or et des coefficients du tenseur diélectrique $[\varepsilon_{\text{Co}}]$ du cobalt, soit au total de 6 paramètres :

- 2 pour la constante diélectrique $\varepsilon_{\text{Au}}(\omega_s)$ complexe de l'or à ω_s ,

$$\varepsilon_{\text{Au}}(\omega_s) = \varepsilon'_{\text{Au}}(\omega_s) + i\varepsilon''_{\text{Au}}(\omega_s).$$

- le tenseur diélectrique $[\varepsilon_{\text{Co}}](\omega_s)$ complexe du cobalt à ω_s s'écrit en fonction de trois paramètres complexes (soit six paramètres au total) :

$$[\varepsilon_{\text{Co}}](\omega_s) = \begin{bmatrix} \varepsilon_{\text{Co},xx}(\omega_s) & \varepsilon_{\text{Co},xy}(\omega_s) & 0 \\ -\varepsilon_{\text{Co},xy}(\omega_s) & \varepsilon_{\text{Co},xx}(\omega_s) & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{\text{Co},zz}(\omega_s) \end{bmatrix},$$

avec :

$$\begin{cases} \varepsilon_{\text{Co},xx}(\omega_s) &= \varepsilon'_{\text{Co},xx}(\omega_s) + i\varepsilon''_{\text{Co},xx}(\omega_s), \\ \varepsilon_{\text{Co},xy}(\omega_s) &= \varepsilon'_{\text{Co},xy}(\omega_s) + i\varepsilon''_{\text{Co},xy}(\omega_s), \\ \varepsilon_{\text{Co},zz}(\omega_s) &= \varepsilon'_{\text{Co},zz}(\omega_s) + i\varepsilon''_{\text{Co},zz}(\omega_s). \end{cases}$$

Nous rappelons que le tenseur diélectrique du cobalt a une telle forme du fait de la structure hcp du cobalt et de l'orientation de l'aimantation selon l'axe z qui est perpendiculaire au plan du film (on considère que le cobalt a une épaisseur inférieure à 9 PA).

En configuration polaire (faisceau de sonde en incidence quasi-normale sur le système), le coefficient $\varepsilon_{\text{Co},zz}$ n'intervient pas dans l'expression des grandeurs optiques du système multicouches (paragraphe 1.2.4 et 1.2.2). Ainsi, dans les mesures pompe-sonde, seules les variations des coefficients complexes $\varepsilon_{\text{Co},xx}$ et $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ comptent.

Dans nos expériences pompe-sonde, les grandeurs accessibles à l'expérience sont les variations de transmission, de réflexion, de rotation Kerr et ellipticité Kerr de l'échantillon à une énergie de photon de sonde $\hbar\omega_s$ et un retard temporel pompe-sonde τ donnés. L'énergie du photon de sonde est choisie arbitrairement dans la zone spectrale autour du seuil des transitions interbandes de l'or, zone spectrale pour laquelle la réponse magnéto-optique du système multicouches présente un comportement singulier (paragraphe 2.3.2).

Dans un régime de faible perturbation, la modification induite par l'impulsion pompe de la réponse magnéto-optique peut être exprimée au premier ordre en fonction des variations des constantes diélectriques de l'or et du cobalt :

$$\begin{pmatrix} \frac{\Delta T}{T_0} \\ \frac{\Delta R}{R_0} \\ \frac{\Delta \alpha}{\alpha_0} \\ \frac{\Delta \eta}{\eta_0} \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} T_{\varepsilon'_{\text{Au}}} & T_{\varepsilon''_{\text{Au}}} & T_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}} & T_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}} & T_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} & T_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} \\ R_{\varepsilon'_{\text{Au}}} & R_{\varepsilon''_{\text{Au}}} & R_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}} & R_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}} & R_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} & R_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} \\ \alpha_{\varepsilon'_{\text{Au}}} & \alpha_{\varepsilon''_{\text{Au}}} & \alpha_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}} & \alpha_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}} & \alpha_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} & \alpha_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} \\ \eta_{\varepsilon'_{\text{Au}}} & \eta_{\varepsilon''_{\text{Au}}} & \eta_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}} & \eta_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}} & \eta_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} & \eta_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \Delta \varepsilon'_{\text{Au}} \\ \Delta \varepsilon''_{\text{Au}} \\ \Delta \varepsilon'_{\text{Co},xx} \\ \Delta \varepsilon''_{\text{Co},xx} \\ \Delta \varepsilon'_{\text{Co},xy} \\ \Delta \varepsilon''_{\text{Co},xy} \end{pmatrix}, \quad (4.1)$$

avec :

$$\begin{cases} f_{\varepsilon'_{\text{Au}}} &= \frac{1}{f_0} \frac{\partial f}{\partial \varepsilon'_{\text{Au}}}, \\ f_{\varepsilon''_{\text{Au}}} &= \frac{1}{f_0} \frac{\partial f}{\partial \varepsilon''_{\text{Au}}}, \\ f_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}} &= \frac{1}{f_0} \frac{\partial f}{\partial \varepsilon'_{\text{Co},xx}}, \\ f_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}} &= \frac{1}{f_0} \frac{\partial f}{\partial \varepsilon''_{\text{Co},xx}}, \\ f_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} &= \frac{1}{f_0} \frac{\partial f}{\partial \varepsilon'_{\text{Co},xy}}, \\ f_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} &= \frac{1}{f_0} \frac{\partial f}{\partial \varepsilon''_{\text{Co},xy}}, \end{cases} \quad (4.2)$$

où f désigne les grandeurs physiques T , R , α et η . Chacun des éléments de l'égalité vectorielle 4.1 dépend de l'énergie du photon de sonde ω_s . Pour alléger les notations, cette dépendance n'apparaît pas.

La matrice dans l'expression 4.1 n'est pas carrée, a fortiori non inversible. Deux alternatives sont envisageables :

- mesurer l'évolution temporelle de deux autres grandeurs physiques. Ces grandeurs doivent pouvoir s'exprimer en fonction de la constante diélectrique de l'or et du tenseur diélectrique du cobalt. Elles doivent également être linéairement indépendantes des grandeurs T , R , α et η . La matrice devient carrée de dimension six.
- les variations des grandeurs optiques sont une combinaison linéaire des variations des termes diélectriques avec des poids donnés par les coefficients de la matrice 4.1. Certains des termes peuvent être négligeables devant d'autres, ceci étant dû soit à l'énergie particulière du photon de sonde, soit à la façon dont on injecte l'énergie (à 1,55 eV). Ces approximations sont détaillées dans la suite.

Pour la première alternative, on pourrait penser à mesurer les rotation et ellipticité Faraday de la multicouche magnétique, mais une analyse de leurs expressions montre qu'elles ne sont pas indépendantes des grandeurs T , R , α et η ¹. On pourrait également avoir l'idée d'étudier un film mince constitué uniquement d'or ou de cobalt afin de connaître l'évolution de ses propriétés optiques propres. On serait obligé de prendre l'or car le cobalt s'oxyde à l'air. Nous revenons sur cette méthode dans le dernier paragraphe de cette section. *Nous examinons d'abord la deuxième alternative, plus directe, en évaluant les coefficients de la matrice de 4.1. Puis, nous estimons les ordres de grandeur relatifs des variations de la constante diélectrique de l'or et du tenseur diélectrique du cobalt pour finalement estimer les différents termes qui composent les observables $\Delta T/T_0$, $\Delta R/R_0$, $\Delta\alpha/\alpha_0$ et $\Delta\eta/\eta_0$ et simplifier l'analyse du problème.*

4.1.2 Calcul des coefficients de la matrice reliant les variations des termes diélectriques aux grandeurs optiques

Les calculs magnéto-optiques dans les structures en couches minces ont été présentés dans le chapitre 1. T , R , α et η ont été exprimés en fonction de la constante diélectrique ε_{Au} de l'or et du tenseur diélectrique $[\varepsilon_{\text{Co}}]$ du cobalt. La matrice dans l'expression 4.1 peut être alors calculée numériquement en se servant des expressions du chapitre 1. Les calculs se font à énergie de sonde ω_s donnée et nécessitent de connaître les relations de dispersion de $\varepsilon_{\text{Au}}(\omega_s)$ et $[\varepsilon_{\text{Co}}](\omega_s)$ (paragraphe 2.3.2).

Les courbes de dispersion des 24 coefficients de la matrice 4.1 calculés pour une structure Au(15 PA)/Co(4 PA)/Au(28 nm)/verre sont représentées sur les huit figures 4.1. Chaque figure regroupe les courbes de dispersion des coefficients d'une même ligne de la matrice 4.1. Par exemple, la figure 4.1 (a1) montre les courbes de dispersion des coefficients de la première ligne de la matrice 4.1, à savoir les courbes de dispersions des coefficients $T_{\varepsilon'_{\text{Au}}}$, $T_{\varepsilon''_{\text{Au}}}$, $T_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}}$, $T_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}}$, $T_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}}$ et $T_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}}$. Les figures de la deuxième colonne de figures (par exemple, figure 4.1 (a2)) sont

¹propriété que l'on peut démontrer avec les expressions 1.34 et 1.35 pour des structures en couches minces dont les couches magnétiques sont à aimantation perpendiculaire au plan des couches.

un agrandissement des figures de la première colonne dans les zones d'intérêt. Les traits verticaux tracés sur chacune de ces huit figures délimitent la plage spectrale explorée expérimentalement : [2,3 eV-2,47 eV]. Nous donnons ici à titre d'exemple représentatif les coefficients de la matrice 4.1 pour un photon de sonde de 2,47 eV :

$$\begin{bmatrix} 1,09 \times 10^{-1} & -1,83 \times 10^{-1} & 3,25 \times 10^{-3} & -4,92 \times 10^{-3} & 4,26 \times 10^{-5} & 4,27 \times 10^{-5} \\ -1,33 \times 10^{-1} & 4,36 \times 10^{-2} & -5,52 \times 10^{-3} & -7,18 \times 10^{-4} & 1,19 \times 10^{-5} & -6,30 \times 10^{-5} \\ 4,25 \times 10^{-2} & -1,89 \times 10^{-1} & 1,48 \times 10^{-2} & -3,88 \times 10^{-2} & -2,46 & -3,20 \times 10^{-1} \\ 7,83 \times 10^{-1} & 1,84 \times 10^{-1} & 1,60 \times 10^{-1} & 6,25 \times 10^{-2} & 1,37 & -10,2 \end{bmatrix}. \quad (4.3)$$

Les courbes de dispersion des coefficients de proportionnalité de la matrice 4.1 et l'expression de la matrice à 2,47 eV suscitent plusieurs commentaires pour la plage spectrale étudiée :

- certaines courbes de dispersion présentent des variations abruptes au voisinage du seuil des transitions interbandes de l'or (courbes de $R_{\varepsilon'_{\text{Au}}}$, $R_{\varepsilon''_{\text{Au}}}$, $\eta_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}}$ et $\eta_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}}$). Ce résultat n'est pas surprenant : nous avons vu dans le paragraphe 2.3.2 que la dispersion de la réponse magnéto-optique du système Au/Co/Au reflète principalement la dépendance spectrale de l'or (figure 2.9).
- si on étudie les coefficients de la matrice 4.1 ligne par ligne, on constate que les coefficients ne sont pas tous du même ordre de grandeur. Pour la première ligne de la matrice 4.1, les coefficients $T_{\varepsilon'_{\text{Au}}}$ et $T_{\varepsilon''_{\text{Au}}}$ sont au moins deux ordres de grandeur plus grands que les quatre autres coefficients de la ligne. Pour la seconde ligne de la matrice 4.1, le coefficient $R_{\varepsilon'_{\text{Au}}}$ est presque deux ordres de grandeur plus grands que les coefficients $R_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}}$, $R_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}}$, $R_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}}$ et $R_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}}$. Le coefficient $R_{\varepsilon''_{\text{Au}}}$ change abruptement de signe dans la plage spectrale étudiée. Pour la troisième (respectivement quatrième) ligne de la matrice 4.1, les coefficients $\alpha_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}}$ et $\alpha_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}}$ (respectivement $\eta_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}}$ et $\eta_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}}$) dominent les quatre autres coefficients de la ligne d'un ordre de grandeur. Ainsi, les variations des différents termes diélectriques ont des poids nettement différents dans la variation relative de chaque grandeur optique.

Il semble donc possible de ne conserver que certains termes (chaque terme étant le produit d'un coefficient de la matrice 4.1 et la variation de la constante diélectrique correspondante) dans l'expression des différentes observables. Cependant, avant de simplifier la somme, il est nécessaire d'évaluer les ordres de grandeur attendus pour les variations des constantes diélectriques (une faible valeur d'un coefficient de la matrice pourrait être compensée par une forte variation du terme diélectrique).

4.1.3 Estimation des ordres de grandeurs relatifs des variations des constantes diélectriques

Propriétés optiques non linéaires d'un métal

Les propriétés optiques d'un matériau sont liées à sa structure de bandes et à la distribution électronique. Lorsque l'on modifie soit la structure de bandes soit la distribution électronique par voie optique (mise hors d'équilibre par une impulsion laser suffisamment intense) et lorsque l'on observe les changements induits de la réponse optique mesurés par l'impulsion sonde, on parle alors de réponse optique non-linéaire. En première approximation, on suppose que la structure de

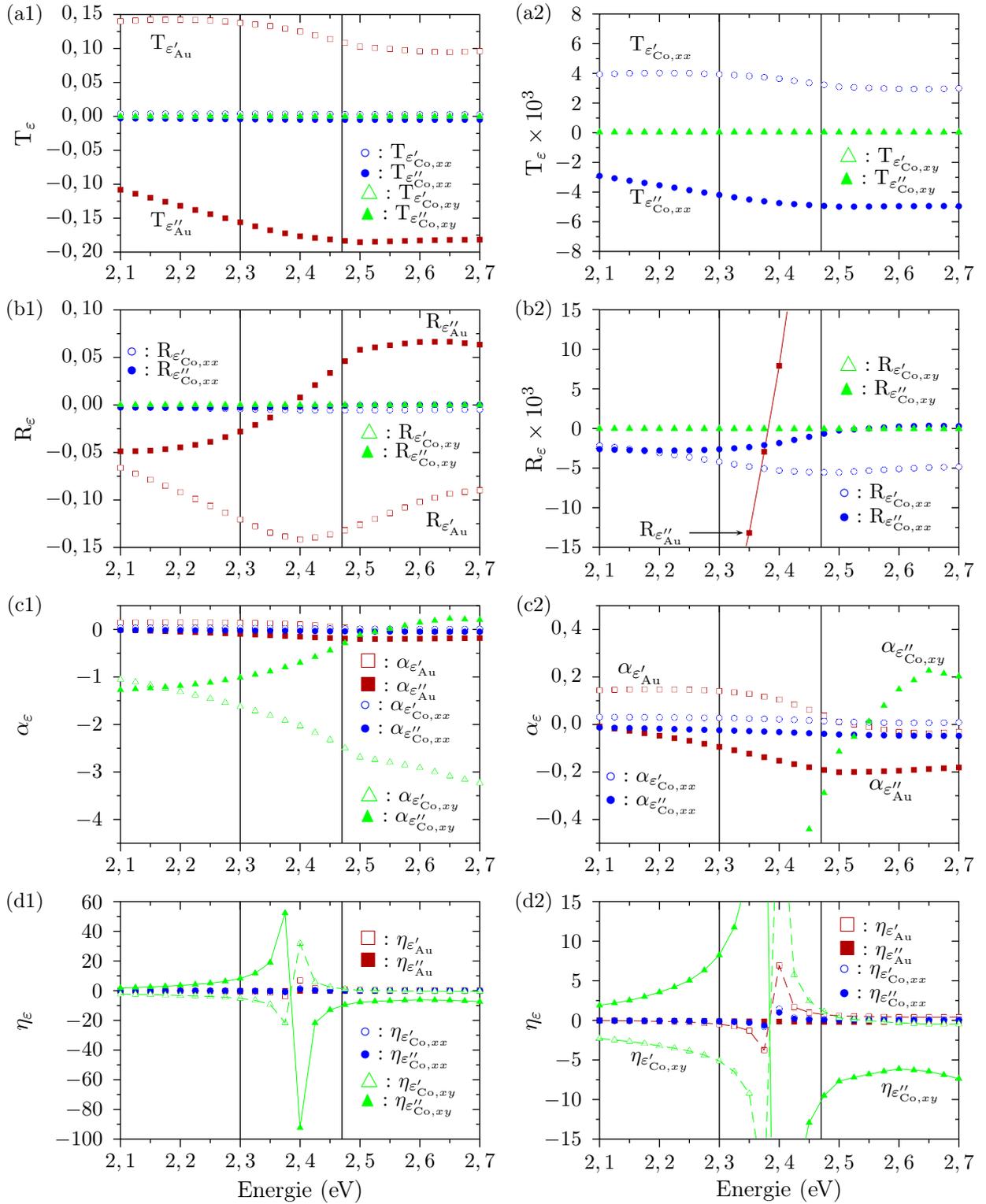


FIGURE 4.1: Dispersion des coefficients de proportionnalité de la matrice 4.1 qui relie les changements de transmission, de réflexion, de rotation Kerr et ellipticité Kerr aux changements de la constante diélectrique de l'or ϵ_{Au} et du tenseur diélectrique du cobalt $[\epsilon_{\text{Co}}]$. Les notations sont explicitées dans le texte.

bandes n'est pas modifiée par la pompe, mais que celle-ci induit une redistribution énergétique des électrons que l'on peut décrire par une fonction d'occupation $f(E, t)$ ou par son écart à la fonction d'équilibre qui est la distribution de Fermi-Dirac $f_0(E)$ de température T_0 . Un changement de la distribution électronique conduit à une modification de la constante diélectrique du matériau et par conséquent à une réponse optique différente.

Le lien entre la distribution électronique et la constante diélectrique du matériau est donné par la formule de Lindhard dont on rappelle l'expression (paragraphe 1.2.3) :

$$\varepsilon_{ij}(\omega) = \delta_{ij} + \frac{4e^2}{\pi\hbar m^2 \omega^2} \sum_{gn} \int_{BZ} \frac{\omega_{gn,\mathbf{k}} [f_{g,\mathbf{k}}(1 - f_{n,\mathbf{k}})] (|P_{gn,\mathbf{k}}^+|^2 \pm_{ij} |P_{gn,\mathbf{k}}^-|^2)}{\omega_{gn,\mathbf{k}}^2 - \omega^2 - 2i\omega\Gamma_{gn,\mathbf{k}}} d^3k, \quad (4.4)$$

où les indices g et n indexent les bandes d'énergie, g pour la bande de départ et n celle d'arrivée. Après relaxation des cohérences (quelques fs dans les métaux [96]), la formule de Lindhard se généralise au cas non-linéaire en incluant la dépendance temporelle des fonctions de distribution des électrons. L'amplitude de la variation de la constante diélectrique à l'énergie du photon de sonde ω_s va dépendre de l'action conjuguée des paramètres suivants :

- des variations des facteurs d'occupation.
- du principe d'exclusion de Fermi via les termes en $(1 - f_{n,\mathbf{k}})$ pour les états d'arrivée et $f_{g,\mathbf{k}}$ pour les états de départ.
- de la structure de bandes qui apparaît dans la relation de dispersion $\omega_{gn,\mathbf{k}}$.

Dans ce travail de thèse, les photons pompe ont une énergie de 1,55 eV. Les photons sonde ont une énergie comprise dans la plage spectrale [2,3 eV-2,47 eV], plage centrée autour du seuil des transitions interbandes de l'or. Il s'agit donc de déterminer l'origine des non-linéarités optiques de l'or et du cobalt dans ces conditions d'étude.

Estimation de la variation de la constante diélectrique de l'or

La figure 4.2 permet de modéliser les propriétés optiques non-linéaires de l'or. L'absorption de l'impulsion pompe est intrabande. Après relaxation très rapide (\sim fs) de la cohérence, ceci se traduit par une modification de la population des états électroniques au voisinage de l'énergie de Fermi E_F : le nombre d'occupation des états d'énergie inférieure au niveau de Fermi diminue et celui des états d'énergie supérieure augmente. Le changement du nombre d'occupation des états au voisinage du niveau de Fermi modifie la probabilité des transitions optiques interbandes et intrabandes. On peut négliger les modifications des transitions intrabandes par rapport à celles des transitions interbandes : les transitions intrabandes sont des processus optiques qui font intervenir trois corps (un photon, un phonon et un électron) et donc de poids négligeable face aux transitions interbandes où seuls deux corps interviennent (un photon et un électron) lorsque celles-ci sont possibles (ie $\hbar\omega > \hbar\Omega_{ib}$) [54]. Le spectre de l'absorption interbande est modifié : l'absorption des bandes d vers les états finals au dessous du niveau de Fermi augmente et celle vers des états finals au dessus du niveau de Fermi diminue. Ces modifications des transitions interbandes sont la contribution principale à la réponse non linéaire de l'or pour ω_s au voisinage du seuil ainsi qu'aux changements d'indices associés (Kramers-Krönig).

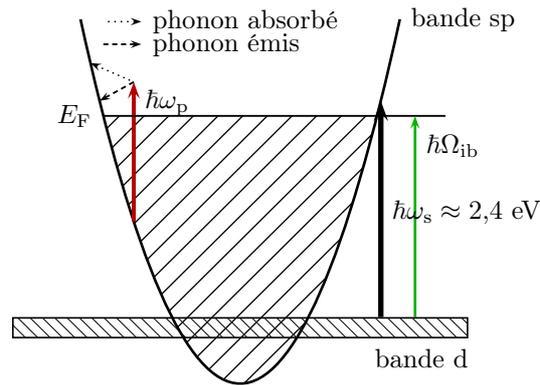


FIGURE 4.2: Structure de bandes schématique de l'or et transitions optiques impliquées dans la réponse non linéaire pour une énergie du photon de pompe égale à 1,55 eV et une énergie du photon de sonde de 2,4 eV. L'impulsion pompe infrarouge perturbe la surface de Fermi. L'impulsion sonde d'énergie voisine du seuil des transitions interbandes de l'or permet de suivre l'évolution de la relaxation la mer de Fermi. $\hbar\Omega_{ib}$ désigne le seuil des transitions interbandes.

Des résultats sont déjà connus sur l'évolution temporelle de la constante diélectrique de l'or pour des systèmes films d'or d'épaisseur environ 20 nm et étudiés dans les conditions décrites ci-dessus (excitation optique infrarouge et sonde au voisinage du seuil des transitions interbandes) [53, 54, 60, 61]. Les auteurs de ces références ont confronté leurs résultats expérimentaux à une modélisation de l'évolution de la distribution électronique au moyen d'une résolution numérique de l'équation de Boltzmann. Les changements de la constante diélectrique de l'or ont été calculés en utilisant un modèle de structure de bandes de l'or donné par Rosei et al. [97, 98] ou un modèle simplifié (bande de conduction parabolique isotrope et bande d non dispersée). Les simulations décrivent quantitativement les réponses optiques transitoires mesurées. La figure 4.3 extraite de [54] représente la dispersion des changements de constantes diélectriques ϵ'_{Au} et ϵ''_{Au} dans l'or calculés après une picoseconde pour un flux incident de $120 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ et une durée des impulsions de 20 fs. Les simulations montrent que les changements de la constante diélectrique de l'or sont fortement dispersés autour du seuil des transitions interbandes, conformément à la discussion qualitative précédente. Pour une énergie du photon de sonde supérieure de 1 eV à ce seuil, les changements de la constante diélectrique sont deux ordres de grandeur plus faibles que ceux autour du seuil des transitions interbandes.

En définitive, les propriétés optiques non-linéaires de l'or dans nos conditions d'étude (pompe infrarouge et sonde d'énergie au voisinage du seuil des transitions interbandes) ont pour origine une modification des transitions interbandes. Les changements de la constante diélectrique de l'or sont fortement dispersés en énergie et ont des amplitudes importantes autour du seuil des transitions interbandes. Dorénavant, l'expression « sonde en résonance » signifiera que l'énergie du photon de sonde est au voisinage du seuil des transitions interbandes.

Estimation de la variation du terme diagonal du tenseur diélectrique du cobalt

La figure 4.4 schématise la structure de bandes du cobalt. Contrairement à l'or, l'excitation optique par la pompe n'est pas sélective : l'absorption est à la fois inter et intrabande. Le

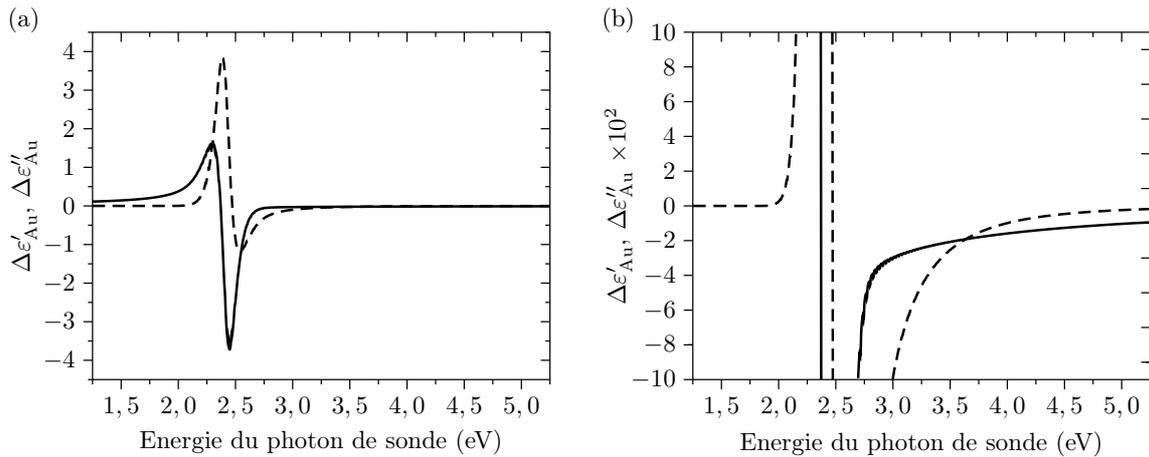


FIGURE 4.3: Figure extraite de [54] représentant les changements calculés après une picoseconde des constantes diélectriques réelle et imaginaire dans un film d'or pour un flux incident de $120 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ et une durée des impulsions de 20 fs. En (a) : le changement de la constante diélectrique réelle de l'or ϵ'_{Au} est représenté en trait plein. Le changement de la partie imaginaire ϵ''_{Au} est en pointillés. En (b) : agrandissement de (a) pour l'axe des ordonnées.

nombre d'électrons dans les bandes 3d n'est pas constant : l'excitation interbande des états électroniques de la bande 3d de spin majoritaires vers le niveau de Fermi crée des trous et il faut tenir compte des effets de recombinaison électrons/trous [99]. Les temps d'interaction électron-électron et de recombinaison électron-trou sont très rapides dans les métaux de transition de type ferromagnétique. Pour le cobalt et le nickel, on trouve que ce temps de relaxation est inférieur à 50 fs [68, 69]. Par rapport à notre résolution temporelle (en moyenne 400 fs), on peut considérer que la relaxation des électrons chauds est instantanée et que seuls les états électroniques proches de la surface de Fermi sont modifiés au-delà de la durée de l'impulsion pompe.

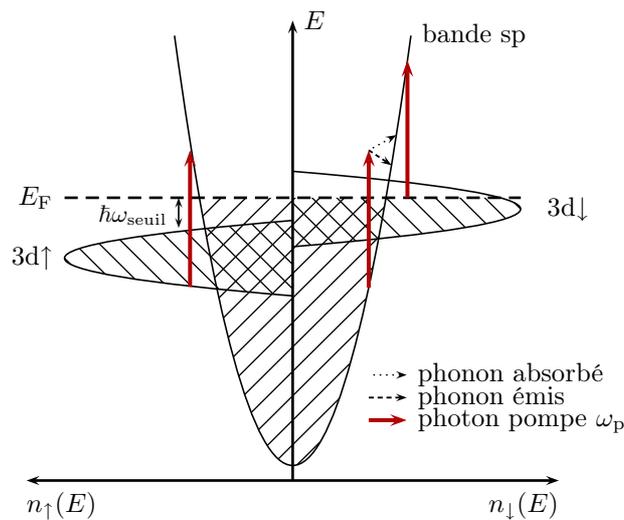


FIGURE 4.4: Schéma de la structure de bandes du cobalt : l'absorption de l'impulsion pompe (d'énergie 1,55 eV) est à la fois inter et intrabande. L'impulsion sonde d'énergie voisine de 2,4 eV est fortement décalée en énergie vers le bleu par rapport au seuil des transitions interbandes du cobalt $\omega_{\text{seuil}}=0,6$ eV.

La thermalisation électronique est suivie optiquement au moyen d'impulsions sonde d'énergie voisine de 2,4 eV. Contrairement à l'or où les impulsions sonde ont une énergie proche de la valeur du seuil des transitions interbandes, les impulsions sonde ont une énergie beaucoup plus élevée que le seuil des transitions interbandes du cobalt, seuil valant 0,6 eV [100]. Les effets optiques sont moins marqués car loin du seuil la densité d'états jointe est plus plate et donc les changements de nombre d'occupation ont des effets plus faibles. Les résultats connus sur l'or étudié dans des conditions « hors résonance » montrent que les variations de la constante diélectrique à des énergies de sonde décalées positivement en énergie de 1 eV par rapport au seuil des transitions interbandes sont en amplitude deux ordres de grandeur plus faibles que les variations obtenues à « résonance » (figure 4.3).

On peut donc en déduire dans le cas du cobalt que les variations de la constante diélectrique diagonale sont « faibles » et vraisemblablement nettement plus petites que celles de l'or.

Variation du terme non diagonal du tenseur diélectrique du cobalt

Dans la matrice 4.1, les coefficients $T_{\varepsilon'_{\text{Au}}}$ et $T_{\varepsilon''_{\text{Au}}}$ de la première ligne sont trois ordres de grandeur plus grands que les coefficients $T_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}}$ et $T_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}}$. Il en est de même pour les coefficients concernant sur la réflexion. Ainsi, si les variations du terme non diagonal du tenseur diélectrique du cobalt ne sont pas trois ordres de grandeurs plus élevées que celles de la constante diélectrique de l'or, on pourra négliger la contribution des variations de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ devant celle due aux variations de ε_{Au} dans les changements de la transmission et de la réflexion.

Dans ce travail de thèse, nous avons effectué des mesures en dynamique sur un film d'or mince de 30 nm (section 4.2). Avec une puissance de pompe moyenne de 30 mW et pour une énergie du photon de sonde de 2,47 eV, nous avons obtenu une variation relative de la constante diélectrique de l'or égale à environ 1 %. Dans les mêmes conditions optiques, il faudrait alors que la variation relative du coefficient non diagonal du cobalt $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ vaille :

$$\begin{aligned} \Delta\varepsilon_{\text{Co},xy} &\approx 1000 \times \frac{1}{100} \times \varepsilon_{\text{Au}}, \\ &\approx 20, \end{aligned} \tag{4.5}$$

soit une variation relative par rapport à la valeur statique $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ égale à environ 300. En se servant des coefficients de la matrice 4.1 (calculée à 2,47 eV), la variation relative $\Delta\alpha/\alpha_0$ de la rotation Kerr vaudrait 600. Expérimentalement, la variation relative de la rotation Kerr est beaucoup plus faible, inférieure à 1.

En définitive, les variations du terme non diagonal $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ du tenseur du cobalt ne peuvent pas être trois ordres de grandeur plus élevées que celles de la constante diélectrique de l'or.

4.1.4 Au/Co/Au : un système découplé

Revenons à l'analyse des relations entre les observables optiques (T , R , α et η) et les variations des constantes diélectriques :

- les coefficients $T_{\varepsilon'_{\text{Au}}}$ et $T_{\varepsilon''_{\text{Au}}}$ de la première ligne sont deux ordres de grandeur plus grands

que les coefficients $T_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}}$ et $T_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}}$ et au moins trois ordres de grandeurs plus grands que $T_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}}$ et $T_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}}$. Etant données les estimations des variations du tenseur diélectrique du cobalt (paragraphes 4.1.3 et 4.1.3), on peut donc considérer que le changement relatif de la transmission est donné par les variations de ε_{Au} :

$$\begin{cases} \frac{\Delta T}{T_0} = T_{\varepsilon'_{\text{Au}}} \Delta\varepsilon'_{\text{Au}} + T_{\varepsilon''_{\text{Au}}} \Delta\varepsilon''_{\text{Au}}, \\ \frac{\Delta R}{R_0} = R_{\varepsilon'_{\text{Au}}} \Delta\varepsilon'_{\text{Au}} + R_{\varepsilon''_{\text{Au}}} \Delta\varepsilon''_{\text{Au}}. \end{cases} \quad (4.6)$$

On rappelle les deux origines physiques de ce résultat :

- l'énergie du photon de sonde est choisie au voisinage du seuil des transitions interbandes de l'or.
- en terme de quantité de matière, il y a un rapport 1 à 30 entre le cobalt et l'or dans le système multicouches.
- en ce qui concerne les observables magnéto-optiques α et η , les commentaires sont identiques. Les coefficients $\alpha_{\varepsilon'_{\text{Au}}}$, $\alpha_{\varepsilon''_{\text{Au}}}$, $\alpha_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}}$ et $\alpha_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}}$ sont du même ordre de grandeur et un ordre de grandeur plus petit que $\alpha_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}}$ et $\alpha_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}}$. On peut négliger les variations $\Delta\varepsilon_{\text{Co},xx} = \Delta\varepsilon'_{\text{Co},xx} + i\Delta\varepsilon''_{\text{Co},xx}$ du terme diagonal complexe du cobalt par rapport à celles $\Delta\varepsilon_{\text{Au}} = \Delta\varepsilon'_{\text{Au}} + i\Delta\varepsilon''_{\text{Au}}$ de la constante diélectrique complexe de l'or (paragraphe 4.1.3). Le changement relatif de la rotation Kerr ne va donc dépendre que de quatre termes diélectriques :

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha_0} = \alpha_{\varepsilon'_{\text{Au}}} \Delta\varepsilon'_{\text{Au}} + \alpha_{\varepsilon''_{\text{Au}}} \Delta\varepsilon''_{\text{Au}} + \alpha_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} \Delta\varepsilon'_{\text{Co},xy} + \alpha_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} \Delta\varepsilon''_{\text{Co},xy}. \quad (4.7)$$

L'expression 4.1 prend donc la forme simplifiée suivante :

$$\begin{pmatrix} \frac{\Delta T}{T_0} \\ \frac{\Delta R}{R_0} \\ \frac{\Delta\alpha}{\alpha_0} \\ \frac{\Delta\eta}{\eta_0} \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} T_{\varepsilon'_{\text{Au}}} & T_{\varepsilon''_{\text{Au}}} & 0 & 0 \\ R_{\varepsilon'_{\text{Au}}} & R_{\varepsilon''_{\text{Au}}} & 0 & 0 \\ \alpha_{\varepsilon'_{\text{Au}}} & \alpha_{\varepsilon''_{\text{Au}}} & \alpha_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} & \alpha_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} \\ \eta_{\varepsilon'_{\text{Au}}} & \eta_{\varepsilon''_{\text{Au}}} & \eta_{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} & \eta_{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \Delta\varepsilon'_{\text{Au}} \\ \Delta\varepsilon''_{\text{Au}} \\ \Delta\varepsilon'_{\text{Co},xy} \\ \Delta\varepsilon''_{\text{Co},xy} \end{pmatrix}. \quad (4.8)$$

Le système Au/Co/Au agit donc comme si les variations du terme diagonal $\varepsilon_{\text{Co},xx}$ du tenseur du cobalt étaient négligeables. Les changements relatifs de transmission et de réflexion dépendent uniquement de la réponse optique non-linéaire de l'or. Nous verrons à partir des mesures expérimentales que les changements relatifs de rotation et ellipticité Kerr sont dominés par les variations du terme non diagonal $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ du tenseur diélectrique du cobalt². Le système Au/Co/Au

²la détermination empirique des variations des constantes diélectriques (paragraphe 4.3.2) montrera que les variations de ε_{Au} ont une contribution faible aux variations de la rotation Kerr complexe par rapport à la contribution des variations de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$.

peut être considéré comme un matériau hybride découplé :

- les variations relatives de la transmission et de la réflexion dépendent seulement des propriétés optiques non linéaires de l'or.
- les variations relatives de la rotation Kerr et de l'ellipticité Kerr dépendent principalement du terme non diagonal $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ du cobalt.

4.1.5 Deuxième alternative : utilisation d'un film mince d'or

Pour conclure cette section, revenons sur la deuxième alternative proposée pour remonter aux variations des constantes diélectriques des différents matériaux. Il s'agit d'étudier en dynamique la réponse optique d'un film mince composé uniquement d'or. Des mesures pompe-sonde en transmission et en réflexion sur ce film d'or permettent de remonter aux variations de la constante diélectrique complexe de l'or ε_{Au} . Les variations $\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}$ et $\Delta\varepsilon''_{\text{Au}}$ étant connues, le système 4.1 devient soluble. Cette solution comparée à la première a le mérite d'être applicable quelles que soient les conditions optiques d'excitation et de sondage et ne nécessite pas d'approximations sur les ordres de grandeur des différents termes.

Cette méthode présente cependant plusieurs écueils :

- elle suppose que la dynamique de l'or soit la même dans le film d'or et dans le système Au/Co/Au. Cette hypothèse doit être vérifiée et nous allons voir dans la section suivante qu'elle est fautive : la couche ultramince de cobalt modifie la dynamique de relaxation de l'or.
- il faut déterminer quelle puissance de pompe utiliser pour les mesures pompe-sonde sur le film d'or. Cette puissance de pompe est fonction de celle utilisée sur le système Au/Co/Au pour obtenir une densité d'excitation équivalente. Comme il s'agit d'une sommation en valeurs absolues, la connaissance précise de cette densité d'excitation est requise, ce qui n'est pas une chose aisée : par exemple, une faible erreur de précision sur le diamètre de la tache focale entraînerait des artefacts expérimentaux importants.
- les coefficients $T_{\varepsilon'_{\text{Co},xx}}$ et $T_{\varepsilon''_{\text{Co},xx}}$ de 4.1 sont deux ordres de grandeur plus petits que les coefficients $T_{\varepsilon'_{\text{Au}}}$ et $T_{\varepsilon''_{\text{Au}}}$. Comme la variation du terme $\varepsilon_{\text{Co},xx}$ du cobalt est faible par rapport à celle de l'or ε_{Au} (paragraphe 4.1.3), la contribution des variations de $\varepsilon_{\text{Co},xx}$ est au moins trois ordres de grandeur plus petits que celle des variations de ε_{Au} . Pour extraire $\Delta\varepsilon_{\text{Co},xx}$, il faudrait donc faire des mesures très précises (à mieux que 1 pour mille) pour pouvoir retrancher « proprement » la contribution de l'or et extraire les variations de $\varepsilon_{\text{Co},xx}$ au-delà du niveau de bruit. Une faible erreur sur l'estimation de $\Delta\varepsilon_{\text{Au}}$ conduirait à attribuer une valeur artificiellement élevée à $\Delta\varepsilon_{\text{Co},xx}$.
- la structure cristalline de l'or dans le film et celle de l'échantillon magnétique ne sont pas exactement les mêmes, d'où des propriétés optiques différentes.

En conclusion, la deuxième alternative proposée pour remonter aux variations des constantes diélectriques des différents matériaux est impossible à mettre en œuvre.

4.2 Etude de la dynamique du gaz électronique dans le système Au/Co/Au

Dans la précédente section, nous avons vu que les changements de transmission et de réflexion induits par la pompe dépendent uniquement des propriétés optiques non linéaires de l'or. Afin d'étudier l'influence de la couche mince du cobalt sur ces propriétés, nous allons comparer les mesures pompe-sonde en transmission et en réflexion sur le système multicouches aux mêmes mesures faites sur un film d'or. Ce film d'or a été réalisé au laboratoire par évaporation sous vide. Son épaisseur est de $30 \text{ nm} \pm 1 \text{ nm}$, soit une épaisseur d'or équivalente à celle contenue dans le système multicouches Au/Co/Au. Les mesures pompe-sonde sur ce film d'or ont été réalisées dans l'entrefer de l'électroaimant sous champ nul en remplaçant l'échantillon magnétique par le film d'or afin d'être dans les mêmes conditions de focalisation pour la pompe et la sonde.

Cette section comporte trois parties. Nous commençons par décrire la mise hors d'équilibre du gaz d'électrons dans la structure multicouches Au/Co/Au : nous estimons l'énergie laser injectée dans le gaz d'électrons en terme de température équivalente d'excitation pour le gaz d'électrons, puis nous évaluons l'élévation finale de température du réseau (hors effets de diffusion). Nous détaillons alors l'influence du cobalt sur la dynamique de thermalisation du gaz électronique : la thermalisation interne (interactions électrons-électrons) et la thermalisation externe (interactions électrons-phonons).

4.2.1 Mise hors équilibre du gaz d'électrons

Les photons de pompe ont une énergie de 1,55 eV. A cette énergie, la longueur d'absorption de l'or vaut environ 15 nm, celle du cobalt 5 nm. L'excitation est a priori inhomogène dans l'épaisseur d'or (le film d'or sur lequel le cobalt est déposé a une épaisseur de 28 nm). Dans la limite des faibles épaisseurs, l'énergie déposée dans un film métallique est proportionnelle à la divergence du vecteur de Poynting \mathbf{R} multipliée par l'épaisseur e du film. Pour le cobalt :

$$(\nabla \cdot \mathbf{R}_{\text{Co}})e_{\text{Co}} \propto \varepsilon''_{\text{Co},xx} e_{\text{Co}} \approx 80,$$

Pour l'or :

$$(\nabla \cdot \mathbf{R}_{\text{Au}})e_{\text{Au}} \propto \varepsilon''_{\text{Au}} e_{\text{Au}} \approx 100.$$

L'énergie déposée dans le film ultramince (1,02 nm) de cobalt est presque égale à celle déposée dans le film plus épais d'or de 30 nm. En définitive, l'excitation paraît non seulement inhomogène dans le film d'or mais surtout localisée dans le cobalt. Ces deux effets sont en réalité faibles car il faut tenir compte du libre parcours moyen des électrons. Dans l'or, ce libre parcours est de 30 nm et dans le cobalt de 5 nm, c'est-à-dire supérieur ou égal à l'épaisseur des couches : les électrons sont délocalisés. Le temps caractéristique de redistribution spatiale des électrons se fait de la façon suivante : les électrons excités (et dans l'or et dans le cobalt) se propagent essentiellement en régime balistique en des temps de l'ordre de L/v_F , où L est l'épaisseur de la couche et v_F est la vitesse de Fermi [101]. Dans la couche de cobalt, ce temps de propagation a pour ordre de grandeur 10 fs. Il est du même ordre pour la couche d'or de 28 nm. Les électrons chauds

excités dans le cobalt se propagent en régime balistique et environ 10 fs après l'excitation ils ont déjà quitté la couche de cobalt. Leur temps de propagation dans le film d'or est également de 10 fs. Ainsi, après quelques dizaines de fs, les électrons sont de retour dans la couche de cobalt. On trouve les mêmes durées caractéristiques pour les électrons excités optiquement dans l'or. Le temps de diffusion de l'excès d'énergie dans le système est donc un ordre de grandeur plus petit que la durée des impulsions pompe utilisées (≈ 250 fs). En définitive, l'excitation dans le système multicouches peut être considérée comme homogène selon la direction de propagation de la pompe avec un gaz d'électrons chauds délocalisés.

Pour connaître le régime de perturbation dans lequel nous travaillons, nous allons estimer l'amplitude de l'excitation et traduire l'apport d'énergie au système en terme de température équivalente d'excitation T_{exc} .

La densité d'énergie volumique fournie au gaz électronique vaut :

$$u_{\text{abs}} = A \frac{4P_p}{f_{\text{rép}} \pi \phi^2 L}, \quad (4.9)$$

avec A l'absorption de la structure multicouches Au/Co/Au à la longueur d'onde de pompe. P_p est la puissance de pompe moyenne. On divise P_p par le taux de répétition du laser $f_{\text{rép}}$ pour remonter à l'énergie de chaque impulsion. ϕ est le diamètre de la tache focale de l'impulsion pompe et L l'épaisseur du système multicouches.

Bien que la distribution électronique soit dans un premier temps fortement athermale, nous décrivons l'excitation du gaz électronique par une température équivalente d'excitation T_{exc} . On définit cette température comme celle qu'aurait un gaz d'électrons thermalisé ayant absorbé la même quantité d'énergie (paragraphe 1.3.1). En notant la capacité calorifique du gaz d'électrons c_e . T_{exc} s'écrit :

$$u_{\text{abs}} = \int_{T_0}^{T_{\text{exc}}} c_e(T) dT. \quad (4.10)$$

c_e s'exprime en fonction des capacités calorifiques électroniques de l'or $c_{e,\text{Au}}$ et du cobalt $c_{e,\text{Co}}$:

$$c_e = \frac{t_{\text{Co}} c_{e,\text{Co}} + t_{\text{Au}} c_{e,\text{Au}}}{t_{\text{Co}} + t_{\text{Au}}}, \quad (4.11)$$

où t_{Co} et t_{Au} sont les épaisseurs des couches de cobalt et d'or dans le système multicouches. La capacité électronique d'un métal c_e dépend de la température [55] :

$$c_e = \frac{\pi^2}{2} k_B n_c \frac{T_e}{T_F} = c_0 T_e, \quad (4.12)$$

où n_c est la densité d'électrons de conduction du métal considéré et T_F sa température de Fermi. La capacité électronique du système multicouches s'exprime donc en fonction de la température électronique T_e :

$$c_e = c_0 T_e, \quad (4.13)$$

où :

$$c_0 = \frac{t_{\text{Co}} c_{0,\text{Co}} + t_{\text{Au}} c_{0,\text{Au}}}{t_{\text{Co}} + t_{\text{Au}}}. \quad (4.14)$$

T_{exc} peut être exprimée en fonction de l'apport d'énergie au système u_{abs} :

$$T_{\text{exc}} = \left(T_0^2 + \frac{2u_{\text{abs}}}{c_0} \right)^{1/2}. \quad (4.15)$$

Nous donnons dans le tableau 4.1 les valeurs typiques des paramètres expérimentaux propres à notre dispositif expérimental. On obtient alors :

Paramètres physiques	Symbole	Valeur
Puissance moyenne de pompe	P_p	30 mW
Fréquence de répétition du laser	$f_{\text{rép}}$	250 kHz
Diamètre de la tache focale	ϕ	$50 \pm 2 \mu\text{m}$
Épaisseur d'or dans le système multicouches	t_{Au}	29,2 nm
Épaisseur moyenne de cobalt dans le système multicouches	t_{Co}	6 PA \approx 1,22 nm
Absorption du système Au/Co/Au à l'énergie de pompe	A	$\approx 7 \pm 1 \%$
Coefficient de proportionnalité entre la capacité calorifique du gaz d'électrons d'or et sa température [55]	$c_{0,\text{Au}}$	$65 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-2}$
Coefficient de proportionnalité entre la capacité calorifique du gaz d'électrons de cobalt et sa température [102]	$c_{0,\text{Co}}$	$880 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-2}$

TABLEAU 4.1: Valeurs typiques des paramètres dans nos expériences pompe-sonde. Le diamètre de la tache focale a été mesuré en coupant le faisceau de pompe dans la zone focale au moyen d'une lame de rasoir montée sur un déplacement micrométrique. L'absorption du système multicouches a été mesurée en négligeant la diffusion ($A=1-R-T$) et est en accord avec la valeur calculée avec le formalisme de Yeh. Les coefficients $c_{0,\text{Au}}$ et $c_{0,\text{Co}}$ sont des valeurs tabulées, voir les références [55, 102].

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Flux d'énergie (énergie/surface) } F \approx 6 \pm 0,5 \text{ mJ/cm}^2 \\ \text{Densité d'énergie absorbée volumique } u_{\text{abs}} \approx 140 \pm 30 \text{ J/cm}^3 \\ \text{Température équivalente d'excitation } T_{\text{exc}} \approx 1710 \pm 200 \text{ K} \\ \text{Élévation de température électronique } \Delta T_e \approx 1400 \pm 200 \text{ K} \end{array} \right. . \quad (4.16)$$

Les erreurs commises sur ces quatre grandeurs proviennent principalement de l'incertitude de la mesure de ϕ , le diamètre de la tache focale.

L'élévation de température électronique est de $1420 \pm 200 \text{ K}$, négligeable devant la température de Fermi ($\approx 65 \times 10^3 \text{ K}$). La perturbation reste faible. Les collisions entre électrons et

les phonons assurent la thermalisation entre le gaz électronique et le réseau. Ceci conduit à une élévation de la température globale du système T_L :

$$T_L - T_0 = \frac{u_{\text{abs}}}{c_e + c_L}. \quad (4.17)$$

c_L est la capacité calorifique du réseau :

$$c_L = \frac{t_{\text{Co}}c_{L,\text{Co}} + t_{\text{Au}}c_{L,\text{Au}}}{t_{\text{Co}} + t_{\text{Au}}}. \quad (4.18)$$

Pour des températures supérieures à la température de Debye, c_L est donné par la loi de Dulong-Petit [55] : $c_L = 3k_B n_i$ où n_i est la densité volumique d'ions. Pour l'or, la température de Debye vaut 165 K [103] et $c_{L,\text{Au}} \approx 2 \times 10^6 \text{ J/m}^3\text{K}$, soit deux ordres de grandeur plus grands que la capacité calorifique électronique à température ambiante. Pour le cobalt, la température de Debye vaut 445 K [103] et appartient à la plage des températures électroniques de nos expériences [293 K-1420 K]. Les auteurs de [104] ont montré que la capacité calorifique du réseau pour le cobalt est constante à 6 % près dans la plage de températures considérée, $c_{L,\text{Co}} \approx 2 \times 10^7 \text{ J/m}^3\text{K}$. L'élévation finale de température vaut environ $14 \pm 2 \text{ K}$.

L'élévation de température finale est faible devant la température de Fermi et devant la température ambiante. Les signaux pompe-sonde sont nuls aux retards temporels négatifs, ce qui prouve qu'à l'échelle du temps du hacheur mécanique, on atteint un régime stationnaire en température avec une élévation résiduelle de température très faible. La diffusion de la chaleur hors de la région excitée est suffisamment efficace pour éviter des effets cumulatifs entre impulsions pompe.

4.2.2 Rôle du cobalt dans la thermalisation interne du gaz d'électrons

Résultats connus pour un film d'or

Pour les retards temporels pompe-sonde courts ($\tau \leq 1 \text{ ps}$), Sun et al. [60,61] ont montré que l'évolution transitoire de la réponse optique (transmission et réflexion) d'un film d'or doit tenir compte du caractère athermal de la distribution électronique. Une description de la relaxation du système au moyen de deux populations (électrons et réseau) instantanément thermalisées ne permet pas d'interpréter l'évolution temporelle des mesures pompe-sonde. Le gaz d'électrons est constitué d'électrons thermalisés (la mer de Fermi) et d'électrons « chauds » en faible nombre et répartis sur une large gamme d'énergie.

D'un point de vue microscopique, la thermalisation interne du gaz d'électrons ($\tau_{e-e} \approx 500 \text{ fs}$) prend en compte deux effets :

- l'écrantage des interactions coulombiennes entre les électrons par une réorganisation spatiale des charges.
- le nombre d'états finals disponibles (principe d'exclusion de Pauli) pour les processus de collision.

Le temps de thermalisation interne τ_{e-e} est un temps moyen qui est dominé par la dynamique de relaxation des états électroniques les plus proches du niveau de Fermi. La thermalisation est

très rapide pour les électrons très chauds et ralentie considérablement pour les états proches du niveau de Fermi du fait de la réduction des états finals disponibles pour les processus de relaxation. Il a été prouvé expérimentalement et théoriquement que la dépendance du temps de thermalisation interne en fonction de l'énergie de l'état électronique suit la loi [53, 56, 59] :

$$\tau_{e-e}(E) \propto \frac{1}{(E - E_F)^2}. \quad (4.19)$$

L'or a un temps de thermalisation interne lent ($\tau_{e-e} \approx 500$ fs) par rapport aux métaux de transition tels que le nickel et le cobalt ($\tau_{e-e} \approx 50$ fs) du fait d'un nombre d'états finals plus restreint (pas de bandes d) et qui se réduit au cours de la dynamique de relaxation.

D'un point de vue expérimental, l'injection intrabande d'énergie dans le gaz électronique modifie la surface de Fermi et induit des changements dans le spectre de l'absorption interbande qui est très sensible au nombre d'occupation des états électroniques au niveau de Fermi. On peut noter trois signatures différentes de cette distribution athermale d'électrons :

- la montée « lente » du changement de la réponse optique du film d'or (en transmission et en réflexion) par rapport au cas d'un gaz d'électrons qui se thermaliserait instantanément [60].
- l'amplitude et le signe des signaux à certaines longueurs d'onde [61].
- le changement de signe dans l'évolution temporelle de la réponse optique à certaines longueurs d'onde [61].

Accélération de la dynamique électronique dans le système or/cobalt

Les changements transitoires relatifs en transmission et réflexion du système multicouches Au/Co(4 PA)/Au et du film d'or dans la plage spectrale [2,3 eV-2,47 eV] sont représentés sur les dix figures 4.5 et 4.6. Chaque figure représente l'évolution temporelle aux temps courts ($\tau \leq 2$ ps) d'une des deux grandeurs optiques : transmission (à gauche) ou réflexion (à droite) du système multicouches Au/Co/Au et du film d'or à énergie de photon de sonde ω_s donnée.

L'évolution temporelle aux temps courts ($\tau \leq 2$ ps) des grandeurs optiques du film d'or et du système multicouches suscite plusieurs commentaires :

- pour le film d'or seul, les résultats sont similaires à ceux obtenus par Sun et al. [61] : on retrouve qualitativement la même évolution spectrale des changements de réflexion et de transmission. On constate le comportement particulier du changement de réflexion avec l'énergie du photon de sonde. A 2,47 eV, $\Delta R/R_0$ est positif au cours du temps et à 2,3 eV, il est négatif. On constate que l'amplitude maximale du changement relatif de réflexion change de signe entre 2,34 eV et 2,38 eV (le maximum est encore positif à 2,38 eV et devient négatif à 2,34 eV). De plus à ces deux énergies du photon de sonde, l'évolution temporelle de $\Delta R/R_0$ présente un changement de signe : ceci provient de la thermalisation non instantanée de la distribution électronique et peut être simulé en prenant en compte l'existence d'une population non thermalisée.
- l'évolution spectrale des signaux est qualitativement la même pour le système multicouches que pour le film d'or. On constate que le changement de réflexion change de signe pour le système multicouches, tout comme pour le film d'or. Il y a tout de même une différence

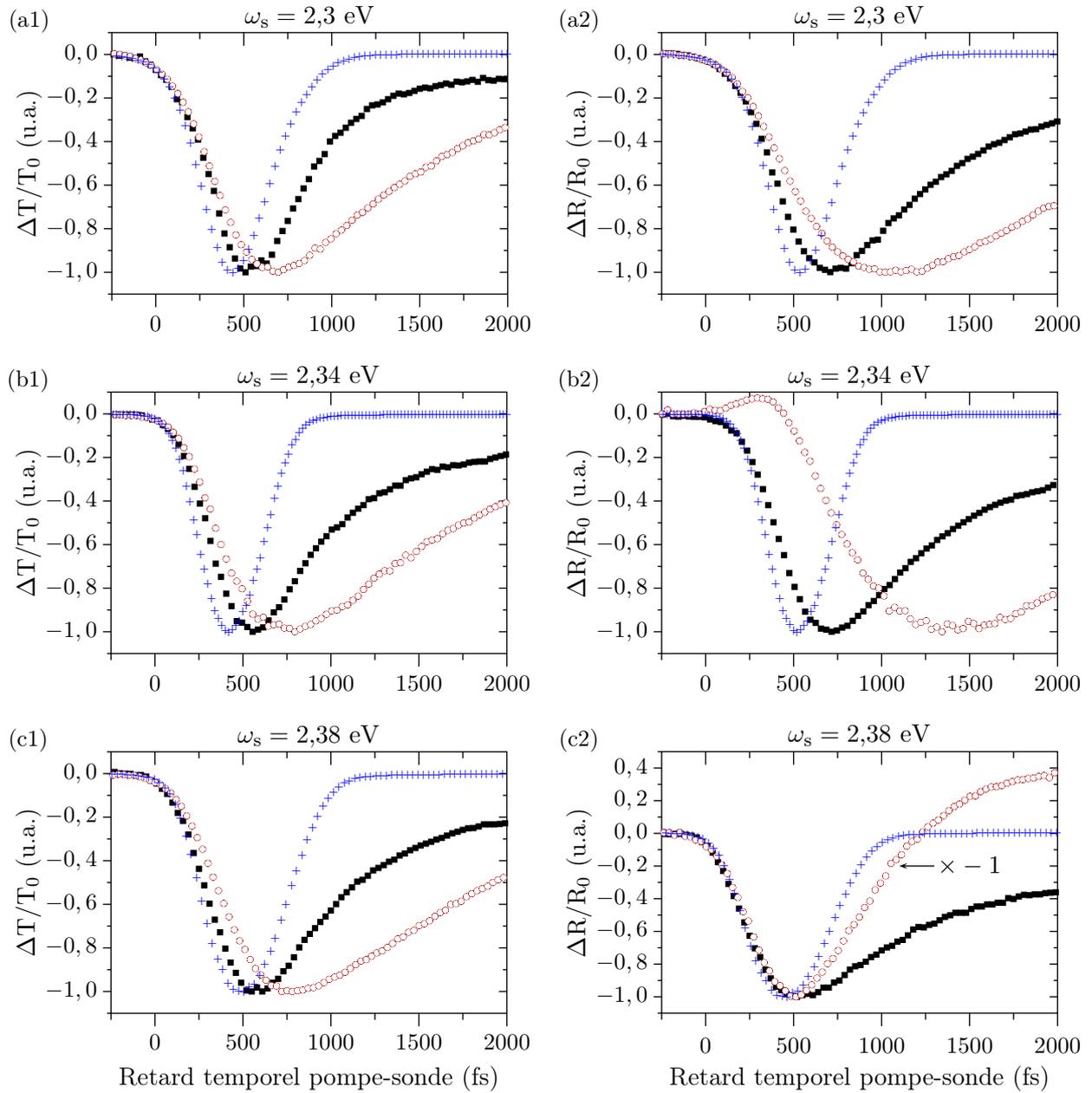


FIGURE 4.5: *Etude spectrale des changements de transmission et de réflexion (première partie)*. Les carrés représentent l'évolution temporelle de la réponse optique du système multicouches, les cercles l'évolution de la réponse optique du film d'or et les + la corrélation croisée pompe-sonde. Comme les densités d'énergie ne sont pas identiques entre les mesures sur le film d'or et sur le système multicouches, les signaux sont normalisés. ω_s est l'énergie du faisceau de sonde.

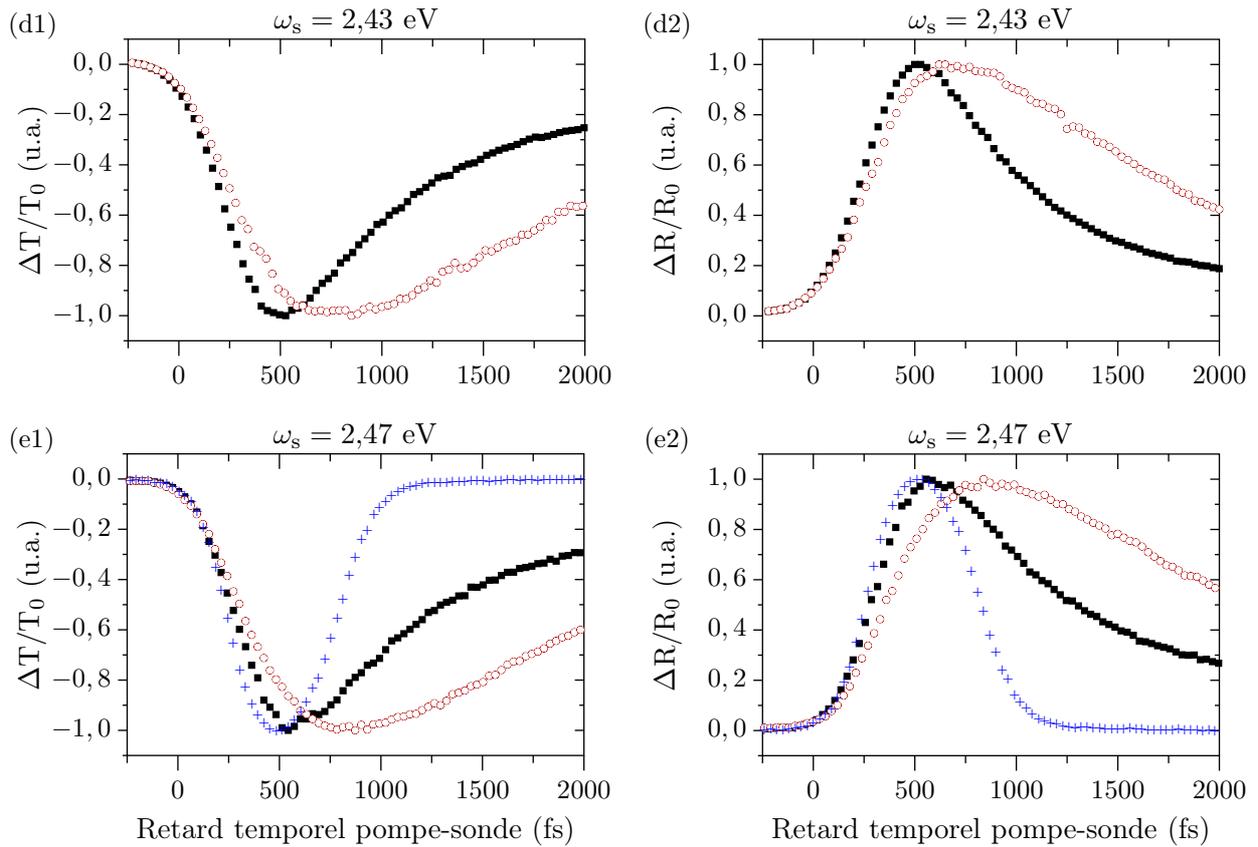


FIGURE 4.6: *Etude spectrale des changements de transmission et de réflexion (seconde partie). Les carrés représentent l'évolution temporelle de la réponse optique du système multicouches, les cercles l'évolution de la réponse optique du film d'or et les + la corrélation croisée pompe-sonde. Comme les densités d'énergie ne sont pas identiques entre les mesures sur le film d'or et sur le système multilayers, les signaux sont normalisés. ω_s est l'énergie du faisceau de sonde.*

notable : le basculement de signe pour le système multicouches est net entre 2,38 eV et 2,43 eV, les évolutions temporelles des signaux ne sont jamais bipolaires comme pour l'or. Ceci signifie que la distribution d'électrons chauds a un poids négligeable dans les signaux et donc, pour une même densité d'excitation, que le temps de thermalisation des électrons chauds est plus rapide dans le système multicouches.

- les temps de montée des signaux sont plus rapides dans le système multicouches que dans le film d'or : la couche de cobalt influe donc sur le temps de thermalisation de la mer de Fermi.

L'accélération de la thermalisation interne du gaz électronique par rapport au cas du film d'or peut s'interpréter microscopiquement. Le temps d'interaction électrons-électrons τ_{e-e} dépend des types de processus de diffusion entre électrons et du remplissage des états électroniques disponibles via le principe d'exclusion de Pauli (paragraphe 1.3.1). Le cobalt par sa structure de bandes peut améliorer l'efficacité des collisions entre électrons de deux manières :

- les électrons d du cobalt au niveau de Fermi ont une masse effective importante et sont donc très peu mobiles. Ces électrons d jouent le rôle de centres diffuseurs pour les électrons chauds ce qui leur offre un mécanisme de relaxation supplémentaire.
- le cobalt par sa structure de bandes possède une grande densité d'états libres au niveau de Fermi (figure 4.4). Le nombre d'états finals est accru dans le système multicouches par rapport au film d'or, l'espace des états disponibles dans lesquels les électrons chauds peuvent diffuser est plus grand.

En définitive, la couche mince de cobalt permet d'améliorer l'efficacité des collisions entre électrons, la thermalisation interne du gaz électronique est plus rapide dans le système multicouches.

Détermination du temps d'interaction τ_{e-e}

La réponse optique³ du système peut être décrite par l'expression [54, 61] :

$$\text{Rép}(t) = H(t) \{A[1 - \exp(-t/\tau_{e-e})] \times \exp(-t/\tau_p) + B(1 - \exp(-t/\tau_p))\}, \quad (4.20)$$

où $H(t)$ est la fonction de Heaviside. L'expression ne prend pas en compte le temps de thermalisation des électrons chauds. τ_{e-e} est le temps de thermalisation de la mer de Fermi et τ_p le temps de relaxation électrons-réseau. A est le poids de la distribution d'électrons thermalisés dans la réponse optique du système. B permet de tenir compte de l'élévation finale de température de l'ensemble électrons-phonons avant diffusions thermiques latérale et longitudinale. Le signal mesuré (variation relative de T ou R) est le produit de convolution de la réponse $\text{Rép}(t)$ du système avec la corrélation croisée pompe-sonde $\text{Corr}(\tau)$ (paragraphe 3.2.1 et expression 3.2) :

$$\text{signal}(\tau) = (\text{Rép} \star \text{Corr})(\tau). \quad (4.21)$$

La figure 4.7 montre l'ajustement du graphe expérimental $\Delta R/R_0$ par la convolution de

³indifféremment T, R, ε'_{Au} ou $\varepsilon''_{\text{Au}}$.

Rép(t) avec la corrélation croisée pompe-sonde à une énergie du photon de sonde égale à 2,47 eV. Les paramètres d'ajustement du graphe expérimental ont pour valeurs $\tau_{e-e} = 490$ fs et

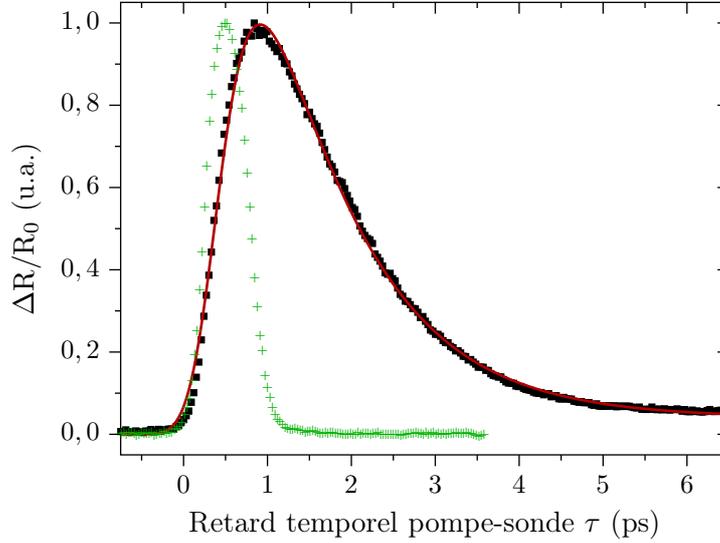


FIGURE 4.7: Détermination du temps de thermalisation des électrons thermalisés dans un film d'or. L'énergie du photon de sonde vaut 2,47 eV. Les carrés représentent le changement de réflexion $\Delta R/R_0$ normalisé, l'ajustement de la courbe par la convolution de la fonction réponse Rép(t) et la corrélation croisée pompe-sonde est en trait plein. La corrélation croisée pompe-sonde est en +.

$\tau_p = 1,1$ ps. Ces paramètres d'ajustement conviennent également pour le graphe expérimental $\Delta T/T_0$ et donc pour $\Delta \varepsilon'_{Au}/\varepsilon'_{Au}$ et $\Delta \varepsilon''_{Au}/\varepsilon''_{Au}$ qui sont des combinaisons linéaires de $\Delta T/T_0$ et $\Delta R/R_0$. Les temps de thermalisation trouvés pour le film d'or correspondent à ceux trouvés dans la littérature [53, 54, 61].

La corrélation croisée pompe-sonde et la montée des signaux ($\Delta T/T_0$ et $\Delta R/R_0$) pour le système multicouches se font sur des échelles de temps comparables (figures 4.5 et 4.6). Il est difficile d'extraire un temps de montée correctement pour une telle durée des impulsions : nous trouvons $\tau_{e-e} \leq 100$ fs. L'incertitude entachant cette valeur ne permet pas de quantifier le rôle de l'épaisseur de la couche de cobalt sur la thermalisation interne.

4.2.3 Rôle du cobalt dans la thermalisation externe du gaz d'électrons

Les collisions électrons-électrons conduisent à la thermalisation interne du gaz électronique. L'équilibre thermique avec le réseau n'est pas encore abouti. Ce sont les collisions entre électrons et phonons qui assurent la thermalisation de l'ensemble électrons-réseau à une température commune T_L . Dans ce paragraphe, nous étudions l'influence de la couche mince de cobalt dans la relaxation électrons-réseau du système multicouches.

Conditions d'étude : mesures en résonance

L'énergie du photon de sonde est au voisinage du seuil des transitions interbandes de l'or. La montée des signaux (changements de transmission et de réflexion) doit prendre en compte la thermalisation interne du gaz électronique, thermalisation atteinte au bout d'une picoseconde

pour le film d'or ([53, 61]) et environ de 100 fs pour la multicouche. Ainsi, les échanges énergétiques avec le réseau ont lieu conjointement avec la thermalisation interne du gaz aux temps courts et apparaissent distinctement uniquement aux retards plus grands que la picoseconde pour le film d'or. Il est donc nécessaire de parvenir à un bon rapport signal à bruit aux temps longs pour étudier la dynamique de relaxation électrons-phonons.

Les auteurs des références [53, 54] ont montré que les transferts d'énergie entre les électrons et le réseau peuvent être étudiés sélectivement en sondant le système hors-résonance. Dans de telles conditions de sondage, les changements de la partie réelle $\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}(\omega_s)$ est proportionnelle à l'excès d'énergie total Δu_e stocké dans le gaz d'électrons. Ainsi, les changements de la constante diélectrique ε'_{Au} sont indépendants de la distribution électronique et permettent de remonter à la dynamique moyenne d'interaction électrons-phonons.

Nous n'avons pas effectué de mesures pompe-sonde avec une énergie de photon de sonde hors-résonance. Nous n'avons pas le temps de modifier les chemins optiques pour une configuration dégénérée pompe-sonde (infrarouge-infrarouge) et les impulsions de l'OPA aux faibles énergies du photon signal nécessitent d'être comprimées. Dans ce qui suit, nous discutons principalement les résultats obtenus pour une énergie du photon de sonde à 2,3 eV en nous plaçant aux temps « longs » (après une picoseconde). Nous verrons que la phénoménologie est indépendante de l'énergie du photon de sonde, ce qui valide le principe de la mesure pour des retards supérieurs à une picoseconde.

Détermination du taux de relaxation électrons-phonons

Le temps de thermalisation externe est extrait en utilisant la procédure d'ajustement décrite en 4.2.2. En considérant la convolution de cette fonction réponse avec la corrélation croisée pompe-sonde et en se plaçant à la fin de la thermalisation interne ($\tau \geq 3\tau_{e-e}$ ⁴), le signal mesuré peut se réduire à :

$$\frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}}{\varepsilon'_{\text{Au}}}(\tau) = \frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}}{\varepsilon'_{\text{Au}}}\Big|_{\text{Th}} \exp(-\tau/\tau_p) + \frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}}{\varepsilon'_{\text{Au}}}\Big|_{\text{L}} (1 - \exp(-t/\tau_p)), \quad (4.22)$$

où $\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}/\varepsilon'_{\text{Au}}|_{\text{Th}}$ et $\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}/\varepsilon'_{\text{Au}}|_{\text{L}}$ sont des paramètres d'ajustement. L'expression 4.22 correspond au modèle à deux températures. En retranchant la contribution aux temps longs $\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}/\varepsilon'_{\text{Au}}|_{\text{L}}$, on obtient aux retards temporels pompe-sonde τ positifs la relation suivante :

$$\ln\left(\frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}}{\varepsilon'_{\text{Au}}} - \frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}}{\varepsilon'_{\text{Au}}}\Big|_{\text{L}}\right)(\tau) = \ln\left(\frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}}{\varepsilon'_{\text{Au}}}\Big|_{\text{Th}} - \frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}}{\varepsilon'_{\text{Au}}}\Big|_{\text{L}}\right) - \frac{\tau}{\tau_p}. \quad (4.23)$$

La figure 4.8 permet d'illustrer sur un exemple la procédure de détermination du taux de relaxation électron-phonon $\Gamma_p = 1/\tau_p$.

Dans l'exemple de la figure 4.8, au-delà de 0,8 ps, on a une réponse exponentielle sur $4\tau_p$ (avec $\tau_p=690$ fs). Le modèle à deux températures linéaire semble donc bien adapté à notre système multicouches. Ceci est également vrai aux autres énergies du photon de sonde et également pour le film d'or.

⁴ $\tau_{e-e} \leq 100$ fs pour le système multicouches et $\tau_{e-e} \approx 500$ fs pour le film d'or.

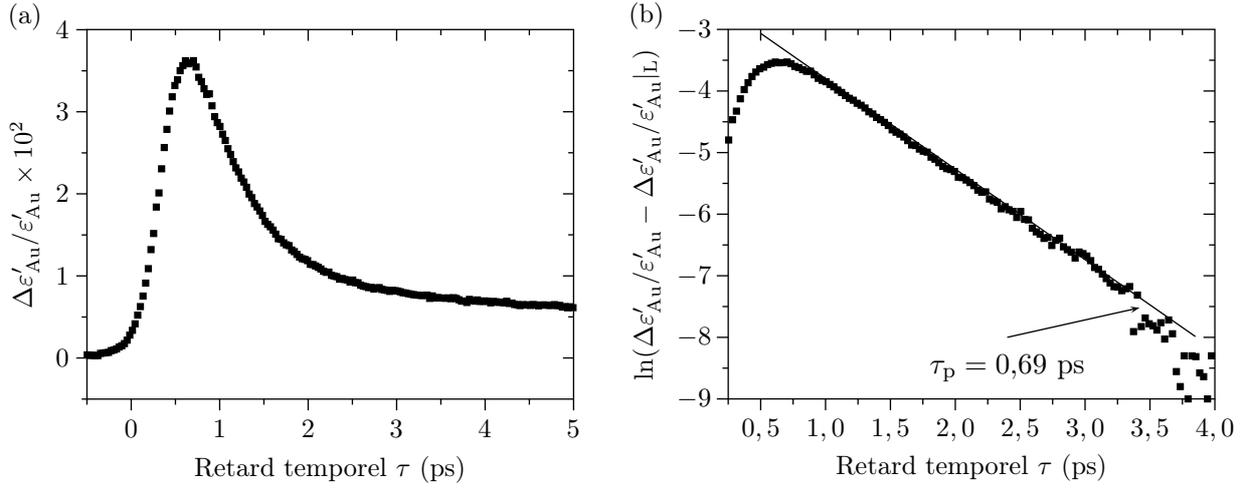


FIGURE 4.8: Figure illustrant la méthode d'extraction du taux de relaxation électron-phonon. En (a) : changement transitoire en transmission du système multicouches obtenu à une énergie du photon de sonde égale à 2,3 eV. En (b) : $\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}/\varepsilon'_{\text{Au}}(\tau) - \Delta\varepsilon'_{\text{Au}}/\varepsilon'_{\text{Au}}|_L$ en échelle semi-logarithmique où $\Delta\varepsilon'_{\text{Au}}/\varepsilon'_{\text{Au}}|_L$ est la valeur du changement relatif de transmission pris à 4 ps. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA.

Dépendance en puissance de pompe de la dynamique de relaxation électron-phonon

Pour vérifier la pertinence du modèle à deux températures linéaire, nous avons étudié la dépendance du taux de relaxation électrons-phonons en fonction de la puissance de pompe moyenne. Le graphe de la figure 4.9 montre les résultats obtenus pour le système multicouches et le film d'or (l'énergie du photon de sonde vaut 2,3 eV).

La dépendance en puissance de pompe est faible pour le taux de relaxation pour le système multicouches et le film d'or. Ceci est vrai aux autres énergies du photon de sonde et pour toutes les épaisseurs de la couche de cobalt. Le modèle à deux températures linéaire paraît donc bien adapté à nos études ce qui peut paraître surprenant par rapport à l'élévation de température électronique équivalente trouvée paragraphe 4.2.1 ($\Delta T_e = 1420$ K). En effet, le modèle à deux températures linéaire suppose que la capacité calorifique électronique est presque constante, c'est à dire une élévation effective de température inférieure à 300 K. Il semblerait donc que l'on soit dans un régime de faible perturbation à la fin de la thermalisation interne ($\tau \geq 3\tau_{e-e}$). Ceci est probablement dû à la faible valeur de τ_p : à un retard de 1 ps $\approx 2\tau_p$, la température électronique a déjà diminué d'un facteur $\exp(-2) \approx 0,135$, soit $\Delta T_e \approx 190$ K ≤ 300 K, ce qui permet de considérer une capacité thermique électronique quasi-constante.

Nouvelle estimation de l'élévation de température électronique

Dans le paragraphe 4.2.1, nous avons estimé qu'après la thermalisation externe du gaz électronique par le réseau, l'élévation finale de température est environ égale à 14 K. Par ailleurs, l'excitation optique initiale peut s'exprimer par une élévation de température électronique équivalente, estimée à 1400 K. Dans le paragraphe précédent, nous avons obtenu des temps de thermalisation électron-phonon très rapides de l'ordre de 600 fs. Ainsi, une élévation de température électronique de 1400 K est peu plausible, le réseau s'échauffe avant que les électrons n'atteignent

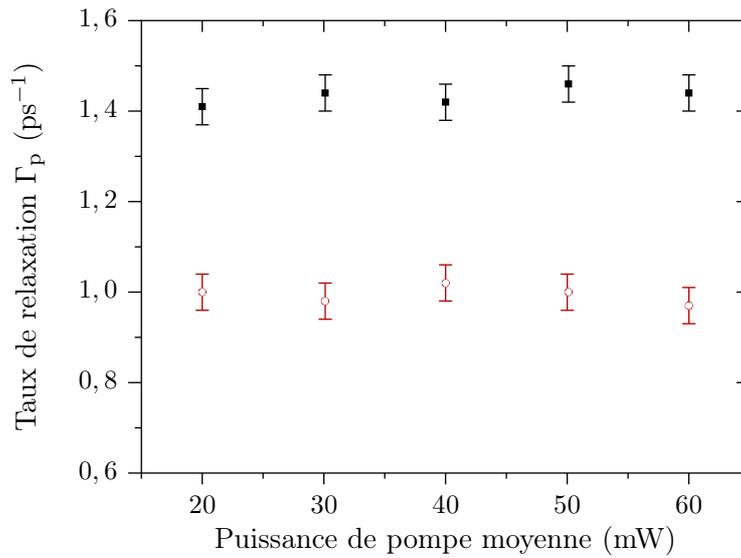


FIGURE 4.9: Dépendance du taux de relaxation électrons-phonons en fonction de la puissance de pompe moyenne. Les carrés pleins représentent les valeurs obtenues pour le système multicouches, les cercles celles pour le film d'or. L'énergie du photon de sonde vaut 2,3 eV. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA.

une telle température.

Une manière d'estimer de nouveau l'élévation de température est de considérer l'évolution temporelle de la transmission ou de la réflexion en dynamique pour le système multicouches. Nous avons vu dans le paragraphe précédent que la grandeur mesurée (transmission ou réflexion) est proportionnelle à la température électronique. Ainsi, le rapport de l'amplitude maximale de la transmission par la hauteur du plateau est dans le rapport des températures électroniques en supposant que la capacité calorifique électronique est constante (hypothèse qui conduit à une surestimation de la température électronique). Expérimentalement, on trouve que le rapport de l'amplitude maximale du signal de transmission ou de réflexion par la hauteur du plateau aux temps longs est de l'ordre de 10. En définitive, l'élévation de température électronique est de manière plus vraisemblable égale à 140 K, conforme à l'estimation du paragraphe précédent.

Dépendance en épaisseur de cobalt t_{Co} du taux de relaxation Γ_p électrons-phonons

Sur l'exemple de la figure 4.8 (énergie de sonde à 2,3 eV et épaisseur de cobalt égale à 4 PA), le taux de relaxation Γ_p vaut 1,44 ps⁻¹, soit un temps τ_p égal à 0,69 ps. Ce temps est inférieur à celui déterminé dans les mêmes conditions⁵ dans notre film d'or, $\tau_{p,Au} = 1$ ps (figure 4.10). La couche ultramince de cobalt modifie donc le couplage des électrons aux phonons. D'un point de vue microscopique, on peut voir deux origines possibles :

- des effets d'interface. Le gaz d'électrons délocalisé sur toute l'épaisseur du système multicouches excite des modes phonons supplémentaires par collisions des électrons aux interfaces Au/Co et Co/Au.
- des effets de volume. La couche de cobalt introduit des canaux supplémentaires de relaxa-

⁵mêmes puissance de pompe et énergie de photon de sonde.

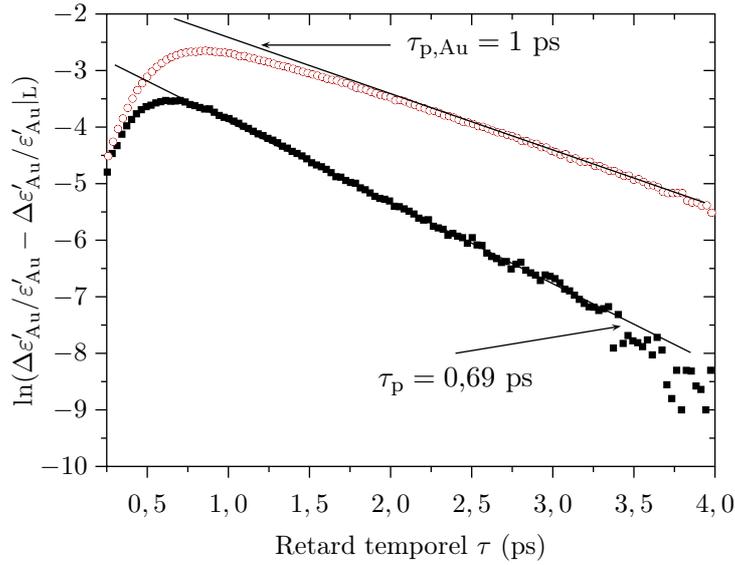


FIGURE 4.10: *En échelle semi-logarithmique, changement de transmission induit par la pompe pour le système multicouche (carrés pleins) et pour le film d'or (cercles). Le photon de sonde a une énergie de 2,3 eV. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA.*

tion électrons-phonons. Ce nombre de canaux augmente avec l'épaisseur de la couche de cobalt.

Pour étudier ces effets, nous avons mesuré la dépendance du taux de relaxation électron-phonon Γ_p en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. La figure 4.11 montre les valeurs obtenues à l'énergie de photon de sonde 2,3 eV. Sur cette figure, le point situé à épaisseur de cobalt nulle correspond au taux de relaxation électron-phonon $\Gamma_{p,Au}$ mesurée dans le film d'or. On constate l'accord entre les valeurs expérimentales du taux de relaxation électron-phonon Γ_p du système multicouche et une droite d'équation $y = ax + b$ (avec $a = 0,157$ et $b = 0,802$). La relaxation externe électrons-réseau est ainsi d'autant plus rapide que la couche de cobalt est épaisse. L'ordonnée à l'origine b de la droite affine d'ajustement permet d'estimer la contribution des interfaces au taux de relaxation :

$$b = \Gamma_{p,Au} + \Gamma_{p,interf} , \quad (4.24)$$

où $\Gamma_{p,interf}$ est la contribution des interfaces Au/Co et Co/Au à Γ_p . A l'énergie de photon de sonde ω_s étudiée sur la figure 4.11 ($\omega_s = 2,3$ eV), la contribution des interfaces semble faiblement négative (ce qui s'interprète difficilement). Cependant, à d'autres énergies du photon de sonde la même étude conduit à des valeurs positives. Nous en déduisons que nous ne pouvons pas déterminer cette grandeur avec une précision suffisante pour mettre en évidence une contribution significative des interfaces. Celle-ci, si elle existe, reste de toute façon faible devant la contribution volumique du cobalt, même pour une épaisseur de quelques plans atomiques seulement.

On peut essayer de relier la pente a aux taux de relaxation électron-phonon de l'or et du cobalt massifs. Pour cela, considérons un modèle simple où les électrons sont complètement délocalisés et subissent un taux de relaxation $\Gamma_{p,Au}$ quand ils sont dans l'or et $\Gamma_{p,Co}$ dans la couche de

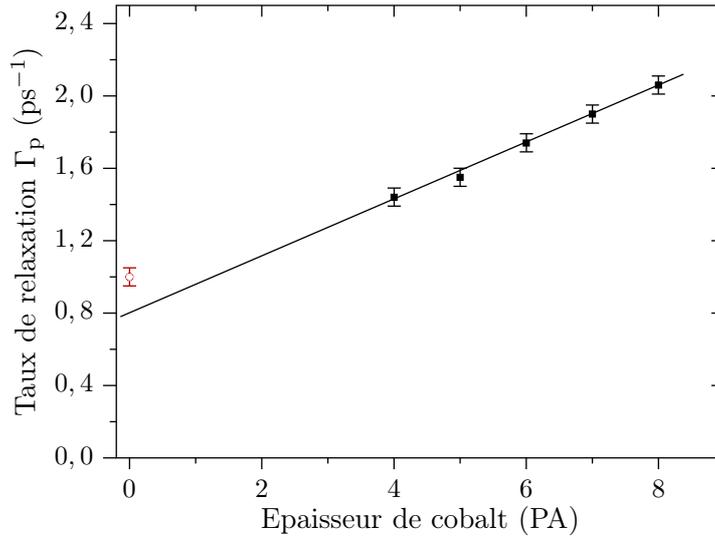


FIGURE 4.11: Dépendance du taux de relaxation électron-phonon Γ_p du système multicouches en fonction de l'épaisseur du cobalt. L'énergie du photon de sonde vaut 2,3 eV, le cobalt a une épaisseur de 4 PA. Les valeurs expérimentales de Γ_p sont en carré plein. Le cercle à épaisseur de cobalt nulle représente le taux de relaxation électron-phonon mesuré dans le film d'or. La ligne noire est l'ajustement de ces points par une loi affine d'équation $y = 0,157x + 0,802$.

cobalt. Le taux de relaxation moyen Γ_p qui en résulte s'écrit :

$$\Gamma_p = \frac{t_{\text{Co}}}{t_{\text{Co}} + t_{\text{Au}}} \Gamma_{p,\text{Co}} + \frac{t_{\text{Au}}}{t_{\text{Co}} + t_{\text{Au}}} \Gamma_{p,\text{Au}}. \quad (4.25)$$

Au premier ordre en $(t_{\text{Co}}/t_{\text{Au}})$, l'expression précédente permet de relier a aux grandeurs escomptées :

$$a = \frac{\Gamma_{p,\text{Co}} - \Gamma_{p,\text{Au}}}{t_{\text{Au}}}. \quad (4.26)$$

Avec $a = 0,157 \text{ ps}^{-1}\text{PA}^{-1}$, soit $a = 0,77 \text{ ps}^{-1}\text{nm}^{-1}$ (1 plan atomique de cobalt vaut 0,204 nm), $t_{\text{Au}} = 30 \text{ nm}$ et $\Gamma_{p,\text{Au}} = 1,22 \text{ ps}^{-1}$ ([53, 54, 61]), on trouve : $\Gamma_{p,\text{Co}} = 24 \text{ ps}^{-1}$, soit un temps de relaxation électrons-phonons $\tau_{p,\text{Co}}$ dans le cobalt de l'ordre de 50 fs. Le temps de relaxation trouvé est significativement plus faible que celui du nickel $\tau_{p,\text{Ni}} = 150 \text{ fs}$ [93], autre métal de transition 3d ferromagnétique. Cependant, la simplicité du modèle utilisé pour cette mesure indirecte du taux de relaxation extrinsèque du cobalt peut entacher cette valeur d'une incertitude importante.

4.2.4 Conclusion

La couche mince de cobalt joue un rôle important dans la thermalisation du gaz électronique dans le système multicouches :

- la thermalisation interne du gaz électronique est au moins 5 fois plus rapide dans la structure Au/Co/Au que dans le film d'or.
- le cobalt contribue également à une accélération des processus de relaxation externe du gaz électronique avec le réseau.

Ainsi, la couche de cobalt, même en très faible quantité relative, accélère fortement la dynamique de relaxation du gaz électronique dans le système multicouches : ceci provient de la structure très différente des métaux de transition par rapport aux métaux nobles et en particulier au rôle des électrons d .

4.3 Etude de la dynamique magnéto-optique du système Au/Co/Au

4.3.1 Validation d'une mesure pompe-sonde sur les films magnétiques

Nécessité de revenir à l'équilibre entre deux impulsions pompe

Les temps d'intégration (de l'ordre de la milliseconde) de nos photodétecteurs sont plus grands que la période de répétition des impulsions optiques (de l'ordre de la microseconde). A chaque retard temporel pompe-sonde, la réponse du système est moyennée sur un grand nombre d'impulsions, le train d'impulsions n'est pas résolu temporellement. Pour que ces expériences pompe-sonde aient un sens, il est nécessaire qu'entre deux impulsions successives le système d'étude ait le temps de retourner à son état d'équilibre initial. Ceci n'est pas évident a priori pour des systèmes magnétiques qui ont la particularité d'être hystérétiques.

Retour à l'équilibre entre deux impulsions pompe pour le système multicouches Au/Co/Au

Le protocole expérimental pour étudier le retour à l'équilibre de l'échantillon est inspiré de ceux des références [5,8]. Il consiste à mesurer la modification du cycle d'hystérésis de l'échantillon induite par la pompe. Détaillons tout de suite les deux types de mesures que l'on peut mener sur un système magnétique dans des expériences de type pompe-sonde :

- premièrement, les mesures que l'on appellera par la suite mesures « pompe-sonde ». La pompe est bloquée, le système magnétique est porté à saturation puis laissé à rémanence (champ externe nul). La pompe est ensuite débloquée et nous faisons varier le retard pompe-sonde. Le champ magnétique extérieur reste nul au cours de la mesure pompe-sonde. Ainsi, pour chaque point de mesure (donc pour chaque retard τ), on moyenne environ mille « expériences » espacées de $4 \mu\text{s}$ entre deux impulsions pompe. Il se pourrait que le système n'ait pas le temps de relaxer entièrement et des effets cumulatifs apparaîtraient. Ce n'est pas le cas car on observe un état stationnaire. Il se peut cependant qu'entre deux impulsions pompe le système relaxe vers un état magnétique donné mais que cet état ne soit pas celui de départ (à savoir celui avant l'arrivée de la première impulsion pompe à ce point de mesure). En tout cas, ce type de mesures pompe-sonde à rémanence (champ externe nul) ou à champ externe fixé a une signification physique précise même si les mécanismes de retour à l'équilibre entre deux impulsions ne sont pas bien compris.
- deuxièmement, on peut aussi mesurer un cycle d'hystérésis à retard pompe-sonde donné. L'impulsion sonde arrive à un retard temporel τ donné par rapport à l'impulsion pompe, le champ magnétique est balayé de 0 à $+B_{\text{max}}$, puis de $+B_{\text{max}}$ à $-B_{\text{max}}$ et de $-B_{\text{max}}$ à 0. Le système évolue donc entre deux impulsions pompe dans un champ magnétique non nul. Le balayage du champ magnétique extérieur se fait alors sur des durées beaucoup plus

grandes que le taux de répétition. Tracer un cycle pour un retard pompe-sonde donné n'a pas forcément la signification physique qu'on pourrait donner à un cycle en statique. Dans le cas statique (pas de pompe), à champ magnétique extérieur nul, le système occupe un des deux états d'énergie stables ($\theta = 0$ ou $\theta = \pi$, paragraphe 1.1.3) et une barrière d'énergie⁶ doit être franchie pour passer d'un état à l'autre. Le champ magnétique extérieur permet de faire diminuer la hauteur de la barrière d'énergie et de briser la symétrie entre les deux états d'énergie stable en champ nul : l'un diminue en énergie et l'autre augmente. Par balayage du champ, le renversement de l'aimantation provient de la disparition de la barrière d'énergie entre l'état occupé (devenant instable) et l'état stable [30]. En revanche, lorsqu'on trace le cycle avec pompe, il faut considérer pour chaque valeur du champ externe l'énergie optique apportée par la pompe et ce supplément d'énergie peut favoriser le basculement de l'aimantation en particulier près des champs coercitifs. Il est donc délicat de discuter les mécanismes en jeu sur les cycles mesurés avec pompe et en particulier dans la région du champ coercitif.

Néanmoins, ces deux approches se rejoignent en supposant une réversibilité locale du système entre deux impulsions pompe, ce qui est vrai loin des champs coercitifs. La figure 4.12 montre les cycles d'hystérésis mesurés dans trois situations différentes : le cycle sans pompe, les deux autres cycles mesurés avec impulsion pompe pour différents retards pompe-sonde. On constate

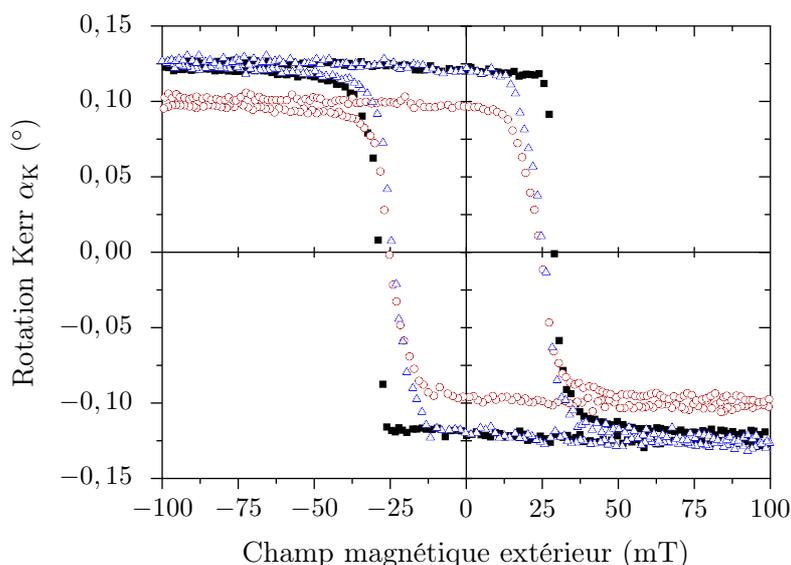


FIGURE 4.12: Modification du cycle d'hystérésis induite par la pompe : en carré, le cycle d'hystérésis de l'échantillon pompe bloquée. En cercle, le cycle d'hystérésis de l'échantillon pour un retard pompe-sonde τ nul. En triangle, le cycle obtenu pompe débloquée avec un retard pompe-sonde négatif $\tau = -5$ ps. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA.

que :

- les modifications du cycle d'hystérésis (par rapport au cycle d'hystérésis pompe bloquée) sont bien plus importantes aux retards temporels pompe-sonde τ positifs que négatifs.

⁶dans le cas du système Au/Co/Au à aimantation perpendiculaire aux plans des couches, la barrière d'énergie est donnée par l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline.

- les cycles d'hystérésis pompe bloquée et pompe débloquée avec un retard $\tau = -5$ ps se superposent bien, sauf pour des champs magnétiques proches du champ coercitif. Ce retard négatif pompe-sonde correspond à un retard positif de $4 \mu\text{s}$ de l'impulsion sonde par rapport à l'impulsion pompe précédente. Ainsi, entre deux impulsions pompe, le système relaxe vers un état magnétique donné et que cet état est celui obtenu sans pompe. Ceci prouve la réversibilité locale du système à rémanence.

L'hypothèse de la réversibilité locale du système semble vérifiée autour des points de rémanence, qui sont identiques sur les cycles sans pompe et à retard négatif $\tau = -5$ ps.

4.3.2 Etude de la dynamique d'aimantation du système multicouches

Position du problème

En régime statique, l'aimantation M d'une couche mince de cobalt ($t_{\text{Co}} \leq 8$ PA) et le terme non diagonal $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ du tenseur diélectrique du cobalt sont proportionnels :

$$\varepsilon_{\text{Co},xy} = FM, \quad (4.27)$$

où F est une constante complexe ($F = F' + iF''$) qui dépend de la structure de bandes du matériau et de la distribution des porteurs (voir expression 1.22 donnant le lien entre le tenseur diélectrique du cobalt et sa structure de bandes).

Dans une expérience pompe-sonde le système est porté hors d'équilibre, M et F sont susceptibles de varier :

$$\Delta\varepsilon_{\text{Co},xy}(\tau) = (\Delta F(\tau))M_0 + F_0\Delta M(\tau), \quad (4.28)$$

où l'indice 0 désigne la valeur à l'équilibre (sans pompe) et la notation Δ la variation due à la pompe. Ainsi, les variations observées pour $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ sont une combinaison des variations de F et M . Une question se pose : est-ce que les variations de F sont négligeables devant celles de M pour pouvoir considérer que l'on mesure bien seulement une dynamique d'aimantation ?

Pour répondre à cette question, nous allons comparer les variations relatives des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ et regarder si elles se superposent temporellement. Si ce n'est pas le cas, nous aurons mis en évidence une contribution non magnétique dans la dynamique de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$. Avant cette étude, nous commençons par montrer de manière quantitative que les variations des rotation et ellipticité Kerr du système multicouches dépendent principalement des variations des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$. Ceci permet de confronter notre démarche expérimentale, également employée par Bigot et al. [12], qui consiste en une comparaison des variations relatives des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$, à la démarche expérimentale de Koopmans et al. [44, 93] qui compare les variations relatives des rotation et ellipticité Kerr. Ensuite, nous étudions les variations relatives des parties réelles et imaginaires de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ pour notre système multicouches. Nous verrons qu'elles ne se superposent pas temporellement et ceci aux différentes énergies de sonde : nous ne mesurons donc pas seulement une variation de l'aimantation dans ces expériences pompe-sonde. Enfin, nous concluons par une discussion sur l'évolution des changements relatifs de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ en l'étudiant aux temps courts (pendant le recouvrement des impulsions pompe et

sonde) et aux temps moyens (où la thermalisation interne du gaz électronique est finie et la thermalisation externe avec le réseau est en cours).

Démarche expérimentale

Avec les expressions 4.27 et 4.28, les variations des changements relatifs des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ s'écrivent :

$$\begin{cases} \frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Co},xy}}{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} = \frac{\Delta F'}{F'_0} + \frac{\Delta M}{M_0}, \\ \frac{\Delta\varepsilon''_{\text{Co},xy}}{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} = \frac{\Delta F''}{F''_0} + \frac{\Delta M}{M_0}. \end{cases} \quad (4.29)$$

Si le changement relatif de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ résulte essentiellement d'une dynamique d'aimantation (les variations de $\Delta F'/F'_0$ et $\Delta F''/F''_0$ sont négligeables), on attend des variations relatives des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ identiques. De plus, les évolutions temporelles de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ doivent également être identiques à toutes les énergies du photon de sonde. D'où notre démarche expérimentale de comparer les variations relatives de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$.

Cette démarche expérimentale a été proposée précédemment par les auteurs de la référence [12]. Les auteurs des références [9, 94] ont eu une démarche différente : leur preuve repose sur une comparaison entre les variations relatives des rotation et ellipticité Kerr de leur système. Ce paragraphe a pour but de montrer que ces deux démarches sont en première approximation équivalentes.

Les figures 4.13 présentent un exemple représentatif de l'évolution temporelle de la réponse magnéto-optique (T , R , α et η) du système multicouches Au/Co/Au à une énergie du photon de sonde égale à 2,47 eV. Plaçons-nous au retard temporel $\tau_m = 450$ fs correspondant au maximum de variation pour les changements relatifs de rotation et ellipticité Kerr⁷. Les amplitudes des variations de T , R , α et η valent :

$$\begin{pmatrix} \Delta T/T_0 \\ \Delta R/R_0 \\ \Delta \alpha/\alpha_0 \\ \Delta \eta/\eta_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -2,1\% \\ 0,92\% \\ -14,7\% \\ -42\% \end{pmatrix}. \quad (4.30)$$

Les changements relatifs de la réponse magnéto-optique sont liés aux variations des constantes diélectriques ε_{Au} de l'or et $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ du cobalt via la matrice de l'expression 4.8 calculée à 2,47 eV. En inversant cette matrice, nous obtenons :

$$\begin{pmatrix} \Delta\varepsilon'_{\text{Au}} \\ \Delta\varepsilon''_{\text{Au}} \\ \Delta\varepsilon'_{\text{Co},xy} \\ \Delta\varepsilon''_{\text{Co},xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 7,4 \times 10^{-3} \\ -2,8 \times 10^{-2} \\ 4,5 \times 10^{-2} \\ 4,1 \times 10^{-2} \end{pmatrix}. \quad (4.31)$$

⁷les amplitudes maximales en transmission et en réflexion ont lieu à un retard légèrement supérieur, voir figure 4.13.

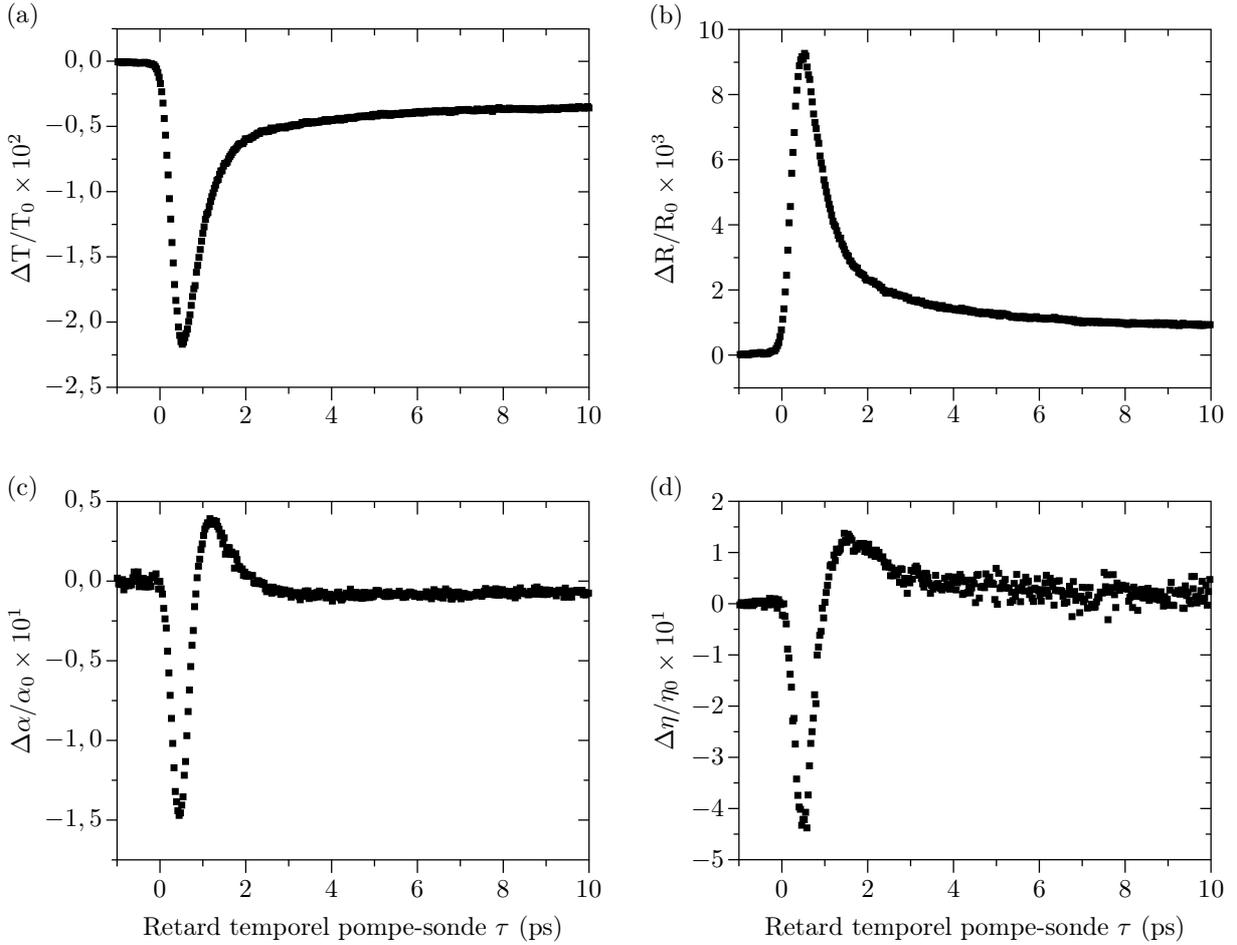


FIGURE 4.13: Exemple représentatif d'évolution temporelle de la réponse magnéto-optique du système multicouches Au/Co/Au. En (a) : $\Delta T/T_0$. En (b) : $\Delta R/R_0$. En (c) : $\Delta\alpha/\alpha_0$. En (d) : $\Delta\eta/\eta_0$. Le cobalt a une épaisseur de 4 PA, l'énergie du photon de sonde vaut 2,47 eV.

Connaissant maintenant les variations du terme non diagonal du cobalt, simulons les variations relatives de la réponse magnéto-optique du système multicouches en imposant que ε_{Au} soit constant :

$$\begin{pmatrix} \Delta\varepsilon'_{\text{Au}} \\ \Delta\varepsilon''_{\text{Au}} \\ \Delta\varepsilon'_{\text{Co},xy} \\ \Delta\varepsilon''_{\text{Co},xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 4,5 \times 10^{-2} \\ 4,1 \times 10^{-2} \end{pmatrix} \Rightarrow \begin{pmatrix} \Delta T/T_0 \\ \Delta R/R_0 \\ \Delta\alpha/\alpha_0 \\ \Delta\eta/\eta_0 \end{pmatrix}_{\text{simu}} = \begin{pmatrix} 0\% \\ 0\% \\ -12\% \\ -32\% \end{pmatrix}. \quad (4.32)$$

Nous constatons que les valeurs simulées des variations relatives des rotations et ellipticité Kerr en imposant ε_{Au} constant ont même ordre de grandeur que les variations relatives mesurées. En définitive, les variations $\Delta\alpha/\alpha_0$ et $\Delta\eta/\eta_0$ dépendent principalement des variations des parties réelles et imaginaires de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$. Ce résultat est également vrai aux autres énergies du photon de sonde. On note tout de même que la simulation de la variation de η avec ε_{Au} constant est de 30 %, soit 30 % de moins que la valeur expérimentale. Ceci prouve que l'or a un effet faible mais non négligeable dans la réponse magnéto-optique en dynamique.

Nous tirons de ce résultat deux conclusions :

- bien que les courbes de dispersion (figure 2.9) de la réponse magnéto-optique du système multicouches reflètent principalement la dépendance spectrale de l'or, comme les épaisseurs des films d'or dans le système multicouches sont négligeables devant la longueur d'onde lumineuse, l'effet Fabry-Pérot dans l'or change peu pour de faibles variations de la constante diélectrique de l'or et par conséquent, les variations de ε_{Au} n'ont pas une contribution importante dans les variations de α et η .
- notre démarche expérimentale équivaut donc en première approximation à celle des auteurs des références [9, 94]. En effet, comme l'or a un effet négligeable dans la réponse magnéto-optique en dynamique, les variations relatives des rotation et ellipticité Kerr deviennent des combinaisons linéaires des variations relatives des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$. De ce fait, si les évolutions temporelles de α et η se superposent, ceci implique que les évolutions de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ se superposent également, la réciproque étant vraie. En définitive, les démarches expérimentales sont équivalentes : les contributions non magnétiques à la dynamique de la réponse magnéto-optique peuvent être vues via les variations de la constante diélectrique $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ ou les variations de la rotation Kerr complexe.

Dans la suite, nous étudions les variations relatives des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$. Si ces dernières sont dues uniquement à une dynamique d'aimantation, elles doivent se superposer temporellement et ne pas dépendre de l'énergie de sonde.

4.3.3 Comparaison des évolutions des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$

Les cinq figures 4.14 montrent l'évolution temporelle des changements relatifs des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ pour le système multicouches Au/Co/Au aux cinq énergies du photon de sonde utilisées. Les dynamiques de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et de $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ suscitent plusieurs commentaires :

- pour chaque énergie du photon de sonde, les variations relatives des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ se recouvrent temporellement au-delà de 4 ps, lorsque les variations deviennent très faibles et comparables au niveau de bruit. Ce temps de convergence des courbes de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et de $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ est long et correspond à la fin de la thermalisation des électrons avec le réseau.
- aux différentes énergies du photon de sonde, les courbes des évolutions temporelles de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ changent de signe. Elles présentent une forte variation aux temps courts (pendant la durée de la corrélation croisée pompe-sonde), puis changent de signe avant de s'annuler.
- à 2,3 eV, on constate que le changement de signe dans l'évolution temporelle de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ s'effectue avec une polarité opposée à celle de $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$. Aux autres énergies du photon de sonde, les changements de signe dans les évolutions temporelles de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ s'effectuent avec la même polarité.
- la dépendance spectrale des amplitudes des pics principaux et secondaires des courbes n'est pas monotone. A 2,43 eV, l'amplitude du pic principal est plus importante qu'aux autres énergies du photon de sonde. Cela peut provenir d'une erreur numérique dans l'estimation de la valeur statique de $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ (paragraphe 2.3.2).

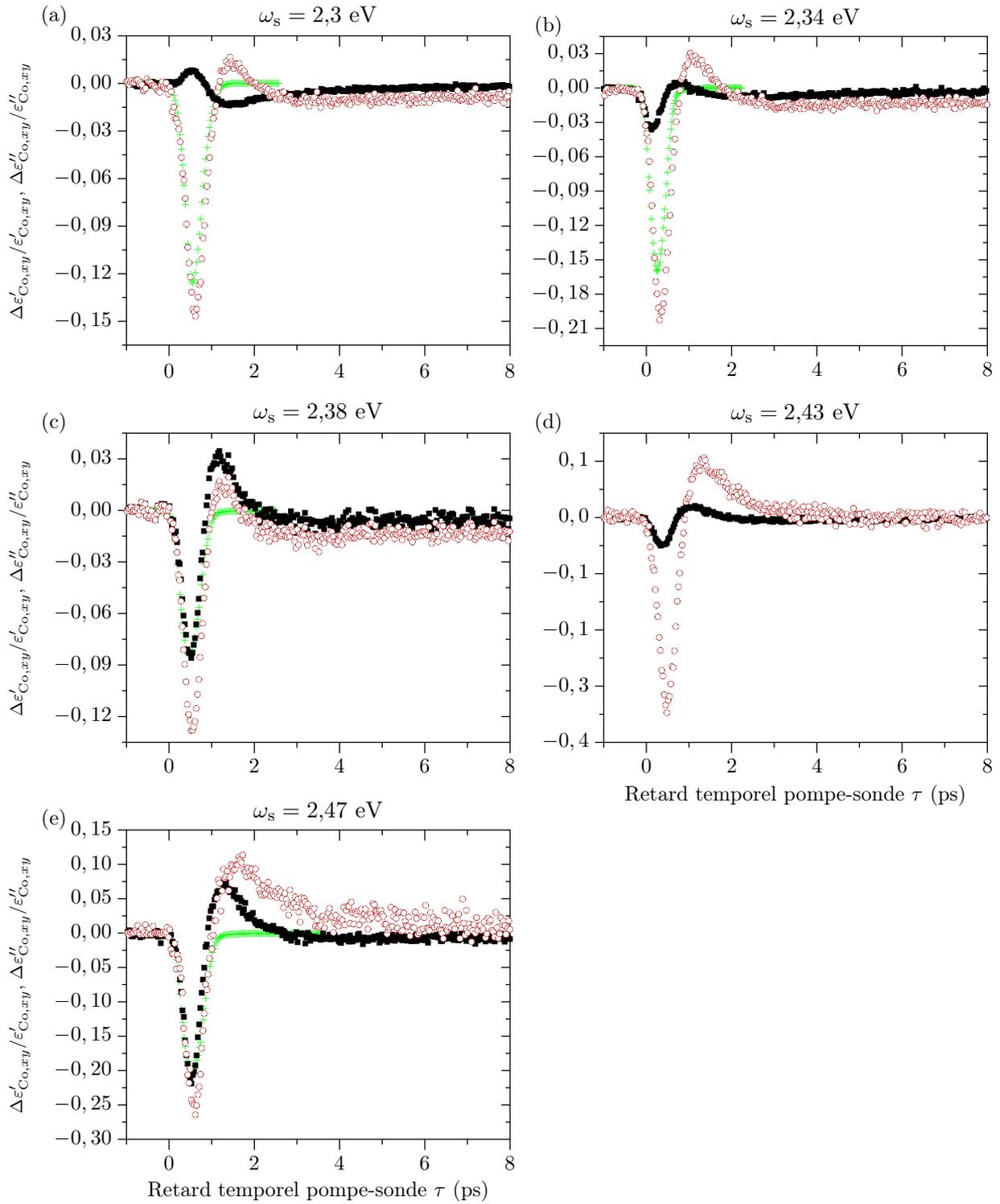


FIGURE 4.14: Comparaison entre les évolutions temporelles pompe-sonde des changements relatifs des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$. Chaque figure correspond à une énergie de photon de sonde donnée. Les carrés représentent les valeurs expérimentales pour $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$, les cercles celles pour $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ et les points + le signal de corrélation croisée pompe-sonde. L'épaisseur de cobalt vaut 6 PA pour la structure multicouche. Les études aux différentes énergies de sonde ont été menées à une puissance de pompe moyenne égale à 30 mW.

- aux énergies du photon de sonde égales à 2,34, 2,43 et 2,47 eV, les pics secondaires dans les variations relatives de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ se font à des retards temporels pompe-sonde différents. Pour discuter le déphasage entre ces retards temporels, il faudrait connaître la fonction réponse du système. Cette dernière permet de reproduire la réponse du milieu de façon phénoménologique en s'appuyant sur une compréhension microscopique des processus en jeu. En raisonnant par analogie avec la fonction réponse du film d'or pour T et R, on peut corroborer que la fonction réponse du système multicouches pour $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ sépare les réponses des électrons, du réseau et des spins, et ceci avec des constantes de temps et poids différents. Ainsi, le retard temporel entre les maxima secondaires peut être aussi bien dû à des effets d'amplitudes qu'à des effets de temps de relaxation des différentes populations.

La différence entre les dynamiques des parties réelle et imaginaire de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$, et ceci à toutes les énergies du photon de sonde, permet de conclure que l'on ne mesure pas seulement une dynamique d'aimantation.

Dans leurs travaux, Koopmans et al. [9, 44, 93, 94] ont abouti à la même observation sur des systèmes physiques différents : des structures multicouches Cu(111)/Ni/Cu et Cu(001)/Ni/Cu avec des épaisseurs de nickel différentes par type de structures. Ces échantillons présentent une dynamique en rotation Kerr différente de celle en ellipticité Kerr. Pour les empilements Cu(111)/Ni/Cu, la différence entre les deux dynamiques persiste seulement durant les deux premières picosecondes alors que pour les systèmes Cu(001)/Ni/Cu cette différence peut persister jusqu'à des retards de 50 ps. En ce qui concerne les allures des signaux, les variations de la rotation Kerr présentent également un changement de signe et ce dernier dépend de l'épaisseur de nickel.

Ces observations paraissent être en fort contraste avec la dynamique de la rotation Kerr complexe du film mince de CoPt₃ étudié paragraphe 3.2.6 ainsi que sur d'autres matériaux massifs (nickel [93]). Sur la figure 3.15, les évolutions temporelles de rotation Kerr et ellipticité Kerr se recouvrent. Cependant, en utilisant des impulsions plus brèves (20 fs), Bigot et al. ont montré que le système CoPt₃ présente également une contribution non magnétique à des retards pompe-sonde plus courts ($\tau \leq 100$ fs) [12].

En définitive, les mesures pompe-sonde sur le système multicouches Au/Co/Au montrent une forte contribution non magnétique dans l'évolution temporelle du terme non diagonal $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ du tenseur diélectrique du cobalt. Ceci ne signifie pas qu'il n'y pas d'effets magnétiques. Dans les autres systèmes cités ci-dessus (CoPt₃ et ceux à base de nickel), une dynamique de désaimantation a été observée. Dans nos courbes (figures 4.13 et 4.14), les variations relatives de α , η , $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$, sont positives aux retards pompe-sonde [1 ps-5 ps]. Or, nous savons (expressions 4.29) que la variation relative de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ est la somme de la variation relative de F et de celle de l'aimantation :

$$\begin{cases} \frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Co},xy}}{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} = \frac{\Delta F'}{F'_0} + \frac{\Delta M}{M_0}, \\ \frac{\Delta\varepsilon''_{\text{Co},xy}}{\varepsilon''_{\text{Co},xy}} = \frac{\Delta F''}{F''_0} + \frac{\Delta M}{M_0}. \end{cases}$$

Il se peut donc que pour notre système multicouches, il y ait une désaimantation transitoire et dans ce cas $\Delta M/M_0$ est négatif. Mais, les variations relatives positives de F' et F'' masquent la variation relative négative de l'aimantation.

Dans la suite, nous étudions les dynamiques de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ dans deux plages temporelles, celles aux temps courts correspondant à la durée de la corrélation croisée pompe-sonde et celles aux temps moyens correspondant au régime de thermalisation externe du gaz électronique par le réseau.

4.3.4 Origines des artefacts magnéto-optiques

Dans le précédent paragraphe, nous avons vu que la dynamique du terme non diagonal $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ fait apparaître des contributions qui ne sont pas dues à une dynamique de désaimantation. Ces contributions seront appelées « artefacts magnéto-optiques » de manière à souligner que la mesure magnéto-optique n'est pas une mesure sans équivoque de l'aimantation dans le régime dynamique. Nous allons discuter dans ce qui suit trois types d'artefacts magnéto-optiques pour tenter d'expliquer les dynamiques de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$.

Artefacts cohérents pendant la durée de la corrélation croisée pompe-sonde

Les figures 4.14 montrent un changement rapide et important des signaux pendant le recouvrement temporel des impulsions pompe et sonde. Il se peut que le système ait une réponse cohérente, traduisant l'apparition de termes non diagonaux dans la matrice densité. En effet, pour obtenir la formule de Lindhard (expression 4.4), on évalue les N dipôles élémentaires induits par une perturbation électromagnétique de faible intensité en considérant le régime linéaire permanent. Le champ électromagnétique (modélisé par une onde plane monochromatique) crée des dipôles élémentaires qui oscillent dans le temps avec une certaine phase par rapport à la perturbation. Dans la matrice densité décrivant les N dipôles, il apparaît des termes non diagonaux d'ordre 1 liés à la cohérence moyenne entre les niveaux électroniques impliqués dans les dipôles élémentaires [96]. Ces termes diagonaux relaxent en un temps T_2 (temps très rapide \sim fs dans les métaux). Lorsqu'on excite le milieu avec une impulsion pompe intense (perturbation ayant une durée limitée dans le temps), il faut reprendre le calcul précédent de l'évolution de la matrice densité du système en considérant l'interaction simultanée des champs électromagnétiques des impulsions pompe et sonde avec le milieu. Pendant la corrélation croisée pompe-sonde, l'impulsion sonde peut « voir » éventuellement une réponse cohérente du milieu dense, cohérence due à l'apparition de termes non diagonaux dans la matrice densité. Après passage de l'impulsion pompe, comme le temps T_2 de relaxation est très rapide dans les métaux, l'impulsion sonde ne voit plus que les effets de population induits par l'impulsion pompe. Ces artefacts dits « cohérents » n'existeraient que durant la corrélation croisée pompe-sonde à cause du temps de relaxation T_2 très rapide dans les métaux (\sim fs).

Nous n'avons pas cherché à confirmer par d'autres moyens ces éventuels artefacts cohérents. Pour cela, il aurait fallu modifier le dispositif expérimental en mettant en œuvre des compresseurs sur les chemins optiques de pompe et sonde afin de contrôler la durée des impulsions ainsi que leur chirp. L'utilisation d'impulsions plus brèves aurait permis de voir si de telles variations abruptes

des signaux sont encore observées seulement pendant le recouvrement temporel des impulsions pompe et sonde.

Effets de redistribution des états électroniques

Revenons à l'origine microscopique des effets Kerr magnéto-optiques dans le régime statique. Nous avons vu dans le paragraphe 1.2.3 que le pouvoir rotatoire de l'aimantation M du cobalt sur la polarisation de la lumière réfléchi repose sur un lien de proportionnalité entre l'aimantation M et le moment cinétique orbital L_e des électrons. Cette proportionnalité résulte du couplage spin-orbite qui introduit une corrélation entre les parties orbitales et de spin des fonctions d'ondes électroniques.

En régime dynamique, il faut considérer la redistribution des états électroniques après l'excitation optique. Pour cela, écrivons l'expression du tenseur diélectrique $[\varepsilon_{\text{Co}}]$ du cobalt en fonction du retard temporel pompe-sonde après relaxation de la cohérence :

$$\varepsilon_{ij}(\omega)(\tau) = \delta_{ij} + \frac{4e^2}{\pi \hbar m^2 \omega^2} \sum_{gn} \int_{BZ} \frac{\omega_{gn,\mathbf{k}} [f_{g,\mathbf{k}}(\tau)(1 - f_{n,\mathbf{k}}(\tau))] \left(|P_{gn,\mathbf{k}}^+(\tau)|^2 \pm_{ij} |P_{gn,\mathbf{k}}^-(\tau)|^2 \right)}{\omega_{gn,\mathbf{k}}^2 - \omega^2 - 2i\omega\Gamma_{gn,\mathbf{k}}} d^3k. \quad (4.33)$$

On voit dans l'expression 4.33 que la redistribution des états électroniques après l'excitation optique agit de deux manières sur $[\varepsilon_{\text{Co}}]$:

- via les facteurs d'occupation $f_{n,\mathbf{k}}$ des états $|n, \mathbf{k}\rangle$.
- via les modifications des éléments de matrice $P_{gn,\mathbf{k}}^\pm$ dues aux modifications des fonctions d'ondes des états électroniques $|n, \mathbf{k}\rangle$.

Si on reprend la figure 4.4 reproduite ci-dessous (figure 4.15), on peut tenter d'expliquer les signaux en dynamique observés pour $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ par un déséquilibre des thermalisations entre les différentes populations d'électrons :

- aux temps courts correspondant à la durée de la corrélation croisée pompe-sonde, l'impulsion pompe permet de peupler en faible quantité des états électroniques élevés en énergie. Des électrons de la bande $3d\uparrow$ sont promus dans des états de la bande sp fortement énergétiques. De même, des électrons de la bande $3d\downarrow$ peuplent des états fortement énergétiques de la bande sp . En tenant compte de la structure de bandes et donc du nombre éventuellement inégal d'électrons promus des deux bandes $3d$, l'amplitude de la variation de la constante diélectrique peut être importante, ce qui expliquerait de fortes variations pour $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$. Ces électrons chauds relaxent rapidement ($\tau_{e-e} \approx 50$ fs), d'où la nécessité de la présence de l'impulsion pompe pour peupler ces états fortement énergétiques et une disparition de ces effets après passage de l'impulsion pompe.
- aux retards intermédiaires, la thermalisation interne du gaz électronique est finie, la bande $3d\uparrow$ est de nouveau remplie et la mer de Fermi (constituée des électrons sp et $3d\downarrow$) se thermalise avec le réseau. Le signal transitoire sur $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ proviendrait alors des thermalisations des électrons $3d\downarrow$ et sp .

Il serait donc intéressant dans la poursuite de ces travaux de modéliser l'évolution de la distribution électronique afin de simuler l'évolution temporelle du tenseur diélectrique du cobalt. Ceci

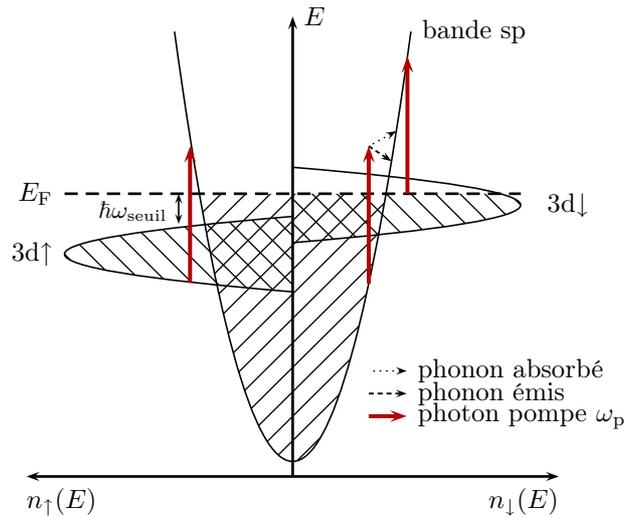


FIGURE 4.15: Schéma de la structure de bandes du cobalt : l'absorption de l'impulsion pompe (d'énergie 1,55 eV) permet de peupler des états électroniques fortement énergétiques.

permettrait d'investiguer les mécanismes dominants dans les variations du tenseur diélectrique du cobalt et de souligner les mécanismes faisant intervenir le spin de l'électron.

Effets magnéto-élastiques et de dynamique des constantes d'anisotropie

Etudions la dynamique en magnéto-optique du système multicouches Au/Co/Au dans la fenêtre temporelle [1 ps - 4 ps]. Dans cette plage temporelle, le gaz électronique peut être décrit par une température moyenne, mais il n'est pas encore en équilibre avec le réseau. La diffusion thermique de l'énergie injectée optiquement en dehors de la région excitée ($\sim 50 \mu\text{m}$) est effective à des retards temporels beaucoup plus grands, de l'ordre de 20 ns⁸ : le réseau peut être considéré comme « gelé » dans les directions latérales des couches et libre dans la direction normale. Il apparaît ainsi une contrainte uniaxiale dans le matériau.

Cette contrainte peut se manifester de deux manières dans les propriétés magnéto-optiques :

- par des effets magnéto-élastiques. La déformation du réseau peut modifier les distances interatomiques et par conséquent le recouvrement des fonctions d'ondes électroniques [30]. La dynamique du réseau peut donc induire une dynamique de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$. Pour le moment, aucune estimation de l'amplitude des effets magnéto-élastiques en dynamique n'a été réalisée. Il semblerait toutefois que l'amplitude de ces effets dépende de l'orientation cristallographique du matériau [93]. D'où l'intérêt d'étudier des films minces d'un même matériau mais déposé selon différents axes cristallographiques. Ceci va dans le sens des observations faites sur Cu(111)/Ni/Cu et Cu(001)/Ni/Cu où l'allure temporelle dépend de l'orientation cristallographique [93].
- par une dynamique des constantes d'anisotropie. Une déformation du réseau peut également modifier les constantes d'anisotropie (section 1.1.2) et donc entraîner une réorientation du

⁸ce temps correspond à la propagation des phonons sur une distance comparable à la taille de la tache focale [101].

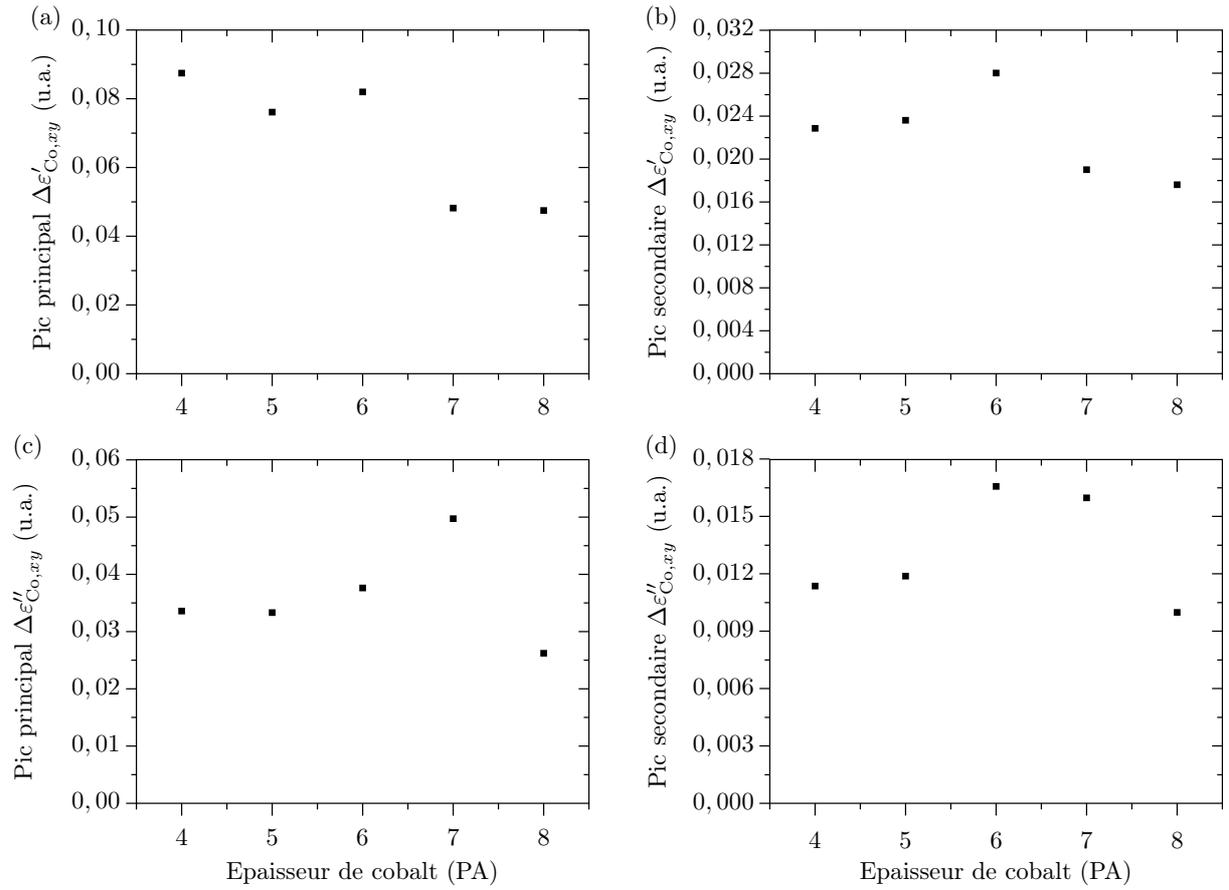


FIGURE 4.16: Evolution des pics principaux et secondaires des variations relatives des parties réelle et imaginaire de $\epsilon_{Co,xy}$ en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt. En (a) pic principal de la variation relative de $\epsilon'_{Co,xy}$, en (b) le pic secondaire. En (c) pic principal de la variation relative de $\epsilon''_{Co,xy}$, en (d) le pic secondaire.

vecteur aimantation \mathbf{M} . Une telle dynamique des constantes d'anisotropie pour le cobalt a déjà été observée dans la plage temporelle considérée ici [105]. Dans notre cas de figure, puisque l'on mesure la composante normale de l'aimantation au plan des couches, une réorientation de \mathbf{M} se traduirait par une variation relative de la rotation Kerr négative. Ceci va à l'encontre de nos observations.

4.3.5 Etude en épaisseur de cobalt

Les figures 4.16 montrent la dépendance des premiers et seconds pics des variations relatives des parties réelle et imaginaire de $\epsilon_{Co,xy}$ en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt à l'énergie de photon de sonde de 2,47 eV. Les graphes ont même allure aux autres énergies de sonde. Les courbes des figures 4.16 semblent indiquer une tendance des quantités mesurées à diminuer avec l'épaisseur de cobalt. Mais il n'y a pas de signature prononcée de l'épaisseur de cobalt.

4.3.6 Protocoles futurs pour accéder à la dynamique de désaimantation

Les variations temporelles de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ et $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$ ne permettent pas de discerner une dynamique de désaimantation. Il serait intéressant dans la poursuite de ces travaux d'essayer d'obtenir cette dynamique, puisqu'elle a été vue sur d'autres matériaux magnétiques. Pour cela, nous proposons plusieurs protocoles expérimentaux :

- utiliser une énergie de photon de sonde fortement hors résonance. Si les effets de redistribution des états électroniques évoqués ci-dessus sont prépondérants, on peut essayer à d'autres énergies du photon de sonde. Par exemple, en sondant le système hors résonance pour l'or, on devient moins « sensible » aux redistributions fines au voisinage du niveau de Fermi.
- utiliser la méthode différentielle à deux températures proposée par van Kampen et al. [10, 44, 93]. Cette méthode repose sur des dépendances en température différentes pour l'aimantation M et les facteurs de proportionnalité F' et F'' (expression 4.29). La mesure pompe-sonde de $\varepsilon'_{\text{Co},xy}$ s'écrit pour une température ambiante de départ T_1 :

$$\frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Co},xy}}{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} \Big|_{T_1} = \frac{\Delta F'}{F'} \Big|_{T_1} + \frac{\Delta M}{M} \Big|_{T_1}, \quad (4.34)$$

on obtient la même relation pour $\varepsilon''_{\text{Co},xy}$. En décrivant l'aimantation au retard pompe-sonde τ en terme de température équivalente de spin T_s calculée à partir de la dépendance en température statique de l'aimantation (références [44, 93]), on obtient :

$$\frac{\Delta M}{M} \Big|_{T_1} = \frac{dM_1/dT}{M_1} \Big|_{T_1} \Delta T_s. \quad (4.35)$$

En faisant l'hypothèse que les capacités calorifiques électroniques et du réseau et les facteurs de proportionnalité F' et F'' (expression 4.29) peuvent être considérés constants sur la plage de températures $[T_1 - T_2]$, on obtient en effectuant des mesures pompe-sonde aux températures ambiantes T_1 et T_2 :

$$\Delta T_s = A(T_1, T_2) \left[\frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Co},xy}}{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} \Big|_{T_1} - \frac{\Delta\varepsilon'_{\text{Co},xy}}{\varepsilon'_{\text{Co},xy}} \Big|_{T_2} \right], \quad (4.36)$$

avec $A(T_1, T_2)$ un facteur de proportionnalité linéaire en $T_2 - T_1$ pour des flux d'énergie faibles. Cette méthode repose sur la variation de pente dM_1/dT ; il faut donc se placer relativement près de la température de Curie T_C pour obtenir un effet notable, ce qui n'est pas évident pour le cobalt. Cette méthode différentielle à deux températures a permis de faire disparaître le changement de signe dans l'évolution temporelle de $\Delta\alpha/\alpha_0$ pour leur système multicouches à base de nickel et de pouvoir superposer sur toute la plage temporelle les courbes obtenues par cette méthode pour les signaux en rotation Kerr et ellipticité Kerr [10].

Cette méthode différentielle à deux températures devrait être tentée pour notre système multicouches Au/Co/Au : nos mesures statiques en température montrent que les facteurs F' et

F'' n'ont pas une dépendance en température plus « prononcée » que celle de l'aimantation (paragraphe 2.3.3), ce qui constitue un prérequis important de cette méthode.

4.3.7 Choix d'un autre matériau magnétique

Si l'on se reporte à la courbe d'aimantation en fonction de la température du cobalt donnée figure 2.10, une élévation de température de 140 K (paragraphe 4.2.3) conduit à une variation relative de l'aimantation de -1% pour le cobalt, donc faible devant l'effet magnéto-optique mesuré de 10% . Le cobalt avec sa température de Curie élevée ($T_C = 1394$ K [30]) ne semble pas être un bon « candidat » pour voir facilement des dynamiques de désaimantation dues à des échauffements laser. Il faudrait peut-être envisager d'étudier d'autres types de matériaux magnétiques tels que le nickel ou des alliages comme le CoPt_3 qui ont des températures de Curie notablement plus faibles que le cobalt massif (Ni : 631 K [30] et CoPt_3 : 690 K [8]). Ainsi, les effets d'élévation de température électronique seraient plus marqués à cause de la dépendance en température de l'aimantation plus rapide quand on se rapproche de T_C .

4.4 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre que le système Au/Co/Au en régime dynamique peut être considéré comme un système découplé : les dynamiques en transmission et en réflexion dépendent uniquement des variations de la constante diélectrique de l'or ε_{Au} et les dynamiques en rotation et ellipticité Kerr sont dominées par les variations du terme non diagonal $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ du cobalt.

La dynamique du gaz électronique dans la structure multicouches est différente de celle dans un film d'or : la couche ultramince de cobalt accélère la dynamique de relaxation du gaz électronique et ceci dans les deux régimes de thermalisation (interne et externe) du gaz assez bien décrit par un modèle simple, à savoir une moyenne pondérée sur les taux des matériaux avec des électrons délocalisés.

La dynamique du terme non diagonal du tenseur diélectrique du cobalt est difficile à interpréter. Il semblerait que plusieurs effets soient à considérer :

- aux temps courts (pendant la durée de la corrélation croisée pompe-sonde), des artefacts cohérents pourraient à l'origine des fortes variations de $\varepsilon_{\text{Co},xy}$,
- aux temps intermédiaires, nous privilégions deux hypothèses, à savoir des effets de redistribution des populations électroniques, et des effets magnéto-élastiques.

Une modélisation de l'évolution de la distribution électronique s'avérerait particulièrement intéressante pour essayer de comprendre la dynamique de relaxation du cobalt en particulier pour les différences éventuelles entre les deux populations de spin. En ce qui concerne le travail expérimental, la mise en œuvre de compresseurs temporels s'avère nécessaire pour étudier plus finement la thermalisation interne du gaz électronique dans le système multicouches et la mise en œuvre de la méthode différentielle à deux températures serait riche d'enseignements pour remonter à la dynamique de désaimantation du cobalt.

Conclusion

Dans cette thèse consacrée à l'étude d'une modification éventuelle de l'état d'aimantation de films nanométriques magnétiques par des impulsions lumineuses à une échelle sub-picoseconde, nous avons examiné la dynamique de charges et la dynamique magnéto-optique d'une structure multicouches Au/Co/Au.

Pour cela, nous avons développé un dispositif expérimental de mesures pompe-sonde à plusieurs couleurs en régime femtoseconde nécessitant la réalisation d'une source optique générant des impulsions ultracourtes dans une large gamme spectrale. Nous avons également mis en œuvre une technique de mesure originale de détection de la rotation Kerr magnéto-optique résolue en temps à l'échelle femtoseconde par une méthode de double-démodulation.

Dans un premier temps, nous avons étudié les propriétés magnétiques du système Au/Co/Au en régime statique. L'épaisseur de la couche de cobalt influe sur l'anisotropie magnétique du système multicouches, l'aimantation étant perpendiculaire au plan des couches aux faibles épaisseurs du cobalt (inférieures à 8 plans atomiques). Nous avons également vu que l'or amplifie la réponse magnéto-optique au voisinage du seuil des transitions interbandes, domaine spectral utilisé pour les mesures dynamiques.

Dans un second temps, nous avons procédé à l'étude résolue en temps sur le système multicouches Au/Co/Au au moyen d'expériences pompe-sonde à deux couleurs. Plusieurs résultats originaux sont apparus :

- la structure multicouches se comporte du point de vue des propriétés magnéto-optiques non-linéaires comme un matériau hybride avec les réponses en transmission et réflexion liées aux variations de la constante diélectrique de l'or et les réponses en rotation et ellipticité Kerr liées principalement aux variations du coefficient non-diagonal du tenseur diélectrique du cobalt. Ceci nous a permis de séparer l'étude de la dynamique du gaz électronique de celle en magnéto-optique. Ce résultat tient aux choix des énergies des photons de pompe (impulsion infrarouge) et de sonde (au voisinage du seuil des transitions interbandes de l'or).
- la couche mince de cobalt accélère fortement la dynamique de relaxation du gaz électronique dans le système multicouches. Ceci est sans doute dû à la structure très différente des métaux de transition par rapport aux métaux nobles, et en particulier aux électrons d très peu mobiles qui jouent le rôle de centres diffuseurs.
- la relation directe dans le régime statique entre le terme diélectrique $\varepsilon_{\text{Co},xy}$ du cobalt et son aimantation n'est plus valable en dynamique. Nous n'avons pas réussi à identifier dans nos signaux une désaimantation transitoire car masquée par d'autres effets que nous

avons discutés : artefacts cohérents, effets de redistribution électronique et effets magnéto-élastiques.

Dans la poursuite immédiate de ces travaux, nous avons proposé et discuté plusieurs voies de recherche :

- une modélisation de l'évolution de la distribution électronique serait intéressante pour comprendre la dynamique de relaxation du cobalt en particulier pour des différences éventuelles entre les deux populations de spin.
- la mise en œuvre de compresseurs temporels pour étudier plus finement la thermalisation interne du gaz électronique dans le système multicouches et pour étudier d'éventuels artefacts cohérents.
- la mise en œuvre de la méthode différentielle à deux températures serait riche d'enseignements pour remonter à la dynamique de désaimantation du cobalt.

Une autre voie de recherche consiste à étudier un système où les modifications des propriétés électroniques induites optiquement aient un effet pas seulement sur l'aimantation, mais aussi par exemple sur le couplage magnétique par interaction d'échange dans des nanostructures métalliques magnétiques. Un premier système d'étude pourrait être le système bicouche ferromagnétique Au/Co/Au/Co/Au. Dans une telle structure multicouches, les deux films de cobalt sont couplés par l'espaceur intermédiaire d'or [15, 106]. Le couplage dépend de l'épaisseur de l'espaceur d'or et peut être de type ferro ou antiferromagnétique. L'origine microscopique de l'oscillation de l'interaction d'échange entre les couches de cobalt provient du rôle de l'or espaceur sur la qualité de recouvrement des fonctions d'ondes des électrons proches du niveau de Fermi. Cette configuration constitue une voie originale pour étudier la dynamique du couplage entre les deux couches de cobalt. Au moyen de nos techniques optiques (sonde et pompe ajustables en longueur d'onde), il semble possible de modifier sélectivement la distribution électronique des métaux autour du niveau de Fermi et agir précisément sur les populations électroniques impliquées dans l'interaction d'échange. L'effet macroscopique observable pour ce système multicouches serait alors une modification photo-induite du couplage magnétique transmis par l'or espaceur, voire un renversement du signe de ce couplage. D'où une manipulation optique du couplage magnétique par le biais d'une excitation cohérente. Les travaux sur la structure élémentaire Au/Co/Au seront utiles à la compréhension des effets mesurés sur la structure multicouches Au/Co/Au/Co/Au.

Enfin, à plus long terme, cette thématique d'une mise en évidence d'une modification d'aimantation par déclenchement optique ultra-rapide peut s'ouvrir sur une autre direction de recherche : l'étude de nanoparticules de quelques nanomètres de diamètre en métal magnétique. Dans de tels systèmes nanométriques qui sont confinés dans les trois directions de l'espace, les fonctions d'ondes ont des profils spatiaux nettement différents, d'où la possibilité de photo-induire des effets magnétiques importants lors de l'excitation optique entre niveaux discrets. Quant aux applications potentielles de tels systèmes, elles semblent très nombreuses dans les domaines de stockage d'information.

Bibliographie

Bibliographie

- [1] M. AGRANAT, S. ASHITKOV, A. GRANOVSKII, et G. RUKMAN. Interaction of picosecond laser pulses with the electron, spin and phonon subsystems of nickel, *Sov. Phys. JETP*, **59**, 804 (1984).
- [2] A. VATERLAUS, T. BEUTLER, et F. MEIER. Spin-lattice relaxation time of ferromagnetic gadolinium determined with time-resolved spin-polarized photoemission, *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3314 (1991).
- [3] A. VATERLAUS, T. BEUTLER, D. GUARISCO, M. LUTZ, et F. MEIER. Spin-lattice relaxation time in ferromagnets studied by time-resolved spin-polarized photoemission, *Phys. Rev. B*, **46**, 5280 (1992).
- [4] W. HÜBNER et K. BENNEMANN. Simple theory for spin-lattice relaxation in metallic rare-earth ferromagnets, *Phys. Rev. B*, **53**, 3422 (1996).
- [5] E. BEAUREPAIRE, J. C. MERLE, A. DAUNOIS, et J. Y. BIGOT. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel, *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 4250 (1996).
- [6] J. HOHLFELD, E. MATTHIAS, R. KNORREN, et K. H. BENNEMANN. Nonequilibrium magnetization dynamics of nickel, *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 4861 (1997).
- [7] A. SCHOLL, L. BAUMGARTEN, R. JACQUEMIN, et W. EBERHARDT. Ultrafast spin dynamics of ferromagnetic thin films observed by fs spin-resolved two-photon photoemission, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 5146 (1997).
- [8] E. BEAUREPAIRE, M. MARET, V. HALTÉ, J. C. MERLE, A. DAUNOIS, et J. Y. BIGOT. Spin dynamics in CoPt₃ alloy films : a magnetic phase transition in the femtosecond time scale, *Phys. Rev. B*, **58**, 12134 (1998).
- [9] B. KOOPMANS, M. van KAMPEN, J. T. KOHLHEPP, et W. J. M. de JONGE. Ultrafast magneto-optics in nickel : magnetism or optics ?, *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 844 (2000).
- [10] B. KOOPMANS, M. van KAMPEN, et W. J. M. de JONGE. Experimental access to femtosecond spin dynamics, *J. Phys. : Condens. Matt.*, **15**, S723 (2003).
- [11] H. REGENSBURGER, R. VOLLMER, et J. KIRSCHNER. Time-resolved magnetization-induced second-harmonic generation from the Ni(110) surface, *Phys. Rev. B*, **61**, 14716 (2000).
- [12] L. GUIDONI, E. BEAUREPAIRE, et J. Y. BIGOT. Magneto-optics in the ultrafast regime : thermalization of spin populations in ferromagnetic films, *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 017401 (2002).

- [13] A. V. MELNIKOV, J. GÜDDE, et E. MATTHIAS. Demagnetization following optical excitation in nickel and permalloy films, *Appl. Phys. B*, **74**, 735 (2002).
- [14] T. KAMPFRATH, R. G. ULBRICH, F. LEUENBERGER, M. MÜNZENBERG, B. SASS, et W. FELSCH. Ultrafast magneto-optical response of iron thin films, *Phys. Rev. B*, **65**, 104429 (2002).
- [15] A. BOUNOUH. « *Effets d'interfaces et effets quantiques de taille dans les multicouches magnétiques ultraminces : étude par effet Kerr magnéto-optique in-situ* ». PhD thesis, Institut d'Electronique Fondamentale, Université Paris Sud Orsay, 1997.
- [16] R. MÉGY, A. BOUNOUH, Y. SUZUKI, P. BEAUVILLAIN, P. BRUNO, C. CHAPPERT, B. LECUYER, et P. VEILLET. Magneto-optical Kerr effect study of spin-polarized quantum well states in a Au overlayer on a Co (0001) ultrathin film, *Phys. Rev. B*, **51**, 5586 (1995).
- [17] U. CONRAD, J. GÜDDE, V. JÄHNKE, et E. MATTHIAS. Ultrafast electron and magnetization dynamics of thin Ni and Co films on Cu(001) observed by time-resolved SHG, *Appl. Phys. B*, **68**, 511 (1999).
- [18] J. GÜDDE, U. CONRAD, V. JÄHNKE, J. HOHLFELD, et E. MATTHIAS. Magnetization dynamics of Ni and Co films on Cu(001) and of bulk nickel surfaces, *Phys. Rev. B*, **59**, R6608 (1999).
- [19] M. HÉRITIER. « DEA de Physique des Solides, Magnétisme-Supraconductivité ». Université Orsay Paris XI, 2002).
- [20] C. LIU et S. D. BADER. Two-dimensional magnetic phase transition of ultrathin iron films on Pd(100), *J. Appl. Phys.*, **67**, 5758 (1990).
- [21] P. BRUNO. *J. Magn. Soc. Jpn*, Vol. 15, suppl. N°S1, 1991. PP 15-20.
- [22] C. H. BACK, Ch. WÜRSCH, A. VATERLAUS, U. RAMSPERGER, U. MAIER, et D. PRESCIA. Experimental confirmation of universality for a phase transition in two dimensions, *Nature*, **378**, 597 (1995).
- [23] L. R. SILL, M. B. BRODSKY, S. BOWEN, et H. C. HAMAKER. Magnetization of very thin Ni films in epitaxial metal film sandwiches of Cu, *J. Appl. Phys.*, **57**, 3663 (1985).
- [24] C. CHAPPERT. « *Ferromagnétisme de films ultraminces de nickel et de cobalt sur substrat d'or* ». PhD thesis, Institut d'Electronique Fondamentale, Université Paris Sud Orsay, 1985.
- [25] H. HASEGAWA. Finite-temperature magnetism of thin Ni films in sandwiches of Cu, *Surface Science*, **182**, 591 (1987).
- [26] S. FERRER, J. ALVAREZ, E. LUNDGREN, X. TORRELLES, P. FAJARDO, et F. BOSCHERINI. Surface X-ray diffraction from Co/Pt(111) ultrathin films and alloys : structure and magnetism, *Phys. Rev. B*, **56**, 9848 (1997).
- [27] Y. WU, J. STÖHR, B. D. HERMSMEIER, M. G. SAMANT, et D. WELLER. Enhanced orbital magnetic moment on Co atoms in Co/Pd multilayers : a magnetic circular X-ray dichroism study, *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2307 (1992).

- [28] C. TRAIN. « *Application de la mesure spectroscopique de l'effet Kerr magnéto-optique à la compréhension des effets magnétiques et magnéto-optiques dans les multicouches métalliques* ». PhD thesis, Université Paris Sud Orsay, 1998.
- [29] S. OULD-MAHFOUD. « *Anisotropie magnétique d'interface : étude expérimentale sur des couches ultraminces M/Co/Au(111) (M = Ag,Au,Cu,Pd,Pt)* ». PhD thesis, Institut d'Electronique Fondamentale, Université Paris Sud Orsay, 1994.
- [30] E. du Trémolet de LACHEISSERIE ED. *Magnétisme, volume I - Fondements*. EDP Sciences, Les Ulis, 2000.
- [31] P. BRUNO. « *Anisotropie magnétique et hystérésis du cobalt à l'échelle du plan atomique : théorie et expérience* ». PhD thesis, Institut d'Electronique Fondamentale, Université Paris Sud Orsay, 1989.
- [32] C. CHAPPERT et P. BRUNO. Magnetic anisotropy in metallic ultrathin films and related experiments on cobalt films, *J. Appl. Phys.*, **64**, 5736 (1988).
- [33] G. PENISSARD. « *Effets magnéto-optiques de structures en couches ultraminces Au/Co* ». PhD thesis, Université de Paris IX Orsay, 1993.
- [34] S. HUARD. *Polarisation de la lumière*. MASSON, Paris, 1994.
- [35] C. Y. YOU et S. C. SHIN. Generalized analytic formulae for magneto-optical Kerr effects, *J. Appl. Phys.*, **84**, 541 (1998).
- [36] J. ZAK, E. R. MOOG, C. LIU, et S. D. BADER. Magneto-optics of multilayers with arbitrary magnetization directions, *Phys. Rev. B*, **43**, 6423 (1991).
- [37] Š. VIŠŇOVSKÝ, R. LOPUŠNÍK, M. BAUER, J. BOK, J. FASSBENDER, et B. HILLEBRANDS. Magneto-optic ellipsometry in multilayers at arbitrary magnetization, *Optics Express*, **9**, 121 (2001).
- [38] Š. VIŠŇOVSKÝ, R. LOPUŠNÍK, M. NÝVLT, V. PROSSER, J. FERRÉ, C. TRAIN, P. BEAUVILLAIN, D. RENARD, R. KRISHNAN, et J. A. C. BLAND. Analytical expressions for polar magneto-optics in magnetic multilayers, *Czech. J. Phys.*, **50**, 857 (2000).
- [39] Š. VIŠŇOVSKÝ. Magneto-optic effects in ultrathin structures at longitudinal and polar magnetizations, *Czech. J. Phys.*, **48**, 1083 (1998).
- [40] Š. VIŠŇOVSKÝ, J. GŘONDILOVÁ, J. HAMRLE, R. LOPUŠNÍK, et N. KELLER. Polar and longitudinal magneto-optical Kerr effects in magnetic film/spacer/magnetic substrate system, *Czech. J. Phys.*, **51**, 1215 (2001).
- [41] P. BEAUVILLAIN. Communication privée.
- [42] H. R. HULME. The Faraday Effect in Ferromagnetics, *Proc. Roy. Soc. A*, **135**, 237 (1932).
- [43] P. N. ARGYRES. Theory of the Faraday and Kerr effects in ferromagnetics, *Phys. Rev.*, **97**, 334 (1955).
- [44] B. KOOPMANS. « *Laser-induced magnetization dynamics* ». in *Topics of Applied Physics : Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures II*, edited by Hillebrands and K. Ounadjela (Springer, New York, 2003). pp. 253-320.

- [45] H. S. BENNETT et E. A. STERN. Faraday Effect in Solids, *Phys. Rev.*, **137**, A448–A470 (1965).
- [46] J. L. ERSKINE et E. A. STERN. Magneto-Optic Kerr effects in Gadolinium, *Phys. Rev. B*, **8**, 1239 (1973).
- [47] K. BUSCHOW. « Handbook of magnetic materials ». volume 13 of Ferromagnetic materials, 2001. Elsevier, Amsterdam.
- [48] R. A. de GROOT, F. M. MUELLER, P. G. van ENGEN, et K. H. J. BUSCHOW. Half-metallic ferromagnetics and their magneto-optical properties, *J. Appl. Phys.*, **55**, 2151 (1984).
- [49] P. BRUNO, Y. SUZUKI, et C. CHAPPERT. Magneto-optical Kerr effect in a paramagnetic overlayer on a ferromagnetic substrate : a spin-polarized quantum size effect, *Phys. Rev. B*, **53**, 9214 (1996).
- [50] H. EBERT, P. STRANGE, et B. L. GYORFFY. *J. Physique*, **39**, C 8–31 (1988).
- [51] Š. VIŠŇOVSKÝ. Magneto-optical ellipsometry, *Czech. J. Phys.*, **B36**, 625 (1986).
- [52] T. KATAYAMA, Y. SUZUKI, H. AWANO, Y. NISHIHARA, et N. KOSHIZUKA. Enhancement of the magneto-optical Kerr rotation in Fe/Cu bilayered films, *Phys. Rev. Lett.*, **60**, 1426 (1988).
- [53] N. Del FATTI. « *Dynamique électronique femtoseconde dans les systèmes métalliques massifs et confinés* ». PhD thesis, Ecole Polytechnique, 1999.
- [54] C. VOISIN. « *Etude femtoseconde de la dynamique électronique et vibrationnelle dans des nanoparticules métalliques* ». PhD thesis, Université Paris XI Orsay, 2001.
- [55] N. W. ASHCROFT et N. D. MERMIN. *Solid State Physics*. Holt Saunders International Editions, Philadelphia, 1976.
- [56] D. PINES et P. NOZIÈRES. *The theory of quantum liquids, Vol. I : normal Fermi liquids*. W. A. Benjamin Inc., New York, 1966.
- [57] J. M. ZIMAN. *Principles of the theory of solids*. Cambridge, 1969.
- [58] D. W. SNOKE, W. W. RÜHLE, Y. C. LU, et E. BAUSER. Evolution of a nonthermal electron energy distribution in GaAs, *Phys. Rev. B*, **45**, 10979 (1992).
- [59] M. BAUER et M. AESCHLIMANN. « Dynamics of excited electrons in metals, thin film and nanostructures ». *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 2002.
- [60] C. K. SUN, F. VALLÉE, L. H. ACIOLI, E. P. IPPEN, et J. G. FUJIMOTO. Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold, *Phys. Rev. B*, **50**, 15337 (1994).
- [61] C. K. SUN, F. VALLÉE, L. H. ACIOLI, E. P. IPPEN, et J. G. FUJIMOTO. Femtosecond investigation of electron thermalization in gold, *Phys. Rev. B*, **48**, 12365 (1993).
- [62] W. S. FANN, R. STORZ, H. W. .K TOM, et J. BOKOR. Electron thermalization in gold, *Phys. Rev. B*, **46**, 13592 (1992).
- [63] J. M. ZIMAN. *Electrons and phonons*. Clarendon Press, Oxford, 1960.
- [64] E. M. CONWELL. *High field transport in semiconductors*. Academic Press, New York - London, 1967.

- [65] S. I. ANISIMOV, B. L. KAPELIOVICH, et T. L. PEREL'MAN. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses, *Eksp. Teor. Fiz*, **66**, 776 (1974). [*Sov. Phys. JETP* **39** 375 (1974)].
- [66] M. I. KAGANOV, I. M. LIFSHITZ, et L. V. TANATAROV. Relaxation between electrons and the crystalline lattice, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **31**, 232 (1957). [*Sov. Phys. JETP* **4** 173 (1957)].
- [67] P. B. CORKUM, F. BRUNEL, et N. K. SHERMAN. Thermal response of metals to ultrashort-pulse laser excitation, *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2886 (1988).
- [68] R. KNORREN, K. H. BENNEMANN, R. BURGERMEISTER, et M. AESCHLIMANN. Dynamics of excited electrons in copper and ferromagnetic transition metals : Theory and experiment, *Phys. Rev. B*, **61**, 9427 (2000).
- [69] M. AESCHLIMANN, M. BAUER, S. PAWLIK, W. WEBER, R. BURGERMEISTER, D. OBERLI, et H. C. SIEGMANN. Ultrafast spin-dependent electron dynamics in fcc Co, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 5158 (1997).
- [70] B. SINKOVIC, L. H. TJENG, N. B. BROOKES, J. B. GOEDKOOP, R. HESPER, E. PELLEGRIN, F. M. F. de GROOT, S. ALTIERI, S. L. HULBERT, E. SHEKEL, et G. A. SAWATZKY. Local electronic and magnetic structure of Ni below and above T_C : a spin-resolved circularly polarized resonant photoemission study, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 3510 (1997).
- [71] T. J. KREUTZ, T. GREBER, P. AEBI, et J. OSTERWALDER. Temperature-dependent electronic structure of nickel metal, *Phys. Rev. B*, **58**, 1300 (1998).
- [72] D. RENARD et G. NIHOUL. Crystal structure of a magnetic cobalt layer deposited on a (111) gold surface determined by transmission electron microscopy, *Phil. Magn. B.*, **55**, 75 (1987).
- [73] C. CESARI, J. P. FAURE, G. NIHOUL, K. Le DANG, P. VEILLET, et D. RENARD. Magnetic-properties of ferromagnetic thin sandwiches correlated to their crystallographic structure and interface morphology - HREM and NMR-study, *J. Magn. Magn. Mater.*, **78**, 296 (1989).
- [74] N. MLIKI, D. RENARD, et G. NIHOUL. Int. Coll. Magn. Films and Surf., Glasgow, 1991.
- [75] N. MLIKI, K. ABDELMOULA, G. NIHOUL, C. MARLIÈRE, et D. RENARD. Expansion of ultrathin cobalt films in (Au-Co) multilayers measured by diffraction methods, *Thin Solid Films*, **224**, 14 (1993).
- [76] C. MARLIÈRE, D. RENARD, et J. P. CHAUVINEAU. Study of interface roughness and crystallographic structure of Au/Co/Au sandwiches, *Thin Solid Films*, **201**, 317 (1991).
- [77] J. BADOZ, M. BILLARDON, J. C. CANIT, et M. F. RUSSEL. Sensitive devices to determine state and degree of polarization of a light-beam using a birefringence modulator, *J. Optics (Paris)*, **8**, 373 (1977).
- [78] K. SATO. Measurement of magneto-optical Kerr effect using piezo-birefringent modulator, *J. Appl. Phys.*, **20**, 2403 (1981).
- [79] P. B. JOHNSON et R. W. CHRISTY. Optical constants of the noble metals, *Phys. Rev. B*, **6**, 4370 (1972).

- [80] CRC. *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 63rd Edition*. CRC Press, New York, 1982-1983.
- [81] H. BRAENDLE, D. WELLER, J. C. SCOTT, S. S. P. PARKIN, et C. J. LIU. *IEEE Trans. Magn.*, **28**, 2967 (1992).
- [82] « Melles Griot ». Catalogue.
- [83] Š. VIŠŇOVSKÝ, M. NÝVLT, V. PROSSER, R. LOPUŠNÍK, R. URBAN, J. FERRÉ, G. PÉNISSARD, D. RENARD, et R. KRISHNAN. Polar magneto-optics in simple ultrathin-magnetic-film structures, *Phys. Rev. B*, **52**, 1090 (1995).
- [84] Š. VIŠŇOVSKÝ, M. NÝVLT, V. PROSSER, J. FERRÉ, G. PÉNISSARD, D. RENARD, et G. SCZIGEL. Magneto-optical effects in Au/Co/Au ultrathin film sandwiches, *J. Magn. Magn. Mater.*, **128**, 179 (1993).
- [85] M. D. KUZ'MIN. Shape of temperature dependence of spontaneous magnetization of ferromagnets : quantitative analysis, *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 107204 (2005).
- [86] J. FERRÉ, G. PÉNISSARD, C. MARLIÈRE, D. RENARD, P. BEAUVILLAIN, et J. P. RENARD. Magneto-optical studies of Co/Au ultrathin metallic films, *Appl. Phys. Lett.*, **56**, 1588 (1990).
- [87] E.-B. TREACY. Optical pulse compression with diffraction gratings, *IEEE Journ. Quant. Electr.*, **QE-5**, 454 (1969).
- [88] COHERENT. « Operator's Manual RegA Model 9000 Laser », 2002.
- [89] M. K. REED, M. K. STEINER-SHEPARD, et D. K. NEGUS. Widely tunable femtosecond optical parametric amplifier at 250 kHz with a Ti : sapphire regenerative amplifier, *Opt. Soc. Amer.*, **19**, 1855 (1994).
- [90] J. Y. COURTOIS. « Optique non linéaire ». Les lasers et leurs applications scientifiques et médicales chez EDP Sciences, 1996-2002. chapitre en ligne sur <http://www.bibsciences.org/>.
- [91] D. EIMERL, L. DAVIS, S. VELSKO, E. K. GRAHAM, et A. ZALKIN. Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate, *J. Appl. Phys.*, **62**, 1968 (1987).
- [92] E. P. IPPEN et C. V. SHANK. « Techniques for measurement ». Topics in Applied Physics, Vol.18, S.L.Shapiro Eds., Springer Verlag, 1977.
- [93] M. van KAMPEN. « *Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic metals* ». PhD thesis, Technische Universiteit Eindhoven, 2003.
- [94] B. KOOPMANS, M. van KAMPEN, J. T. KOHLHEPP, et W. J. M. de JONGE. Femtosecond spin dynamics of epitaxial Cu(111)/Ni/Cu wedges, *J. Appl. Phys.*, **87**, 5070 (2000).
- [95] J. Y. BIGOT, L. GUIDONI, E. BEAUREPAIRE, et P. N. SAETA. Femtosecond spectrotemporal magneto-optics, *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 077401 (2004).
- [96] S. MUKAMEL. *Nonlinear Optical Spectroscopy*. Oxford, New York, 1999.
- [97] R. ROSEI, F. ANTONANGELI, et U. M. GRASSANO. d bands position and width in gold from very low temperature thermomodulation measurements, *Surf. Sci.*, **37**, 689 (1973).

- [98] R. ROSEI. Temperature modulation of the optical transitions involving the Fermi surface in Ag : Theory, *Phys. Rev. B*, **10**, 474 (1974).
- [99] E. KNOESEL, A. HOTZEL, et M. WOLF. Ultrafast dynamics of hot electrons and holes in copper : excitation, energy relaxation and transport effects, *Phys. Rev. B*, **57**, 12812 (1998).
- [100] E. ZARATE, P. APELL, et P. M. ECHENIQUE. Calculation of low-energy-electron lifetimes, *Phys. Rev. B*, **60**, 2326 (1999).
- [101] S. D. BRORSON, J. G. FUJIMOTO, et E. P. IPPEN. Femtosecond electronic heat transport dynamics in thin gold films, *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1962 (1987).
- [102] GOLDSMITH, WATERMAN, et HIRSCHHORN. *Handbook of thermophysical properties of solid materials, Volume 1*. Macmillan Publishing Company, New-York, 1961.
- [103] C. KITTEL. *Physique de l'état solide, 7ème édition*. Dunod, Paris, 1998.
- [104] J. HOHLFELD. *Ultrafast electron-, lattice- and spin-dynamics in metals*. VWF Verlag für Wissenschaft und Forschung GmbH, Berlin, 1998.
- [105] J. Y. BIGOT, M. VOMIR, L. H. F. ANDRADE, et E. BEAUREPAIRE. Ultrafast magnetization dynamics in ferromagnetic cobalt : the role of the anisotropy, *Chem. Phys.*, **318**, 137 (2005).
- [106] V. GROLIER, D. RENARD, B. BARTENLIAN, P. BEAUVILLAIN, C. CHAPPERT, C. DUPAS, J. FERRÉ, M. GALTIER, E. KOLB, M. MULLOY, J. P. RENARD, et P. VEILLET. Unambiguous evidence of oscillatory magnetic coupling between Co layers in ultrahigh vacuum grown Co/Au(111)/Co trilayers, *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 3023 (1993).

Résumé : Ce mémoire de thèse a pour sujet la dynamique en magnéto-optique du système Au/Co/Au avec une résolution temporelle sub-picoseconde, la couche de cobalt étant ultramince (quelques plans atomiques d'épaisseur). Au cours de ce travail, nous avons réalisé un dispositif expérimental de mesures pompe-sonde à deux couleurs, nécessitant la confection d'une source optique femtoseconde (OPA), et mis en œuvre des techniques de double-démodulation pour déterminer la réponse magnéto-optique transitoire du système. Dans les gammes d'énergies de photon utilisées, le système Au/Co/Au se comporte du point de vue des propriétés magnéto-optiques non-linéaires comme un matériau hybride où les dynamiques de transmission et de réflexion sont dues à la constante diélectrique de l'or et les dynamiques de rotation Kerr complexe sont principalement dues au terme non diagonal du tenseur diélectrique du cobalt. Nous avons montré que la couche mince de cobalt accélère fortement la dynamique de relaxation du gaz électronique dans le système multicouches par rapport à celle dans un film d'or. En ce qui concerne la relaxation de l'aimantation du cobalt, nous avons constaté qu'il n'y a pas de relation directe entre la dynamique des observables et celle de l'aimantation : nous n'avons pas réussi à identifier dans nos signaux une désaimantation transitoire car masquée par d'autres effets magnéto-optiques que nous avons discutés.

Mots clés : Films ultraminces ferromagnétiques — Effet Kerr magnéto-optique — Lasers femtosecondes — Pompe-Sonde — Double démodulation — Physique hors équilibre.

Abstract : This manuscript deals with the topic of time-resolved magneto-optical properties of Au/Co/Au. The temporal resolution is sub-picosecond and the layer of cobalt is ultrathin (several atomic-layer thick). During this work, we built an experimental set-up of two-color pump-probe measurements which required the confection of a femtosecond optical source (OPA). Double-demodulation techniques provided the dynamical magneto-optical response of the system. Within the investigated spectral range, the Au/Co/Au system can be considered as a hybrid material as far as its non-linear magneto-optical properties are concerned : the temporal evolutions of transmission and reflection spectra are due to the dielectric constant of gold. The temporal evolutions of the complex Kerr rotation spectra can be mainly put on the account of the non-diagonal term of the dielectric tensor of cobalt. We demonstrated that the ultrathin cobalt layer deeply fastens the relaxation of the electronic gas in the multilayer system in comparison with the one in a gold layer. As regards to the magnetization relaxation, we noticed that no direct relation between the magnetization and the optical measurements exists in this ultra-fast regime. No instantaneous demagnetization in our system has been observed because of several magneto-optical effects that we discussed.

Keywords : Ferromagnetic ultrathin layers — Magneto-optical Kerr effect — Femtosecond lasers — Pump-Probe — Double-demodulation — Out of equilibrium Physics.