



**HAL**  
open science

# Dynamique ultrarapide de l'aimantation dans les alliages de métaux de transitions et de terres rares

Tom Ferté

► **To cite this version:**

Tom Ferté. Dynamique ultrarapide de l'aimantation dans les alliages de métaux de transitions et de terres rares. Matière Condensée [cond-mat]. Université de Strasbourg, 2017. Français. NNT : 2017STRAE018 . tel-01717409

**HAL Id: tel-01717409**

**<https://theses.hal.science/tel-01717409>**

Submitted on 26 Feb 2018

**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.

*ÉCOLE DOCTORALE de Physique et Chimie-Physique*  
Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg

**THÈSE** présentée par :  
**Tom FERTÉ**

soutenue le : **06 décembre 2017**

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université de Strasbourg**  
Discipline/ Spécialité : Physique de la matière condensée

**Dynamique ultrarapide de l'aimantation dans les  
alliages de métaux de transitions et de terres  
rares**

**THÈSE dirigée par :**

**Mme BOEGLIN Christine**  
**Mr PETIT Sylvain**

Directrice de recherche, université de Strasbourg  
Ingénieur chercheur, université Paris-Saclay

**RAPPORTEURS :**

**Mr MANGIN Stéphane**  
**Mr HRICOVINI Karol**

Professeur, université de Lorraine  
Professeur, université de Cergy-Pontoise

**AUTRES MEMBRES DU JURY :**

**Mme HALTE-FILIPPI Valérie**

Professeur, université de Strasbourg

---

**INVITÉS :**

**Mr SIROTTI Fausto**  
**Mr BERGEARD Nicolas**

Directeur de recherche, université de Paris-Saclay  
Chargé de recherche, université de Strasbourg



# Remerciements

Je souhaite tout d'abord remercier Christine Boeglin qui a encadré mon travail de thèse. Grâce à toi j'ai appris beaucoup et toujours dans une ambiance agréable. Merci d'avoir été présente pour répondre à toutes mes questions et du temps que tu m'as consacré. Merci également pour les bons moments passés lors des expériences synchrotron. Je remercie également Sylvain Petit d'avoir accepté d'être le co-directeur de ma thèse ainsi que pour son aide lors de la rédaction de ce manuscrit. Un grand merci à Nicolas Bergéard pour toutes les discussions, pour tous les bons moments partagés et pour toute l'aide que tu m'as apporté.

Je remercie particulièrement Karol Hricovini et Stéphan Mangin d'avoir accepté d'être les rapporteurs de mon manuscrit. Je remercie également Valérie Halté-Filippi et Fausto Sirotti d'avoir accepté de participer à mon jury.

La quasi-totalité des mesures présentées dans ce manuscrit proviennent d'expériences réalisées aux synchrotrons SOLEIL et BESSY II. Le succès d'une expérience sur un synchrotron dépend beaucoup des scientifiques qui accueillent les utilisateurs. Je souhaite donc remercier toutes les personnes qui ont contribué à la réussite de cette thèse : Fausto Sirotti, Silly Mathieu, Karsten Holldack, Torsten Kachel, Nicolas Pontius, Edwige Otero, Radu Abrudan, Florin Radu. Merci également à tout ceux que j'ai rencontrés lors de collaborations scientifiques : Emmanuelle Jal, Victor Lopez-Flores, Nicolas Jaouen, Jan Luning, Marie-Agnès Tordieu, Marwan Deb, Grégory Malinowski, Michel Hehn, Stéphane Mangin.

J'ai réalisé les 3 ans de ma thèse dans le département Surfaces et Interfaces (DSI) et je souhaite donc remercier toutes les personnes qui constituent ce département. Je remercie également toutes les personnes de l'IPCMS avec qui j'ai été amené à travailler ou à discuter.

Merci également à toutes les personnes avec qui j'ai passé de bons moments le midi et même plus : Michèle, Yohann, Marie, Monica, Erwan, Jean-Sébastien, François, Nicolas, Christine, Valérie, Nabila.

Je souhaite remercier tous ceux qui ont participé à l'activité sportive : Rugby et en particulier le noyau dur de rugbyman/rugbywoman : Anastasia, Arthur, Etienne, Guillaume, Guillaume R., Jean-Luc, Thierry, Olivia. J'ai découvert un nouveau sport grâce à vous. Je remercie également toutes les personnes avec qui j'ai pu jouer au foot. Grâce à vous le football est remonté dans mon estime.

Je remercie aussi tous mes amis avec qui j'ai fait la fête, voyagé, partagé, décompressé, au cours de cette thèse. Je souhaite remercier mon frère Morgan pour avoir été mon grand frère. A mes yeux tu as toujours "grimpé en tête". Merci de m'avoir ouvert la voie. Je remercie bien évidemment mes parents qui ont fortement contribué à ma naissance et envers qui je serai toujours reconnaissant pour leur ouverture d'esprit ainsi que pour l'éducation qu'ils m'ont offert. Et la meilleure pour la fin, je remercie énormément Mélissa qui m'a soutenu, supporté et encouragé pendant ces nombreuses années. Merci pour ton aide lors de la rédaction du manuscrit. Pour cela et pour bien d'autres choses encore je t'en suis très reconnaissant.

Quelque part, quelque chose d'incroyable attend d'être connu.

Carl Sagan

# Table des matières

Introduction.....	9
I. Dynamique ultrarapide de l'aimantation, alliages MT-TR et techniques expérimentales.....	13
I.1. La Dynamique ultrarapide de l'aimantation.....	14
I.1.1. Les différentes excitations.....	14
I.1.2. Les modèles théoriques.....	14
I.2. Les alliages MT-TR.....	17
I.2.1. Les alliages MT-TR : généralités, concepts et terminologies.....	17
I.2.2. Les alliages MT-TR : dynamique ultrarapide de l'aimantation.....	19
I.3. Les techniques expérimentales.....	21
I.3.1. Le dichroïsme magnétique circulaire des rayons X (XMCD).....	21
I.3.2. tr-XMCD.....	24
I.3.3. tr-MCDAD.....	25
II. Description des expériences et des échantillons.....	29
II.1. Les différents montages expérimentaux.....	30
II.1.1. Synchrotrons SOLEIL et BESSY II.....	30
II.1.1.1. Synchrotron SOLEIL.....	30
II.1.1.2. Synchrotron BESSY II.....	31
II.1.2. Mesures statiques : lignes de lumières et stations expérimentales.....	31
II.1.2.1. La station cryoMag de la ligne DEIMOS.....	32
II.1.2.2. La station ALICE de la ligne PM3.....	32
II.1.3. Mesures dynamiques : lignes de lumières et stations expérimentales.....	33
II.1.3.1. La station UHV Photoémission de la ligne TEMPO.....	33
II.1.3.2. La station Femtoslicing de la ligne UE56-ZPM.....	37
II.2. Élaboration, structure et caractérisation des échantillons.....	41
II.2.1. La pulvérisation cathodique magnétron.....	41
II.2.2. Structures des échantillons.....	42
II.2.2.1. Structure générale des échantillons.....	42
II.2.2.2. Structures détaillés des échantillons.....	43
II.2.2.3. Structure cristallographique des différents matériaux et anisotropie magnétique.....	44

III. Dynamiques ultrarapides des spins 4f du Gd induites par une impulsion laser dans les alliages $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$ .....	47
III.1. Caractérisations magnétiques et chimiques .....	49
III.1.1. Caractérisations magnétiques.....	49
III.1.1.1. Mesures VSM-SQUID et PPMS : cycles d'hystérésis et $M(T)$ .....	49
III.1.1.2. Mesures MOKE : cycles d'hystérésis et champs coercitifs .....	51
III.1.2. Caractérisation chimiques .....	53
III.1.2.1. Mesures AES : échantillon $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ .....	53
III.1.2.2. Mesures AES : comparaisons entre les différents échantillons $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$ .....	59
III.1.3. Caractérisations magnétiques : évolution du signal XMCD de la surface et du volume en fonction de la température .....	61
III.1.3.1. Géométrie de mesure et échantillons .....	61
III.1.3.2. Mesures TEY et XAS : cycles d'hystérésis et XMCD(T) .....	61
III.1.3.3. Estimation de la variation du XMCD de la monocouche de Gd .....	64
III.2. Mesures statiques sur la ligne TEMPO.....	66
III.2.1. Cartographie de la surface après BI.....	66
III.2.2. Mesures XPS : caractérisations chimiques et magnétiques .....	66
III.2.3. Influence du laser sur l'échantillon .....	68
III.2.3.1. Stabilité chimique de la surface au cours et après l'expérience pompe-sonde .....	68
III.2.3.2. Détérioration de la surface causée par une fluence laser trop forte .....	70
III.2.3.3. Estimation de l'augmentation de la température de l'échantillon via le laser.....	71
III.3. Mesures dynamiques sur la ligne TEMPO .....	73
III.3.1. Mesure de la dynamique ultrarapide : mode hybride .....	73
III.3.2. Mesures des dynamiques ultrarapides en low-alpha.....	75
III.4. Interprétations, conclusions et ouvertures .....	78
III.4.1. Interprétations et conclusions .....	78
III.4.2. Ouvertures : suite du projet et développement du slicing à SOLEIL.....	80
IV. Rôle de la température de compensation dans la dynamique de désaimantation ultrarapide .....	83
IV.1. Caractérisations magnétiques statiques des alliages $\text{CoDy}$ .....	85
IV.1.1. Le choix de la concentration des alliages $\text{CoDy}$ .....	85
IV.1.2. $T_{\text{comp}}$ , $T_C$ et cycles d'hystérésis des alliages $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ et $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$ .....	86
IV.1.3. Spectres d'absorptions des rayons X et moments magnétiques des alliages $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ et $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$ .....	89
IV.2. Mesures des désaimantations ultrarapides par XMCD résolues en temps.....	94
IV.2.1. Détails des conditions expérimentales .....	94
IV.2.1.1. Températures de Curie, de compensation et d'équilibre. ....	94
IV.2.1.2. Configuration géométrique .....	95
IV.2.2. Désaimantation ultrarapide du Co et du Dy. ....	95

IV.3. Discussions et interprétations .....	100
IV.4. Conclusions et ouvertures.....	102
V. Désaimantation ultrarapide induite par des électrons chauds dans les alliages Co <sub>74</sub> Tb <sub>26</sub> et Co <sub>80</sub> Dy <sub>20</sub> .....	105
V.1. Empilements des échantillons et justification des capping.....	107
V.1.1. Empilements des échantillons des alliages Co <sub>74</sub> Tb <sub>26</sub> et Co <sub>80</sub> Dy <sub>20</sub> .....	107
V.1.2. Justification des capping .....	108
V.1.2.1. Le choix du cuivre.....	108
V.1.2.2. L'ajout de Pt et de Co/Ni .....	110
V.2. Caractérisations magnétiques statiques des alliages Co <sub>74</sub> Tb <sub>26</sub> et Co <sub>80</sub> Dy <sub>20</sub> .....	115
V.2.1. Caractérisations magnétiques statiques de l'alliage Co <sub>74</sub> Tb <sub>26</sub> .....	115
V.2.2. Caractérisations magnétiques statiques de l'alliage Co <sub>80</sub> Dy <sub>20</sub> .....	116
V.3. Désaimantation ultrarapide dans l'alliage Co <sub>74</sub> Tb <sub>26</sub> et Co <sub>80</sub> Dy <sub>20</sub> .....	118
V.3.1. Désaimantation ultrarapide des électrons 4f du Tb dans l'alliage Co <sub>74</sub> Tb <sub>26</sub> .....	118
V.3.2. Co <sub>74</sub> Tb <sub>26</sub> : interprétations et discussions.....	120
V.3.2.1. Les décalages temporels des désaimantations.....	120
V.3.2.2. Les amplitudes de désaimantations .....	121
V.3.2.3. Les temps caractéristiques des désaimantations .....	123
V.3.3. Désaimantation ultrarapide des électrons 3d Co et 4f Dy dans l'alliage CoDy .....	124
V.3.4. Co <sub>80</sub> Dy <sub>20</sub> : Interprétations et discussions .....	128
V.3.4.1. Les décalages temporels des désaimantations.....	128
V.3.4.2. Les amplitudes de désaimantations .....	130
V.3.4.3. Les temps caractéristiques des désaimantations .....	130
V.4. Conclusions et ouvertures .....	133
Résumé.....	164





# Introduction

Les premières traces écrites décrivant certaines propriétés magnétiques de la matière remontent à l'Antiquité. Autour de l'an 1000, l'humanité utilisa la boussole pour mieux se situer à la surface de la Terre. La boussole est la pierre angulaire de l'exploration maritime qui a permis de nombreuses découvertes ainsi que d'établir des liens entre les différentes civilisations humaines. De nos jours, de nombreuses applications technologiques utilisent les propriétés des matériaux magnétiques (générateurs et transformateurs électriques, moteurs électriques, disques durs, MRAM, IRM, accélérateurs de particules...). Parmi ces applications, le stockage et la lecture des données numériques dans des dispositifs magnétiques, tels que les disques durs ou les MRAM, sont parmi nos enjeux technologiques majeurs. En effet, la technologie des disques durs ne cesse de progresser du fait de l'augmentation exponentielle de la quantité de données numériques créées et échangées. En 2010, l'humanité a produit en 2 jours 5 exaoctets (soit  $5 \cdot 10^{18}$  octets) d'informations soit environ autant qu'entre le début de la civilisation humaine et 2003. On annonce qu'en 2020 la quantité d'information mondiale sera de 44 Zo (soit  $44 \cdot 10^{21}$  octets) [1]. Les développements actuels visent d'une part à augmenter la densité de stockage et d'autre part à augmenter la vitesse de lecture/écriture des disques durs afin de traiter l'information plus rapidement. Les enjeux économiques liés au problème des "big data" expliquent l'engouement des chercheurs à travers le monde pour l'étude de la dynamique de l'aimantation dans des matériaux nanostructurés.

Dans un disque dur, un bit d'information est stocké dans la direction de l'aimantation d'un petit volume de matière. Pour écrire l'information il est nécessaire de pouvoir manipuler l'orientation de l'aimantation codant le bit. Actuellement, l'écriture de l'information sur un disque dur est réalisée grâce à un électroaimant générant un champ magnétique extérieur appliqué localement. Les fréquences maximales d'écriture sont de l'ordre du GHz [2]. Afin d'augmenter la vitesse d'écriture de l'information sur des matériaux magnétiques plusieurs pistes sont actuellement étudiées. Il a été montré expérimentalement que l'injection d'électrons polarisés en spin dans un matériau magnétique peut exercer un couple sur l'aimantation de ce matériau [3,4] et conduire au retournement de l'aimantation en une dizaine de ns [5]. Récemment, plusieurs études ont montré qu'il est possible de générer des impulsions femtosecondes (fs) d'électrons polarisés en spins et de les utiliser pour manipuler l'aimantation [6-8]. Une autre piste étudiée est la manipulation de l'aimantation par des impulsions lasers. Il a été montré expérimentalement qu'une impulsion unique fs de photons polarisés linéairement peut retourner l'aimantation d'un matériau magnétique en quelques picosecondes (ps) [9,10]. Ces deux pistes permettent d'entrevoir la possibilité de retourner l'aimantation d'un bit sur des fréquences de l'ordre de la centaine de GHz jusqu'au THz [11]. Il est donc primordial de comprendre les mécanismes de l'interaction entre les impulsions laser ou les impulsions d'électrons avec un matériau magnétique pour le développement et l'optimisation de cette technologie.

En 1996, des chercheurs Strasbourgeois [12] ont montré qu'un film de Ni excité par une impulsion laser fs se désaimante en moins d'une ps. Cette découverte rendue possible par le développement de lasers pulsés infrarouges (IR) fs a ouvert la voie à un nouveau domaine de la physique : le femtomagnétisme. Depuis, de nombreuses études théoriques et expérimentales ont été effectuées dans le but de comprendre les mécanismes physiques à l'origine de cette désaimantation ultrarapide dans différents systèmes magnétiques tels que les métaux de transition (MT), les terres rares (TR) ou les alliages MT-TR [6-127,184-186]. En 2013, Eschenlohr et al. [69] montrent expérimentalement qu'il est également possible d'induire une désaimantation ultrarapide d'un film de Ni par l'injection d'une impulsion d'électrons chauds non polarisés, générés via une impulsion laser fs. Depuis, d'autres articles ont confirmé ce processus dans les MT [106-108]. Malgré toutes les recherches dans ce domaine et une grande variété de mécanismes physiques proposés, aucun consensus n'a émergé et il n'existe pas de modèle unique qui permet d'interpréter toutes les mesures expérimentales effectuées [95,126]. De nombreuses questions sont toujours en suspens. Celle qui a motivé mon travail, concerne l'origine des différences de dynamique ultrarapide de l'aimantation des MT, dont le moment magnétique est porté par des électrons itinérants, et des TR, dont le moment magnétique est porté par des électrons localisés. Ces différences de dynamiques restent présentes dans les alliages MT-TR. En effet, toutes les études existantes dans la littérature montrent que la dynamique ultrarapide de l'aimantation est différente pour les MT et les TR [9,10,61,71,80,127]. Les auteurs y étudient les différents aspects suivants : (1) le retournement tout optique de l'aimantation et l'existence d'un état ferromagnétique transitoire entre les MT et les TR alors qu'à l'équilibre ce couplage est ferrimagnétique [9,10,61], (2) le transfert de moment angulaire entre les différents sous réseaux [80] entre des grains de différentes concentrations [61], (3) le rôle de la température de compensation et de la température de Curie sur la dynamique de désaimantation [71] et (4) la corrélation entre le moment magnétique et le temps caractéristique de désaimantation [127].

Dans la littérature, nous constatons qu'il y a très peu d'études expérimentales complètes concernant la dynamique ultrarapide de l'aimantation des alliages MT-TR, c'est-à-dire qui mesurent les dynamiques des deux sous réseaux (TR et MT) [9,10,61,71,80,127]. De plus, jusqu'à présent, aucune étude n'a été effectuée sur la désaimantation ultrarapide des TR dans les alliages MT-TR induite par des impulsions d'électrons chauds. C'est dans le but d'apporter plus de résultats expérimentaux et une meilleure compréhension des processus physiques impliqués que j'ai travaillé sur le thème de la "Dynamique ultrarapide de l'aimantation dans les alliages de métaux de transitions et de terres rares". La technique expérimentale la plus couramment utilisée pour étudier la dynamique ultrarapide de l'aimantation est le tr-MOKE (time-resolved Magneto-Optic Kerr Effect). Cependant, cette technique ne permet pas de mesurer séparément la dynamique des MT et des TR. La technique de tr-XMCD (time-resolved X-ray Magnetic Circular Dichroism) utilisant des impulsions de rayons X polarisés circulairement offre une sélectivité chimique et une sensibilité à l'aimantation, ce qui rend possible la mesure de la dynamique ultrarapide de l'aimantation des MT et des TR séparément. Actuellement ce type de rayons X peut être généré par des sources de laboratoire par génération de hautes harmoniques (HHG) [59,97,128] ou dans les très grandes infrastructures de recherche (TGIR) (synchrotrons ou X-ray Free Electron Laser (X-FEL)) [9,10,61,71,80,103,127]. Dans les synchrotrons, c'est la technique dite du "Slicing" qui permet de générer des impulsions de rayons X ultra brèves ( $\sim 100$  fs). Ce développement

technologique a permis de réaliser de nombreuses études originales [9,25,39,43,55,71,80]. Au cours de mon doctorat de 3 ans je me suis servi du rayonnement généré par deux synchrotrons (SOLEIL et BESSY II) ayant chacun leurs caractéristiques propres (flux de rayons X, résolution temporelle, résolution énergétique, stations expérimentales...). J'ai réalisé 3 projets scientifiques tous centrés sur l'étude des dynamiques dans les alliages MT-TR : 1 à SOLEIL et 2 à BESSY II. Le manuscrit de thèse est organisé en 5 chapitres :

1. Dans le premier chapitre, qui est introductif, je présente de manière générale la dynamique ultrarapide de l'aimantation. Ensuite, je décris les propriétés magnétiques générales des alliages MT-TR. Je poursuis par la présentation de la technique de dichroïsme magnétique circulaire des rayons X résolue en temps.

2. Dans le deuxième chapitre, je présente les principaux montages expérimentaux qui m'ont permis d'étudier les propriétés magnétiques statiques ainsi que la dynamique ultrarapide de l'aimantation induite par des impulsions laser ou d'électrons chauds. Je décris ensuite la croissance ainsi que les échantillons étudiés au cours de ma thèse. Je montre comment le choix de la structure et des matériaux permet de s'adapter aux contraintes des différents montages expérimentaux.

3. Le troisième chapitre présente le projet réalisé sur la ligne TEMPO du synchrotron SOLEIL [129]. Il concerne l'étude des dynamiques ultrarapides des spins 4f du Gd dans différents alliages CoGd induites par une impulsion laser IR polarisée linéairement. Cette étude a permis de décrire la dynamique ultrarapide de l'aimantation par l'un des nombreux modèles théoriques existant [30]. Cette étude est réalisée en mesurant les photoélectrons émis par la surface de l'alliage CoGd (sur environ 1 nm d'épaisseur).

4. Le quatrième chapitre présente le premier projet réalisé sur la chambre Femtoslicing du synchrotron BESSY II. Il concerne l'étude du rôle de la température de compensation dans la désaimantation ultrarapide induite par une impulsion laser IR fs polarisée linéairement. Nous étudions ici la désaimantation ultrarapide à  $T < T_{\text{comp}}$  et  $T > T_{\text{comp}}$  et discutons de l'interprétation de nos résultats expérimentaux en nous appuyant sur la bibliographie.

5. Le cinquième chapitre présente le deuxième projet réalisé sur la ligne Femtoslicing du synchrotron BESSY II. Il concerne l'étude des désaimantations ultrarapides induites par différentes impulsions d'électrons chauds dans plusieurs alliages magnétiques (CoTb et CoDy). L'originalité de mon travail repose principalement sur la mesure expérimentale des dynamiques de la TR et du MT. Je montre que ces 2 éléments (TR et MT) ne présentent pas la même vitesse de désaimantation pour les différentes excitations (photons, électrons chauds).



# I. Dynamique ultrarapide de l'aimantation, alliages MT-TR et techniques expérimentales

Ce chapitre présente la dynamique ultrarapide de l'aimantation de manière générale. La deuxième partie est dédiée aux propriétés des alliages MT-TR. La dernière partie détaille les techniques expérimentales qui permettent de mesurer séparément la dynamique ultrarapide de l'aimantation des MT et des TR avec une résolution de  $\sim 100$  fs.

# I.1. La Dynamique ultrarapide de l'aimantation

## I.1.1. Les différentes excitations

Il existe plusieurs moyens d'induire une dynamique ultrarapide de l'aimantation d'un matériau magnétique. La plupart des études expérimentales utilisent un laser IR ( $\lambda = 780-800$  nm soit  $E_{h\nu} \approx 1,55$  eV) fs pour exciter les matériaux magnétiques. Plus récemment différentes énergies de photons ont été utilisées pour induire une désaimantation ultrarapide (0,95 eV, 1,55 eV et 3,10 eV) [120]. Le processus d'excitation de la matière par les photons peut être expliqué de la manière suivante (voir Figure I.1) : tout d'abord les photons absorbés dans le matériau magnétique induisent des transitions électroniques. Ces électrons qui sont excités directement par les photons du laser sont appelés des électrons chauds hors équilibre car ils ne suivent pas une distribution de type Fermi-Dirac. Ensuite ces électrons chauds hors équilibre excitent les autres électrons du matériau et se thermalisent entre eux. Il est alors possible de définir une température électronique car les électrons suivent une distribution de Fermi-Dirac. Cette température électronique est supérieure à la température du réseau. Ces électrons sont appelés électrons chauds thermalisés. Finalement, les électrons chauds thermalisés se thermalisent avec le réseau. Différentes études ont montré qu'il est également possible d'induire des dynamiques ultrarapides de l'aimantation en injectant des électrons chauds hors équilibre ou des électrons chauds thermalisés dans des matériaux magnétiques et plus précisément des MT [69,108,106,107].

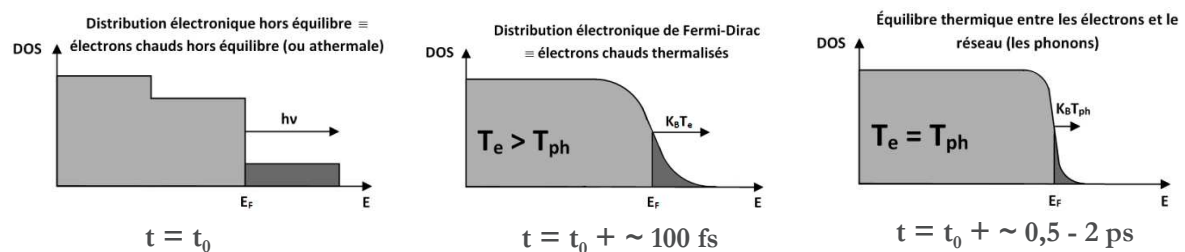


Figure I.1 : Schéma de la densité d'états électroniques en fonction de l'énergie des électrons à différents temps après l'impulsion laser excitatrice : juste après l'excitation laser (à gauche), après la thermalisation des électrons entre eux (au milieu) et après le thermalisation des électrons avec le réseau (à droite).

## I.1.2. Les modèles théoriques

Historiquement le premier modèle théorique, proposé par Beaurepaire et al.[12], est le modèle à 3 températures (3TM). C'est un modèle phénoménologique qui n'explique pas les mécanismes physiques microscopiques sous-jacents induisant la désaimantation. Ce modèle considère 3 bains (électrons, spins et phonons) à l'équilibre avant que le matériau magnétique soit excité par une impulsion laser (photons). Les photons cèdent leur énergie au bain d'électrons qui se thermalise très rapidement ( $\sim 100$  fs) à des températures pouvant atteindre quelques milliers de degrés. L'énergie du bain d'électrons est ensuite transférée vers le bain des spins et des phonons avec des temps caractéristiques de transfert proportionnels aux différentes constantes de couplages entre

les 3 bains. Ce modèle permet de reproduire l'évolution temporelle de la température des 3 bains, en prenant en compte les chaleurs spécifiques de chaque bain. Ce modèle permet finalement de reproduire les mesures de désaimantations ultrarapides.

À l'heure actuelle, une des questions fondamentales dans le domaine du femtomagnétisme est :

Comment et vers où est transféré le moment angulaire du matériau magnétique lors de la désaimantation ultrarapide ?

Je présente ci-dessous 2 modèles théoriques qui tentent de répondre à cette question.

1- Un modèle microscopique à 3 températures (m3TM) a été proposé par Koopmans et al [30]. Ce modèle s'appuie sur le modèle à 3 températures en rajoutant un mécanisme microscopique qui explique de quelle manière le spin de l'électron peut se retourner et ainsi induire une désaimantation dans le matériau. Le mécanisme microscopique proposé, de type Elliott-Yafet, est basé sur l'interaction d'un électron avec un phonon ou une impureté qui peut induire un retournement du spin (spin flip) avec une certaine probabilité (notée " $a_{SF}$ "). Grâce à ce modèle, Koopmans et al arrivent à reproduire de nombreux résultats expérimentaux de désaimantation dans les MT et TR en ayant un seul paramètre ajustable " $a_{SF}$ ". Ils montrent également qu'il existe deux types de désaimantations (type I et II). La transition type I à type II (lorsque le matériau se désaimante avec 1 ou 2 temps caractéristiques de désaimantation) est simplement pilotée par l'évolution de la valeur du rapport  $T_c/\mu_{at}$ . De nombreux articles s'appuient sur ce modèle pour simuler leurs résultats expérimentaux [107,114,120]. Ce modèle est également utilisé afin de reproduire des désaimantations ultrarapides induites par des impulsions d'électrons chauds [69,107].

2- Un modèle du transport superdiffusif de spin a été proposé par Battiato et al [40,46,56]. Ce modèle explique la désaimantation ultrarapide par le transport de spin superdiffusif en dehors du matériau magnétique. Le terme superdiffusif signifie qu'une partie des électrons qui portent les spins se propagent de manière balistique et l'autre de manière diffusive. De manière générale, dans les matériaux magnétiques les spins majoritaires ont un libre parcours moyen inélastique supérieur aux spins minoritaires. Cela implique que d'avantage de spins majoritaires seront transportés en dehors du matériau magnétique faisant diminuer l'aimantation globale du matériau. C'est cette différence qui induit, d'après Battiato et al. [40], une désaimantation ultrarapide. Il est à noter que selon ce modèle la désaimantation induite dans le matériau magnétique n'est pas homogène selon l'épaisseur du film. Dans ce modèle les électrons considérés sont ceux excités par le laser (les électrons chauds hors équilibre). Notons tout de même qu'un article récent démontre que la désaimantation ultrarapide d'un film de Ni ne peut pas être expliquée avec le modèle de Battiato et al. [126]. Cette étude récente relance le débat autour de l'efficacité des différents processus physique responsable de la désaimantation.



Il existe également d'autres mécanismes physiques décrits dans d'autres modèles théoriques tentant d'expliquer les désaimantations ultrarapides. Ces mécanismes sont : un couplage cohérent entre les photons du laser et les spins du matériau [31], la génération de magnons [29,76,102,119], le couplage spin-orbite ou l'interaction d'échange [39,101,130].

De manière générale, tous les modèles théoriques ont été, à un moment ou à un autre, plus ou moins critiqués par la communauté scientifique. Cependant les différentes critiques ne visent pas les mécanismes physiques présentés ici mais leurs importances relatives pour expliquer la dynamique ultrarapide de l'aimantation. Ainsi, je pense que les mécanismes physiques principaux permettant d'induire une désaimantation ultrarapide sont connus mais leurs importances relatives restent à éclaircir.

Notons que peu de travaux ont été réalisés avec les TR (pur ou en alliage) [9,43,57,71,80]. Hors l'importance des TR dans les matériaux présentant un retournement tout optique (AOS) motive la communauté scientifique à s'y intéresser d'avantage.

## I.2. Les alliages MT-TR

### I.2.1. Les alliages MT-TR : généralités, concepts et terminologies

Certains métaux de transition (MT) tels que le fer (Fe) le nickel (Ni) et le cobalt (Co) et ainsi que certaines terres rares (TR) telles que le gadolinium (Gd), le terbium (Tb) et le dysprosium (Dy) possèdent un ordre magnétique spontané. Le moment magnétique des MT provient quasiment intégralement de la bande électronique 3d incomplète. L'extension spatiale des orbitales électroniques 3d permet un recouvrement partiel entre les atomes plus proches voisins. Cela se traduit par l'existence d'un couplage d'échange 3d-3d direct et fort (voir schéma (a) de la Figure I.2). Pour les MT il en résulte des températures d'ordre magnétique élevées. Elles sont caractérisées par la température de Curie " $T_C$ ", élevées pour les MT ( $T_C=1300$  K pour le Co [131]). Le moment magnétique des TR provient majoritairement de la bande électronique 4f incomplète, alors que la bande 5d incomplète ne contribue que faiblement. La forte localisation spatiale des orbitales 4f ne permet pas de recouvrement entre les atomes voisins des TR. Malgré cela un couplage d'échange 4f-4f existe tout de même via le couplage intra-atomique 4f-5d [131] et interatomique 5d-5d (voir le schéma (b) de la Figure I.2). C'est un couplage d'échange indirect dit de type RKKY [132]. Ce mécanisme explique les températures d'ordre plus faibles pour les TR ( $T_C \leq 300$  K) que pour les MT. Néanmoins, l'amplitude du moment magnétique des TR est beaucoup plus grande que celle des MT. Concernant les alliages MT-TR, ils peuvent posséder à la fois une forte aimantation et une température de Curie plus élevée que celle des TR pur, rendant ces alliages particulièrement intéressants. L'extension spatiale des orbitales électroniques 3d pour les MT et 5d pour les TR permet un recouvrement et donc un couplage d'échange direct 3d-5d antiferromagnétique [133], c'est à dire que l'aimantation des MT est orienté antiparallèlement par rapport à celle des TR (voir schéma (c) de la Figure I.2). Les alliages MT-TR sont donc des matériaux ferrimagnétiques. Bien que l'aimantation des TR et des MT dans un alliage MT-TR n'évoluent pas de la même manière en fonction de la température [134], ils possèdent une température de Curie commune. Certains alliages MT-TR présentent également une température de compensation magnétique " $T_{comp}$ ". La  $T_{comp}$  correspond à la température à laquelle un matériau ferrimagnétique possède une aimantation nulle car les aimantations des deux sous réseaux orientés antiparallèlement se compensent. La  $T_{comp}$  est un paramètre relié à un phénomène macroscopique. La Figure I.3 schématise l'évolution de l'aimantation des MT (en noir), des TR (en bleu) et de l'ensemble MT+TR (en rouge).  $T_{comp}$  est très sensible à la concentration relative des alliages MT-TR. Ainsi, la mesure de la  $T_{comp}$  est utile lors de la fabrication des échantillons afin de déterminer la concentration relative des alliages MT-TR. Il est à noter que pour des températures très proches de  $T_{comp}$ , le champ coercitif des alliages diverge.

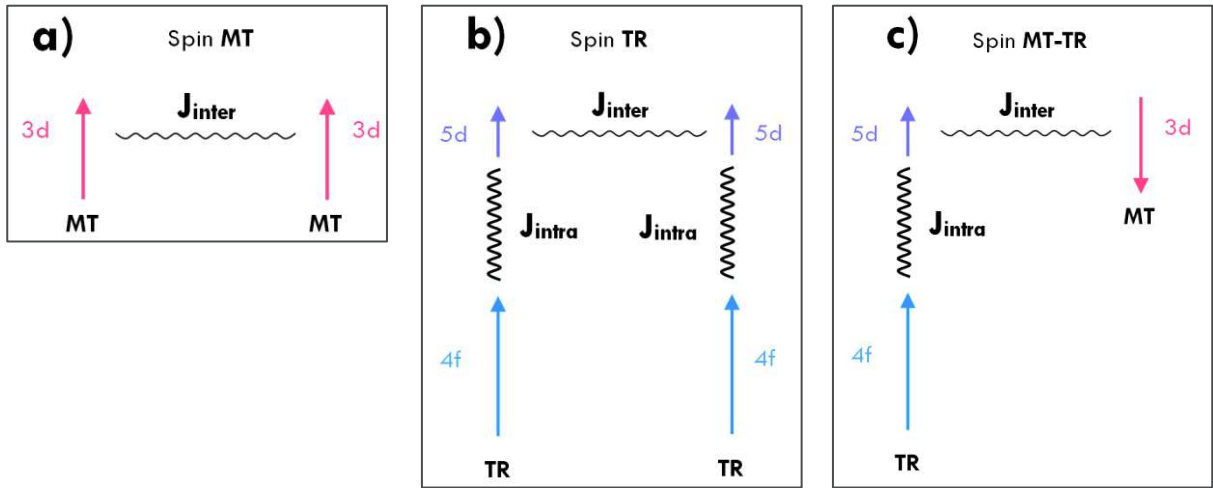


Figure I.2 : Schéma des couplages des spins : 3d d'un MT (a), 5d et 4f d'une TR (b) et 3d, 5d et 4f d'un alliage MT-TR (c).

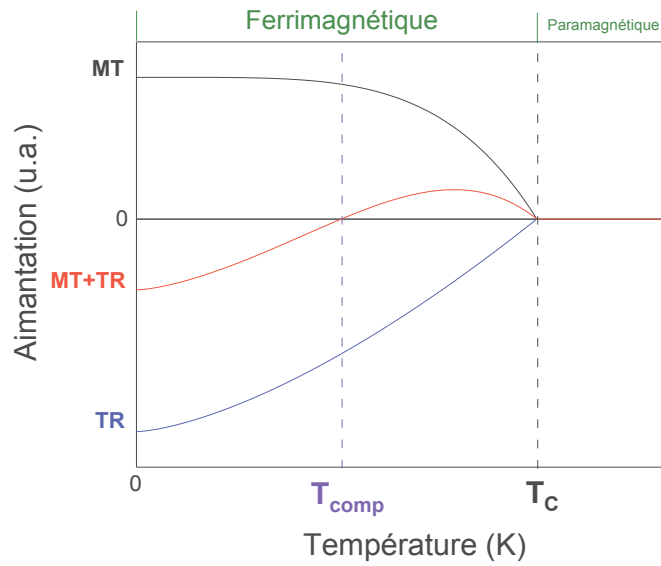


Figure I.3 : Schéma de l'aimantation des MT (en noir), des TR (en bleu) et de l'alliage MT+TR (en rouge).

## I.2.2. Les alliages MT-TR : dynamique ultrarapide de l'aimantation

Au cours de cette thèse j'ai étudié la désaimantation ultrarapide des alliages Co-TR (TR=Gd, Dy ou Tb). Dans toutes les expériences pompe-sonde résolues en temps présentées dans ce manuscrit et également dans la plupart des articles de la bibliographie, les excitations sont générées avec des impulsions laser fs IR. La longueur d'onde des photons est de 800 nm ce qui correspond à une énergie d'environ 1,55 eV. Les photons possédant cette énergie peuvent exciter directement les électrons des bandes 3d et 5d, c'est à dire entrainer une transition électronique des bandes d vers des états électroniques au-dessus du niveau de Fermi. Mais ils ne peuvent pas exciter directement les électrons se trouvant dans la bande 4f des TR car les IR ne possèdent pas suffisamment d'énergie. Ainsi, l'excitation des deux sous réseaux est à priori différente.

Dans la bibliographie de la dynamique ultrarapide de l'aimantation des alliages MT-TR nous constatons que les sous réseaux MT et TR ne se désaimantent pas de la même manière [9,10,61,71,80,127]. En général, l'amplitude de désaimantation des TR est plus importante que celle observée pour les MT. Les temps caractéristiques de désaimantation ainsi que les temps caractéristiques de rétablissement de l'aimantation sont supérieurs elles aussi pour les TR.

Nous constatons qu'il existe peu d'études expérimentales de la dynamique ultrarapide de l'aimantation d'alliages MT-TR dans lesquelles chaque sous réseau est mesuré indépendamment [[9,10,61,71,80,127]. Dans les 3 articles [9,10,61], les auteurs s'intéressent au retournement de l'aimantation tout optique. Dans ces 3 autres articles [71,80,127], les auteurs s'intéressent à la désaimantation ultrarapide de différents alliages MT-TR. Lopez et al. [71] observent une désaimantation plus lente lorsque la température de l'échantillon est supérieure à sa température de compensation. Ils expliquent ce ralentissement par les fluctuations des spins 4f lorsque l'échantillon est proche de sa température de Curie plutôt qu'à un effet de la température de compensation. Bergéard et al. [80] observent un transfert de moment angulaire entre les deux sous réseaux d'un alliage CoTb pendant une centaine de fs après l'excitation laser. Radu et al. [127] cumulent de nombreuses données de désaimantation ultrarapide et constatent que le temps caractéristique de désaimantation semble évoluer linéairement en fonction de l'aimantation du sous réseau considéré.

En s'appuyant sur le modèle à 3 températures nous pouvons illustrer les différents couplages entre les bains d'électrons, de spins et de phonons. Les valeurs des temps caractéristiques de transfert entre les bains sont extraites de plusieurs articles [30,43,71,80,127]. La représentation schématique de la Figure I.4 décrit un ensemble d'interactions entre les différents bains. Celle-ci reflète une description incomplète de la désaimantation ultrarapide mais permet tout de même une bonne compréhension des phénomènes. L'énergie de l'impulsion de photons IR du laser de pompe est cédée au bain d'électrons. Cette énergie est ensuite transférée vers le bain de moment angulaire et vers le bain de phonons. Dans le cas des alliages MT-TR, différents articles [9,10,71,80,127] montrent que nous devons considérer 2 bains de spins différents pour les MT et le TR couplés entre eux. C'est pourquoi sur la Figure I.4 nous avons représenté 4 bains.

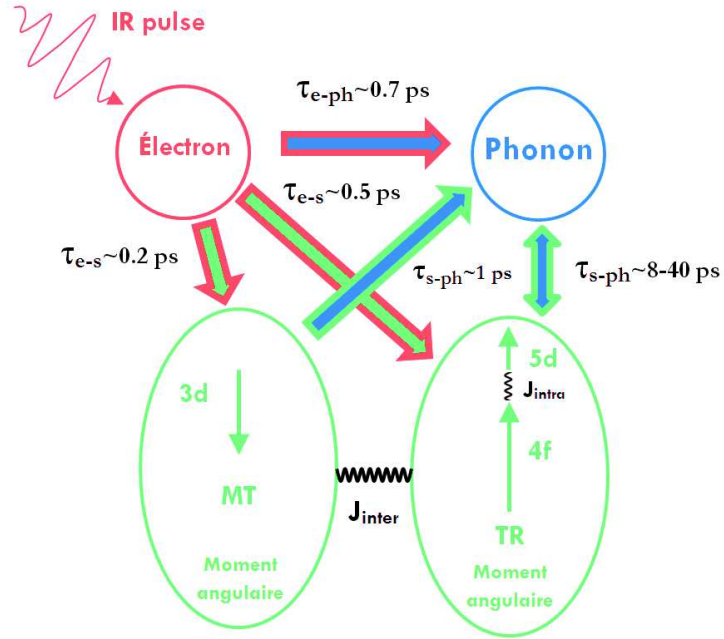


Figure I.4 : Schéma du modèle à 4 températures (une température de moment angulaire pour chaque sous réseau) pour les alliages MT-TR.

Ainsi, la Figure I.4 et les différentes études expérimentales [9,10,61,71,80,127] montrent que pour étudier de manière globale la dynamique ultrarapide de l'aimantation d'un alliage MT-TR il faut mesurer, de manière séparée, la dynamique des spins des MT de la bande 3d et la dynamique des spins des TR de la bande 4f. Pour ce faire la technique de dichroïsme magnétique circulaire des rayons X aux seuils  $L_{2,3}$  pour les MT et  $M_{4,5}$  pour les TR est la plus adaptée.

## I.3. Les techniques expérimentales

### I.3.1. Le dichroïsme magnétique circulaire des rayons X (XMCD)

Le dichroïsme magnétique circulaire des rayons X (XMCD) a été prédit théoriquement en 1975 par Erskine et Stern [135]. La première démonstration expérimentale a été réalisée en 1987 par Schütz et al [136]. Les principaux avantages de la technique du XMCD sont : une très haute sensibilité (permettant de mesurer moins d'une monocouche atomique), la sélectivité chimique et la détermination du moment magnétique orbital et de spin. De nos jours cette technique est utilisée dans tous les synchrotrons.

L'approximation dipolaire électrique et la méthode des perturbations dépendantes du temps permettent de définir la règle d'or de Fermi qui décrit la probabilité de transition par unité de temps d'un état discret initial vers un état discret final ou vers un continuum d'état final comme étant :

$$W_{i \rightarrow f} \propto |\langle f | H_{int} | i \rangle|^2 \quad (I.1)$$

$H_{int}$  est l'Hamiltonien d'interaction entre la lumière et la matière.

La technique du XMCD, comme son nom l'indique, repose sur l'utilisation de lumière polarisée circulairement pour exciter le matériau magnétique. Les règles de sélection qui en découlent sont :

$$\Delta L = L_f - L_i = \pm 1 \quad \Delta M_L = M_{L f} - M_{L i} = \pm 1 \quad (I.2)$$

$$\Delta S = S_f - S_i = 0 \quad \Delta M_S = M_{S f} - M_{S i} = 0 \quad (I.3)$$

$L_f$  ( $L_i$ ) : nombre quantique orbital de l'état final (initial)

$M_{L f}$  ( $M_{L i}$ ) : nombre quantique associé à l'orbital de l'état final (initial)

$S_f$  ( $S_i$ ) : nombre quantique de spin de l'état final (initial)

$M_{S f}$  ( $M_{S i}$ ) : nombre quantique associé au spin de l'état final (initial)

Cela signifie que les spins des électrons sont conservés lorsqu'ils passent de l'état initial à l'état final contrairement au moment orbital.

Pour les MT, nous mesurons le signal XMCD aux seuils  $L_{2,3}$  ce qui correspond à des transitions électroniques de la couche 2p vers la couche 3d et plus particulièrement :

$$L_2 \equiv 2p_{1/2} \rightarrow 3d \quad \text{et} \quad L_3 \equiv 2p_{3/2} \rightarrow 3d$$

Pour les matériaux magnétiques la densité d'états vides est différente pour les états majoritaires et minoritaires en spin. Cette différence est représentée sur la Figure I.5 dans la bande 3d. Comme l'état final n'est pas le même en fonction du spin des électrons, la probabilité de transitions décrite par la règle d'or de Fermi n'est pas la même pour une polarisation circulaire droite ou gauche. Le signal XMCD provient donc de la différence de probabilité de transition entre une polarisation circulaire gauche et droite qui est proportionnelle au moment magnétique de l'élément chimique sondé.

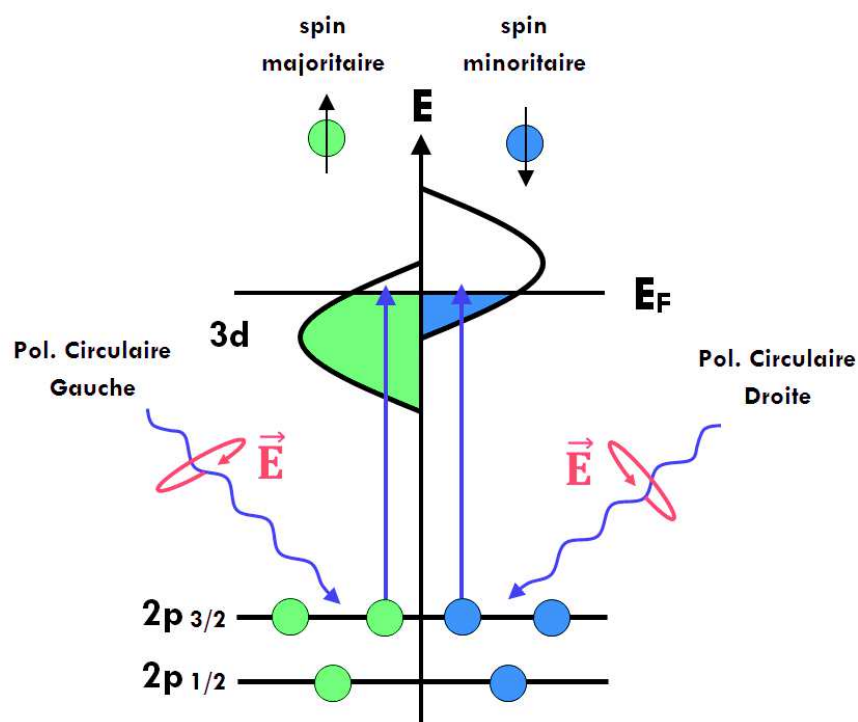


Figure I.5 : Schéma des transitions électroniques aux seuils  $L_{2,3}$  en fonction de la polarisation circulaire gauche ou droite des photons.

La Figure I.6 est un exemple des spectres d'absorptions des rayons X mesurés pour les deux polarisations circulaires (gauche et droite) aux seuils  $L_{2,3}$  du Co. La différence d'absorption entre la polarisation gauche et droite est le spectre XMCD.

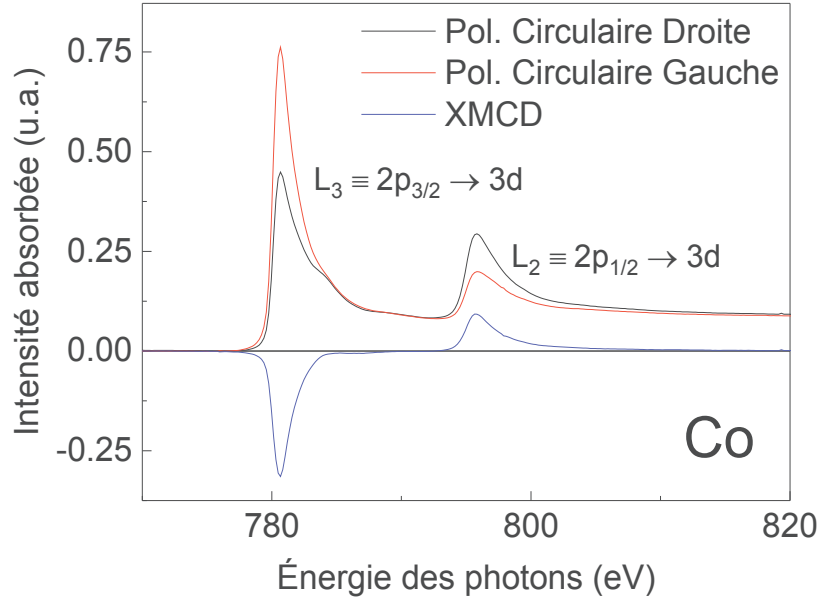


Figure I.6 : Spectres d'absorption du Co aux seuils  $L_{2,3}$  pour une polarisation circulaire droite et gauche ainsi que le signal XMCD.

Pour les TR, nous mesurons le signal XMCD aux seuils  $M_{4,5}$  ce qui correspond à des transitions électroniques de la couche 3d vers la couche 4f et plus particulièrement :

$$M_4 \equiv 3d_{3/2} \rightarrow 4f \quad \text{et} \quad M_5 \equiv 3d_{5/2} \rightarrow 4f$$

Les règles de sommes énoncées par Tholes et al. [137] et Carra et al. [138] permettent de calculer les moments magnétiques de spin et orbital à partir des spectres d'absorptions pour les deux polarisations circulaires (voir Annexe A).

Il est à noter que changer la polarisation circulaire de la lumière (gauche ou droite) pour une direction de saturation magnétique de l'échantillon donnée est équivalent à changer la direction de saturation magnétique de l'échantillon pour une polarisation circulaire donnée. En d'autres termes, le signal XMCD est invariant par renversement du temps. Pour les expériences pompe-sonde, la renormalisation de l'intensité mesurée par l'intensité incidente ( $I_0$ ) est plus facile pour une même polarisation circulaire de la lumière et il est également plus rapide de changer la direction de saturation magnétique de l'échantillon que de changer la polarisation de la lumière. C'est pourquoi toutes les expériences pompe-sonde sont réalisées avec une polarisation circulaire donnée et deux directions de saturation magnétique opposées.



### I.3.2. tr-XMCD

Pour réaliser les expériences XMCD résolues en temps il est nécessaire de mettre en place des expériences pompe-sonde. La Figure I.7 est une représentation schématique d'une expérience pompe-sonde. La pompe, un laser femtoseconde (fs) qui génère une impulsion IR, excite l'échantillon magnétique. La sonde, une impulsion de rayons X polarisée circulairement, est générée à partir d'un TGIR appelé synchrotron et permet, en changeant la direction de l'aimantation de l'échantillon via un champ magnétique extérieur, de mesurer le signal XMCD à un seuil spécifique de l'échantillon. Pour toutes les mesures de dynamique présentées dans mon manuscrit nous mesurons l'intégrale du signal XMCD au seuil  $L_3$  pour les MT et  $M_5$  pour les TR. Une ligne de retard permet de modifier le délai temporel entre la pompe et la sonde. Ainsi, il est possible de mesurer le signal XMCD en fonction du délai temporel entre la pompe et la sonde. Pour réaliser de tels mesures pompe-sonde il faut que le système, c'est à dire l'aimantation de l'échantillon, revienne dans son état initial avant que la prochaine impulsion excitatrice arrive sur l'échantillon. De manière générale, le temps de retour à l'état initial est inférieur à 1  $\mu$ s. Ceci permet potentiellement d'exciter l'échantillon à une fréquence de l'ordre du MHz. Avant de commencer les expériences pompe-sonde l'échantillon est à la même température que celle du cryostat. Lors des mesures pompe-sonde les impulsions laser de la pompe excitent l'échantillon et vont y déposer de l'énergie. Il se crée alors un gradient thermique en équilibre entre la zone de l'échantillon excitée par le laser et le cryostat. La différence de température entre le cryostat et la zone pompée de l'échantillon est appelée le réchauffement lié au laser de pompe. Pour un même échantillon, plus la fréquence du laser de pompe est importante, plus le réchauffement est important également. Afin de mesurer, avec la sonde, la zone excitée par la pompe il faut que la pompe et la sonde soient superposées spatialement. De plus il faut également connaître la valeur de la ligne à retard pour laquelle il y a la superposition temporelle entre la pompe et la sonde. Ainsi, pour réaliser des expériences pompe-sonde, 3 critères doivent être remplis. Le premier est la réversibilité de l'échantillon magnétique après une excitation laser, l'échantillon doit revenir dans son état initial. Le deuxième est la superposition spatiale. Et le dernier est la superposition temporelle.

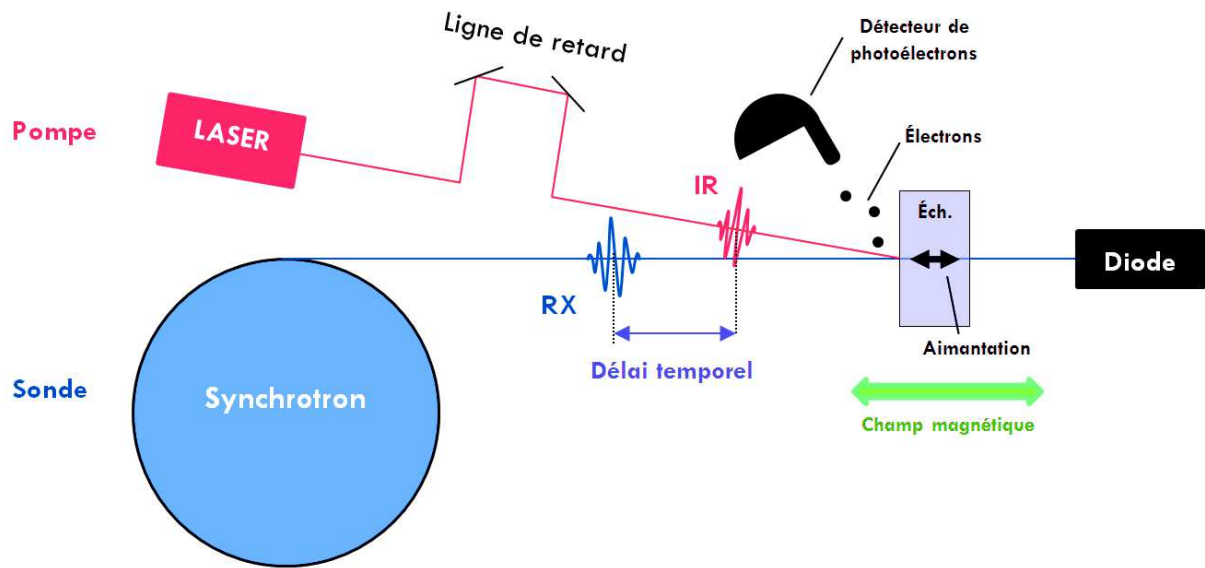


Figure I.7 : Schéma d'un montage pompe-sonde.

En fonction des expériences, nous mesurons soit l'intensité de rayons X transmise à travers l'échantillon grâce à une diode (chambre Femtoslicing du synchrotron BESSY II) soit les photoélectrons émis grâce à un détecteur "Scienta" de photoélectrons (ligne TEMPO du synchrotron SOLEIL). Dans les deux cas nous mesurons le signal XMCD du seuil  $L_3$  pour les MT et du seuil  $M_5$  des TR. Notons qu'il est possible de considérer que le signal XMCD au seuil Co  $L_3$  (resp. TR  $M_5$ ) est proportionnel au moment magnétique total du Co 3d (TR 4f) (voir Annexe B).

### I.3.3. tr-MCDAD

Je décris dans cette partie la technique de tr-MCDAD (time-resolved Magnetic Circular Dichroism in Angular Distribution) que nous avons utilisée sur la ligne TEMPO du synchrotron SOLEIL afin de mesurer la dynamique de l'aimantation du Gd 4f de la surface des films magnétiques de CoGd. Pour ce faire nous réalisons des expériences pompe-sonde et nous mesurons les photoélectrons Auger émis suite à l'absorption résonnante (au seuil Gd  $M_5$ ) des rayons X polarisés circulairement. Le schéma de la Figure I.8 représente les transitions électroniques impliquées dans l'émission d'électrons Auger pour une polarisation des rayons X donnée. Dans un premier temps l'absorption d'un photon X ( $E_{h\nu} = 1186$  eV) entraîne la transition d'un électron de l'état  $3d_{5/2}$  vers la bande 4f au-dessus du niveau de Fermi (spin minoritaire). La relaxation de cet électron vers l'état initial entraîne l'émission d'un électron Auger depuis la bande 4f (spin majoritaire) avec une énergie cinétique :

$$E_C = E_{h\nu} - E_{ionisation\ 4f} - W \approx 1186 - 8 - 3 \approx 1175\ eV \quad (I.4)$$

Grâce au détecteur hémisphérique nous mesurons les photoélectrons Auger émis à cette énergie cinétique (centrée à 1175 eV) (voir Figure I.9). La différence du nombre de coups pour les deux polarisations magnétiques est proportionnelle au moment magnétique porté par les électrons de la bande 4f du Gd. Cette mesure est ensuite répétée pour différents délais temporels entre la pompe et la sonde afin d'obtenir l'évolution du moment magnétique en fonction du temps. Nous avons choisi de mesurer les photoélectrons avec cette énergie cinétique pour ne pas être perturbé par les photoélectrons générés par l'impulsion laser IR fs. En effet, Sirotti et al. [139] ont montré que des photoélectrons dont l'énergie cinétique est bien plus élevée que celle d'un photon IR (1,55 eV) sont générés via un phénomène d'absorption multiple de photons.

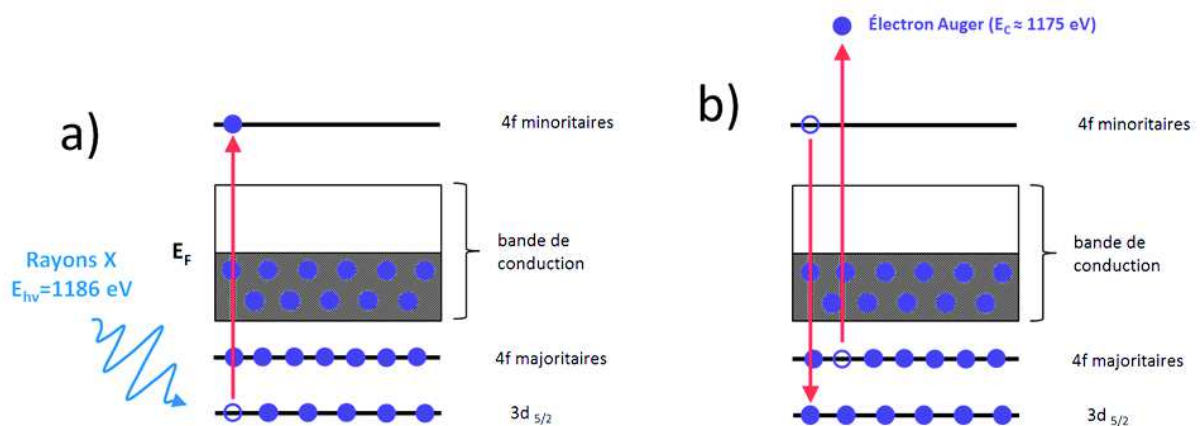


Figure I.8 : Schéma du processus d'émission Auger. L'absorption d'un photon X entraîne la transition d'un électron ( $3d_{5/2} \rightarrow 4f$ ). La désexcitation de cet électron ( $4f \rightarrow 3d_{5/2}$ ) entraîne l'émission d'un photoélectron Auger.

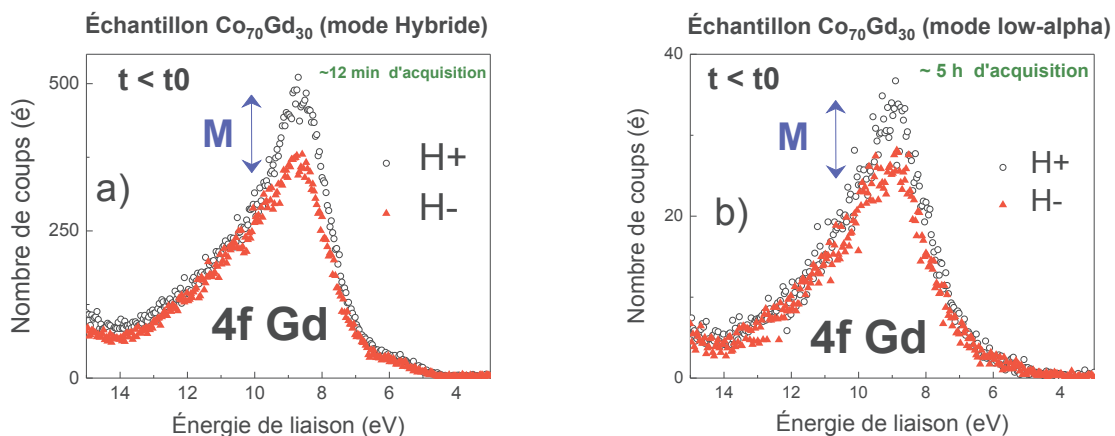


Figure I.9 : Nombre de photoélectrons en fonction de leur énergie cinétique au seuil Gd  $M_5$  pour deux polarisations magnétiques différentes dans l'alliage  $Co_{70}Gd_{30}$  avant l'impulsion laser a) en mode hybride (12 min d'acquisition) et b) en mode low-alpha (5 h d'acquisition).

Pour résumée, ce chapitre présente en première partie la dynamique ultrarapide de l'aimantation de manière générale. La deuxième partie présente les alliages MT-TR (statique et dynamique). Et la dernière partie détaille les techniques expérimentales utilisées. Le prochain chapitre présente les différents montages expérimentaux utilisés ainsi que les différents échantillons étudiés au cours de ma thèse.



## II. Description des expériences et des échantillons

Dans ce chapitre, je présente les montages expérimentaux utilisés pour caractériser les propriétés magnétiques statiques des alliages MT-TR par des mesures de spectroscopie XMCD. Je présente également les montages expérimentaux qui m'ont permis d'étudier la dynamique ultrarapide de l'aimantation de ces alliages par tr-XMCD. Enfin, je détaillerai l'élaboration et la structures des échantillons étudiés au cours de ma thèse.

## II.1. Les différents montages expérimentaux

La plupart des mesures statiques et dynamiques présentées dans mon manuscrit ont été effectuées sur des très grandes infrastructures de recherche (TGIR) appelées synchrotrons. De manière générale les synchrotrons sont des accélérateurs de particules (électrons) dont le but est de générer des ondes électromagnétiques de fortes intensités sur une gamme de longueurs d'ondes très étendues (de l'infrarouge lointain jusqu'aux rayons X durs). Des paquets d'électrons sont injectés et accélérés dans un accélérateur linéaire puis dans un accélérateur circulaire appelé Booster à des énergies allant jusqu'à quelques GeV. Ils sont ensuite stockés dans l'anneau de stockage et vont y tourner pendant plusieurs heures. Cet anneau de stockage est composé de plusieurs éléments d'insertion comme des dipôles magnétique (aimants de courbure) et des onduleurs ou des wigglers (succession d'aimants ou électroaimants alternés). Ces éléments vont dévier la trajectoire des paquets d'électrons qui perdent alors de l'énergie sous forme d'impulsions lumineuses : c'est le rayonnement synchrotron. A chaque tour, les électrons perdent donc de l'énergie. Cette perte est compensée par des cavités radiofréquences qui ajoutent de l'énergie aux électrons. Le rayonnement synchrotron, produit par les paquets d'électrons dans les différents éléments d'insertion (aimants de courbures, onduleurs ou wigglers), est injecté dans une ligne de lumière et dirigé vers une station expérimentale. La ligne de lumière est composée de miroirs et de lentilles, qui permettent de contrôler la position et la taille du faisceau de rayons X, ainsi que de monochromateurs qui permettent de sélectionner la longueur d'onde. Le rayonnement synchrotron est utilisé dans différents domaines scientifiques tels que la chimie, la physique, la biologie ou encore l'archéologie. Il existe une cinquantaine de synchrotrons à travers le monde qui possèdent chacun des caractéristiques propres (énergie des électrons, gamme spectrale des rayons X, stations expérimentales...). Au cours de mon doctorat j'ai réalisé mes expériences aux synchrotrons SOLEIL à Paris-Saclay et BESSY II à Berlin.

### II.1.1. Synchrotrons SOLEIL et BESSY II

#### II.1.1.1. Synchrotron SOLEIL

SOLEIL [140] est un synchrotron de 3<sup>ème</sup> génération. Situé sur le plateau de Saclay à Paris, il a ouvert ses portes en 2006. Les électrons situés dans l'anneau de stockage, qui fait 354 m de longueur, ont une énergie de 2,75 GeV. À cette énergie les électrons se déplacent quasiment à la vitesse de la lumière et sont donc relativistes. Les électrons sont regroupés par paquets. L'intensité de courant circulant dans l'anneau de stockage est au maximum de 500 mA. Il existe différents modes de remplissage des paquets d'électrons dans l'anneau de stockage (mode hybride, single bunch, 8 bunch, low-alpha...) en fonction des besoins des utilisateurs. Tous ces modes de fonctionnement présentent une structure temporelle propre au mode d'injection. Le synchrotron SOLEIL compte 29 lignes de lumières ouvertes et connectées à l'anneau de stockage. Différentes stations expérimentales peuvent être connectées à une même ligne de lumière. À SOLEIL, nous avons utilisé 2 lignes de lumière : la station expérimentale cryoMag de

la ligne DEIMOS pour réaliser des caractérisations magnétiques statiques présentées dans le chapitre IV et la station expérimentale de photoémission de la ligne TEMPO pour réaliser les expériences dynamiques (tr-PES) présentées dans le chapitre III.

### **II.1.1.2. Synchrotron BESSY II**

BESSY II [141] est un synchrotron de 2<sup>ème</sup> génération. Situé à Berlin, il a ouvert ses portes en 1998. Les électrons stockés dans l'anneau de stockage, qui fait 240 m de longueur, ont une énergie de 1,70 GeV. Il y a 16 lignes de lumières connectées à l'anneau de stockage. Différentes stations expérimentales peuvent être connectées à une même ligne de lumière. L'intensité de courant circulant dans l'anneau de stockage est au maximum de 300 mA. Il existe plusieurs modes de remplissage des paquets d'électrons dans l'anneau de stockage en fonction des besoins des utilisateurs. Nous nous sommes servis du mode hybride qui permet de faire des expériences avec une résolution de 60 ps. BESSY II est un des premiers synchrotrons au monde dans lequel la technique dite de "Slicing" a été mise en œuvre [142-144]. Cette technique permet de générer des impulsions de rayons X avec une durée temporelle de 100 fs. Ceci permet d'effectuer des mesures pompe-sonde avec une résolution de 130 fs. Le nombre de photons X est d'environ 500 par impulsion. La station expérimentale Femtoslicing de la ligne UE56-ZPM peut exploiter ces impulsions de rayons X fs. Les résultats présentés dans le chapitre IV et V ont été mesurés sur cette ligne. Nous avons également réalisé des expériences de caractérisations magnétiques statiques sur la station ALICE de la ligne PM3 à BESSY II.

### **II.1.2. Mesures statiques : lignes de lumières et stations expérimentales**

La spectroscopie XMCD statique m'a permis de caractériser certaines propriétés magnétiques des alliages MT-TR telles que le champ coercitif, le moment magnétique de spin, le moment magnétique orbital, le moment magnétique total et l'anisotropie magnétique pour chaque sous réseau (MT et TR) à l'équilibre. J'ai également mesuré l'évolution de ces propriétés magnétiques en fonction de la température. Ces mesures m'ont également permis de m'assurer que les propriétés magnétiques de mes alliages étaient compatibles avec les stations expérimentales pour les mesures pompe-sonde. J'ai utilisé deux modes d'acquisitions pour les mesures XMCD : le Total Electron Yield (TEY) et la transmission (XAS). Les mesures XMCD en TEY permettent de sonder les propriétés magnétiques à la surface des échantillons (~1,5 nm). Malheureusement, les effets de saturations rendent difficiles les exploitations quantitatives [145,146]. Les mesures XMCD en transmission des rayons X permettent de sonder les propriétés magnétiques de l'intégralité (en épaisseur) de l'échantillon. Je vous présente les deux stations expérimentales sur lesquelles j'ai effectué les mesures de spectroscopie XMCD présentées dans mon manuscrit.



### II.1.2.1. La station cryoMag de la ligne DEIMOS

La station cryoMag de la ligne DEIMOS [147] est conçue pour réaliser des expériences de XMCD [148]. Les différents détecteurs permettent de mesurer les effets induits par l'absorption des rayons X par TEY par fluorescence et par la mesure de la transmission des rayons X. La gamme en énergie des photons s'étend de 350 eV jusqu'à 2500 eV avec une résolution  $E/\Delta E$  entre 6 000 et 10 000. La taille du faisceau au niveau de l'échantillon peut être de 80  $\mu\text{m}$  sur 80  $\mu\text{m}$  ou de 800  $\mu\text{m}$  sur 800  $\mu\text{m}$ . La polarisation des rayons X est variable (circulaire ou horizontale). La pression dans la chambre de mesure est de l'ordre de  $10^{-10}$  mbar. Il est possible de varier la température de l'échantillon entre 1,5 K et 350 K. Le champ magnétique au niveau de l'échantillon peut varier de  $\pm 7$  T dans la direction de propagation des rayons X et de  $\pm 2$  T dans la direction perpendiculaire à celle des rayons X.

Lors des expériences, les spectres XAS et XMCD ont été mesurés en transmission avec une taille de faisceau de 80  $\mu\text{m}$  sur 80  $\mu\text{m}$ . La configuration géométrique utilisée est représentée sur la Figure II.1 et montre que, pour l'ensemble des échantillons étudiés (CoTb et CoDy), une incidence parallèle entre la direction de propagation des rayons X et la normale à la surface des échantillons a été utilisée.

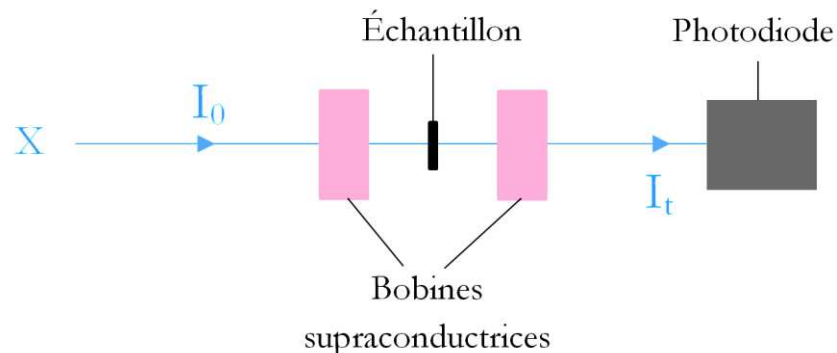


Figure II.1 : Configuration géométrique de la station expérimentale cryoMag sur la ligne DEIMOS du synchrotron SOLEIL.

### II.1.2.2. La station ALICE de la ligne PM3

La station ALICE de la ligne PM3 [149] est conçue pour caractériser des échantillons magnétiques via des mesures de transmission des rayons X et des mesures TEY [150]. La gamme énergétique des photons s'étend de 20 eV jusqu'à 1900 eV avec une résolution énergétique  $E/\Delta E$  de 32 000 à 64 eV. La polarisation des rayons X est variable (circulaire ou horizontale). La pression dans la chambre de mesure est de l'ordre de  $10^{-7}$  mbar. Il est possible de varier la température de l'échantillon entre 80 K et 400 K. Un électroaimant permet d'appliquer un champ

magnétique allant jusqu'à 0,7 T et pouvant tourner autour de l'échantillon dans le plan horizontal. Il est donc possible d'appliquer le champ magnétique suivant différentes valeurs d'angle  $\theta$  (voir Figure II.2). Ce montage nous a permis d'étudier en fonction de l'angle d'incidence le signal XMCD dans les films CoTb, CoDy et CoGd.

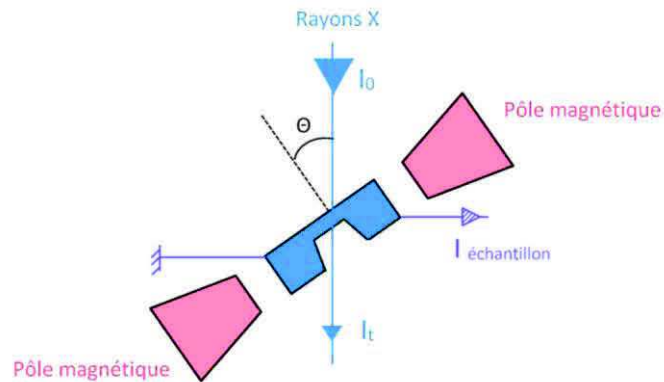


Figure II.2 : Configuration géométrique de la chambre expérimentale ALICE sur la ligne PM3 à BESSY II.

### II.1.3. Mesures dynamiques : lignes de lumières et stations expérimentales

La dynamique ultrarapide de l'aimantation est mesurée grâce à des montages expérimentaux de type pompe-sonde. Sur la ligne TEMPO au synchrotron SOLEIL [129,151,152] les mesures de désaimantation ultrarapide ont été réalisées en détectant les photoélectrons Auger émis suite à l'absorption résonnante des impulsions de rayons X. Au regard de l'énergie cinétique des photoélectrons émis dans les conditions expérimentales vu précédemment (voir chapitre I), cette technique est sensible uniquement au premier nm du matériau magnétique [153]. Sur la ligne UE56-ZPM au synchrotron BESSY II les mesures de désaimantation ultrarapide ont été réalisées via la détection des impulsions X transmises au travers de l'échantillon. Cette technique sonde ainsi toute l'épaisseur du film magnétique (~15 nm).

#### II.1.3.1. La station UHV Photoémission de la ligne TEMPO

La station UHV Photoémission de la ligne TEMPO [154] est conçue pour réaliser des expériences de physique des surfaces par des expériences de spectroscopie de photoélectrons. L'énergie des photons s'étend de 50 eV jusqu'à 1500 eV avec une résolution en énergie  $E/\Delta E$  supérieure à 10 000. La température de l'échantillon peut être ajustée entre 80 et 350 K pour une pression de l'ordre de  $10^{-10}$  mbar. Un électroaimant en forme de fer à cheval permet d'appliquer un champ magnétique constant d'environ 0,01 T dans le plan de la surface de l'échantillon. Le champ magnétique peut atteindre 0,025 T si l'électroaimant est alimenté par des courtes

impulsions électriques. La forme de l'électroaimant a été étudiée afin de minimiser les lignes de champ magnétique à la surface de l'échantillon qui ont une influence sur le parcours des photoélectrons avant qu'ils n'atteignent le détecteur. Une chambre de préparation équipée d'un canon à ion permet de réaliser des bombardements ioniques afin de préparer la surface de nos échantillons. Ce dispositif a été utilisé pour étudier la dynamique des films de CoGd présentant un axe de facile aimantation dans le plan et dont  $H_c < 20$  Oe.

La chambre principale est munie d'un analyseur hémisphérique 'Scienta SES 2002' dont le détecteur a été équipé d'une ligne à retard permettant d'exploiter la structure temporelle du rayonnement synchrotron [155]. Dans le mode de remplissage hybride (le mode standard à SOLEIL), trois quarts de l'anneau de stockage sont remplis par des paquets d'électrons séparés par 2.8 ns. Le dernier quart ne comporte qu'un paquet isolé. L'analyseur sur TEMPO permet de distinguer les photoélectrons générés par l'absorption de l'impulsion X de  $\sim 60$  ps provenant du paquet isolé. La ligne de lumière est également équipée d'un laser femtoseconde synchronisé avec le paquet isolé permettant de réaliser des expériences de spectroscopie de photoélectrons pompe-sonde [129]. Dans le mode de remplissage dit "Low-alpha", un réglage particulier des optiques dans l'anneau de stockage permet de réduire la durée de l'impulsion X généré par le paquet isolé à  $\sim 10$  ps [129].

Pour réaliser des expériences pompe-sonde il est primordial d'avoir une bonne superposition spatiale et temporelle de la pompe (l'impulsion IR) et de la sonde (l'impulsion X). La superposition spatiale nous assure que nous sondons une zone de l'échantillon qui est excitée par la pompe. La superposition temporelle nous permet de déterminer le délai temporel, c'est à dire la position de la ligne à retard, qui correspond à l'arrivée simultanée de la pompe et de la sonde sur l'échantillon. Je précise ci-dessous comment les superpositions spatiale et temporelle sont réalisées sur la ligne TEMPO.

### **Caractérisation et superposition spatiale de la pompe et de la sonde :**

Dans la chambre principale nous disposons de plusieurs moyens pour mesurer les tailles de faisceaux de la pompe et de la sonde : une diode, dont la surface est un carré de  $50 \mu\text{m}$  de côté, sensible aux rayons X et aux IR du laser et un cristal de YAG, qui absorbe les rayons X et réémet dans le spectre visible, associé à une caméra macro. La cartographie a) du faisceau laser de la Figure II.3 a été réalisée à l'aide de la diode pour une puissance laser faible. Une puissance laser trop forte risque de détériorer la diode. La cartographie b) du faisceau des rayons X a été réalisée en mesurant sur la camera l'image des rayons X sur le cristal de YAG. Les graphiques c) et d) sont des profils suivant respectivement la direction X et Z du faisceau laser et des rayons X. Ces deux profils permettent de mesurer la largeur à mi-hauteur des Gaussiennes (FWHM) des rayons X et du laser notée  $H_x$  et  $H_z$  qui sont :  $H_x=60 \mu\text{m}$  et  $H_z=130 \mu\text{m}$  pour les rayons X et  $H_x=260 \mu\text{m}$  et  $H_z=580 \mu\text{m}$  pour le laser. La forme ovale des faisceaux provient de l'angle entre la surface de l'échantillon et la direction de propagation du laser et des rayons X. Le faisceau laser est volontairement plus grand que celui des rayons X. Cela permet, une fois la superposition spatiale réalisée, de considérer que la zone sondée est pompée homogènement par le laser IR. De plus, la

mesure est moins sensible aux petites variations de la position du faisceau laser ou des rayons X. Cependant, il n'est pas possible d'augmenter encore plus la taille du faisceau laser car il faut que la fluence maximale soit d'au moins  $3 \text{ mJ/cm}^2$  afin d'obtenir une désaimantation conséquente des films CoGd. La superposition spatiale est réalisée grâce à la diode en positionnant celle-ci au centre du faisceau des rayons X puis en centrant le faisceau laser sur cette position grâce à la dernière lentille focale.

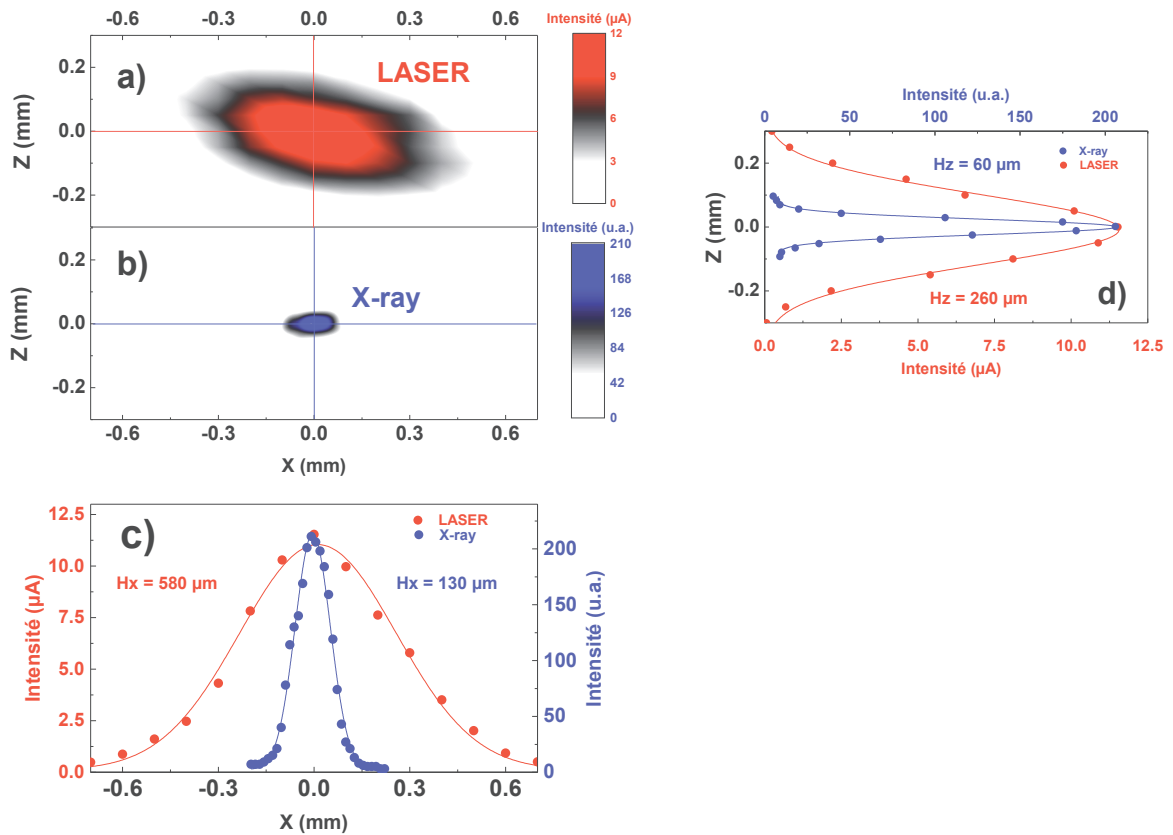


Figure II.3 : Cartographie du faisceau laser a) et du faisceau des rayons X b). c) Profil des faisceaux à Z=0 mm dans la direction de X (lignes horizontales des graphiques a) et b)). d) Profil des faisceaux à X=0 mm dans la direction de Z (lignes verticales des graphiques a) et b)).

Au vu de la taille du faisceau des rayons X le volume sondé de l'échantillon, en mesurant les photoélectrons émit par les rayons X, est d'environ  $10^{-16} \text{ m}^3$  ce qui correspond à environ  $4.10^{12}$  atomes. Ainsi, la désaimantation est mesurée sur un très grand nombre d'atomes donnant lieu à une mesure moyenné et représentative de l'ensemble de la surface.

### Superposition temporelle de la pompe et de la sonde :

Une superposition temporelle grossière entre la pompe et la sonde ( $\pm 100 \text{ ps}$ ) peut être réalisée en utilisant la ligne à retard du détecteur qui permet de discriminer temporellement les

électrons émis par l'impulsion laser et ceux émis par l'impulsion des rayons X. La réalisation précise de la superposition temporelle est faite en mesurant le décalage en énergie des seuils Au  $N_{6,7}$ , c'est à dire de ses niveaux électroniques 4f, causé par l'impulsion laser en fonction du délai temporel entre la pompe et la sonde. L'avantage de cette méthode est le grand nombre de photoélectron émis, ce qui permet de diminuer le temps d'acquisition nécessaire. Les graphiques a) et b) de la Figure II.4 présentent les mesures effectuées pour déterminer la superposition temporelle. Le graphique a) montre deux mesures XPS : sans le laser de pompe (en noir) et avec le laser pour un délai temporel donné (en rouge). Le graphique b) représente la valeur du décalage en énergie en fonction du délai temporel pour les deux seuils  $N_6$  et  $N_7$ . Le décalage en énergie est causé par une accumulation d'électrons à la surface de l'échantillon qui intervient instantanément après l'impulsion laser de pompe au regard de la résolution temporelle ( $\sim 12$  ps). Le maximum de décalage en énergie correspond à la superposition temporelle de la pompe et de la sonde. Nous définissons donc l'axe temporel pour que le temps 0 (" $t_0$ ") corresponde au maximum du décalage en énergie.

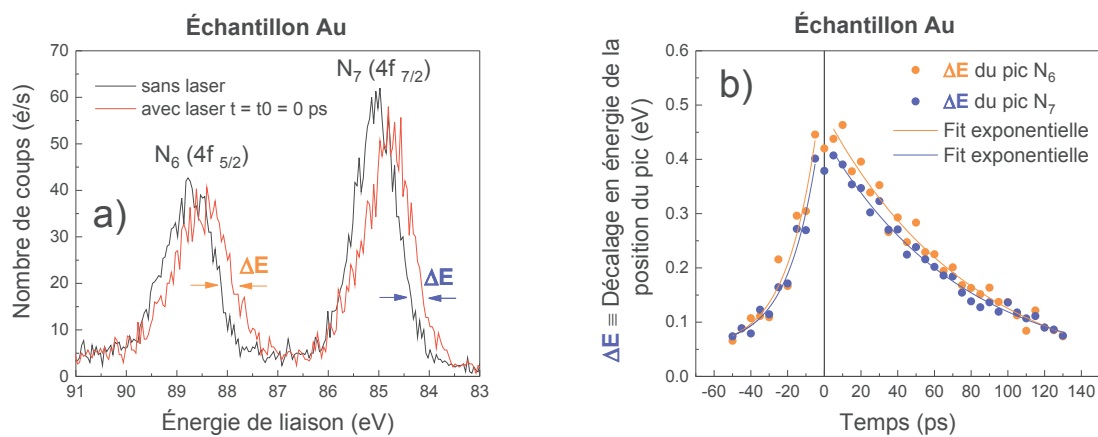


Figure II.4 : a) Spectre XPS Au 4f sans laser et avec laser pour un délai temporel donné " $t_0$ ". Mesures effectuées à 300 K dans le mode "Low-alpha". L'énergie d'excitation vaut 700 eV et la fluence vaut 1.5 mJ/cm<sup>2</sup>. b) mesures du décalage en énergie en fonction du délai temporel entre la pompe et la sonde.

Avant les mesures pompe-sonde, l'aimantation de l'échantillon est saturée avec un champ magnétique de 0,025 T. Pendant les mesures pompe-sonde le champ magnétique extérieur appliqué est nul et l'échantillon est en rémanence. La zone de l'échantillon excitée par le laser de pompe revient à son état magnétique initial grâce au couplages magnétiques avec le reste de l'échantillon non excitée. La Figure II.5 représente la configuration géométrique des expériences pompe-sonde. Les rayons X (les photons IR) arrivent avec un angle de 45° (26°) par rapport au plan de la surface de l'échantillon. Nous mesurons donc la projection de l'aimantation du matériau magnétique sur l'axe de propagation de rayons X. L'angle entre la surface de l'échantillon et le détecteur de photoélectrons est de 90° car les photoélectrons sont préférentiellement émis dans cette direction [156].

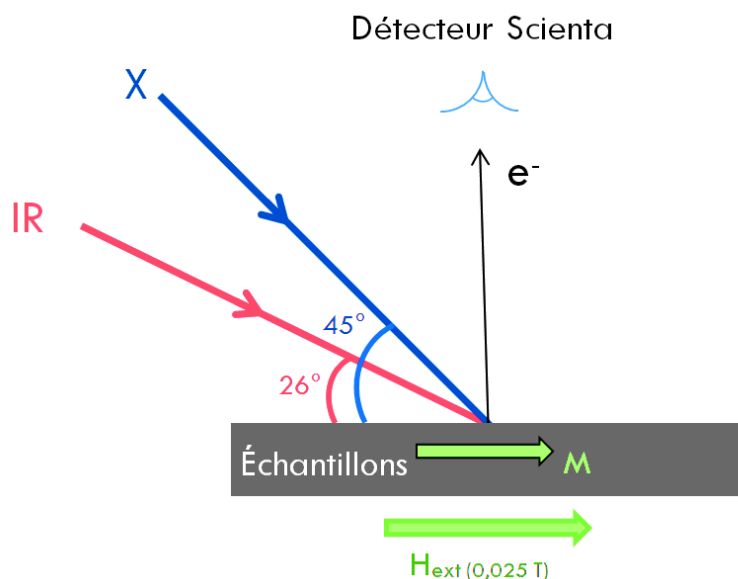


Figure II.5 : Schéma de la configuration géométrique des expériences pompe-sonde de la ligne TEMPO.

### II.1.3.2. La station Femtoslicing de la ligne UE56-ZPM

La station Femtoslicing de la ligne UE56-ZPM [157] est une des premières expériences utilisant les impulsions de rayons X de 100 fs générées par la technique de "Slicing" [142-144]. L'interaction entre une partie d'un paquet d'électrons dans l'anneau de stockage et une impulsion laser IR fs permet d'augmenter et de diminuer l'énergie des électrons ( $\Delta E \approx \pm 20$  MeV). Un élément dispersif, comme un aimant de courbure, sépare spatialement les électrons dont l'énergie a été modifiée du reste des électrons. Il est ensuite possible de sélectionner uniquement le rayonnement électromagnétique généré par les électrons ayant perdu de l'énergie. L'intensité de ce rayonnement électromagnétique (rayons X) émis est faible. L'utilisation d'une "Zone plate monochromator", dont la résolution énergétique est faible ( $E/\Delta E$  vaut entre 500 et 2000), permet de conserver un grand nombre de rayons X lors de leur sélection en énergie. La mauvaise résolution en énergie des rayons X entraîne que le signal XMCD est partiellement intégré sur le seuil  $L_3$  pour les MT et  $M_5$  pour les TR. Il est également possible d'effectuer des mesures pompe-sonde dans le mode picoseconde (hybride), c'est à dire avec une résolution temporelle d'environ 60 ps et une intensité de rayons X beaucoup plus grande ce qui permet un réglage rapide des conditions expérimentales.

La chambre Femtoslicing permet de réaliser des expériences tr-XMCD en transmission de rayons X (voir Figure II.6). Un champ magnétique de  $\pm 0,55$  T peut être appliqué via un électroaimant dans la direction de propagation des rayons X. L'aimantation du film magnétique étudié est alors hors du plan de la surface. Il est également possible d'étudier des films magnétiques dont l'aimantation est dans le plan en tournant l'échantillon c'est à dire lorsqu'il y a un angle non nul entre la direction de propagation des rayons X et la normale à la surface.

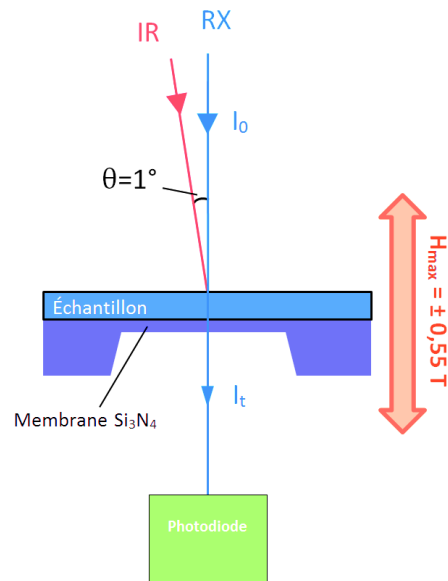


Figure II.6 : Schéma de l'expérience de transmission des rayons X sur la ligne Femtoslicing.

Pour réaliser des expériences pompe-sonde il est primordial d'avoir une bonne superposition spatiale et temporelle de la pompe et de la sonde. Je décris ci-dessous comment les superpositions spatiale et temporelle sont réalisées sur la station expérimentale Femtoslicing.

### Caractérisation et superposition spatiale de la pompe et de la sonde :

La largeur à mi-hauteur (FWHM) du faisceau de la pompe (de la sonde) de forme circulaire est de  $500 \mu\text{m}$  ( $150 \mu\text{m}$ ). Afin que la zone de l'échantillon sondée soit excitée le plus homogènement possible il faut que la taille du faisceau de la pompe soit toujours plus grande que celle de la sonde. La superposition spatiale entre la pompe et la sonde est réalisée grâce à une plaque percée d'un trou de  $200 \mu\text{m}$  de diamètre. Nous réglons la position du trou pour que les rayons X passent au travers. Nous réglons ensuite, grâce à des lentilles optiques, la position du faisceau de la pompe sur le trou. Une caméra macro permet de visualiser le faisceau laser qui débordé du trou. En considérant l'angle de  $1^\circ$  entre la pompe et la sonde (voir Figure II.6), il est possible de calculer quel sera le décalage du faisceau de la pompe si l'échantillon se déplace de  $3 \text{ mm}$  sur l'axe de propagation des rayons X. Ainsi un décalage de  $3 \text{ mm}$  de l'échantillon induit un déplacement d'environ  $50 \mu\text{m}$  du centre du faisceau de la pompe. Ce décalage n'est pas négligeable. Avoir une taille de faisceau de la pompe de plusieurs fois celle de la sonde, ce qui est bien le cas ici, permet de ne pas être trop sensible au déplacement de l'échantillon et aux dérives en position du faisceau laser au cours du temps.

Au vu de la taille du faisceau des rayons X, le volume de l'échantillon sondé est d'environ  $2 \cdot 10^{-15} \text{ m}^3$  ce qui correspond à environ  $8 \cdot 10^{13}$  atomes. Ainsi, la désaimantation est mesurée sur un très

grand nombre d'atomes donnant lieu à une mesure moyennée et représentative de l'ensemble du film magnétique.

### Superposition temporelle de la pompe et de la sonde :

La superposition temporelle entre la pompe et la sonde s'effectue en mesurant la désaimantation ultrarapide d'un film magnétique. Cette mesure est généralement effectuée d'abord dans le mode picoseconde (hybride) car l'intensité de rayons X est importante par rapport au mode femtoseconde (Slicing). Le temps de mesure nécessaire afin d'avoir une mesure avec une bonne statistique est donc plus faible. Un échantillon magnétique excité directement par l'impulsion laser possédant un signal XMCD important est utilisé. Le délai temporel pour lequel l'échantillon commence à se désaimanter correspond au  $t_0$ , c'est à dire à la superposition temporelle entre la pompe et la sonde. Cette première mesure nous permet de déterminer le  $t_0$  à 60 ps près. Nous réalisons ensuite la même mesure dans le mode femtoseconde (Slicing) pour déterminer le  $t_0$  avec plus de précision (à  $\sim 100$  fs près). Le faible angle ( $\sim 1^\circ$ ) entre les rayons X et le laser (voir Figure II.6) nous assure qu'une variation de la position de l'échantillon (suivant la direction de propagation des rayons X) entraîne un changement de la superposition temporelle négligeable. En effet, si l'échantillon bouge de 3 mm par rapport à la position à laquelle la superposition temporelle a été réalisée alors celle-ci change d'environ 1,5 fs. Ceci est négligeable par rapport à la résolution temporelle de l'expérience ( $\sim 130$  fs).

Avant les mesures pompe-sonde le champ magnétique appliqué extérieur permet de saturer l'aimantation de l'échantillon. Le champ magnétique appliqué est maintenu lors des expériences pompe-sonde et assure le retour à l'état magnétique initial de l'échantillon avant la prochaine impulsion laser. En tenant compte du nombre de rayons X transmis à travers l'échantillon ( $I_t$ ), du libre parcours moyen des IR ( $\lambda_{IR}$ ) et de la différence du signal transmis pour les deux directions de l'aimantation au seuil  $L_3$  ou  $M_5$  ( $I_t^+ - I_t^-$ ), le meilleur compromis est trouvé lorsque l'épaisseur du film magnétique étudié est de 15 nm (voir Figure II.7). En effet, si nous étudions un film de 1 nm seulement,  $I_t$  sera grand et l'échantillon pourra être considéré comme homogènement pompé en épaisseur mais  $I_t^+ - I_t^-$  sera trop faible (courbes noires). Si nous souhaitons mesurer un film de plusieurs dizaines de nm alors  $I_t^+ - I_t^-$  sera grand mais  $I_t$  sera faible et le film magnétique ne sera pas pompé homogènement (courbes vertes).



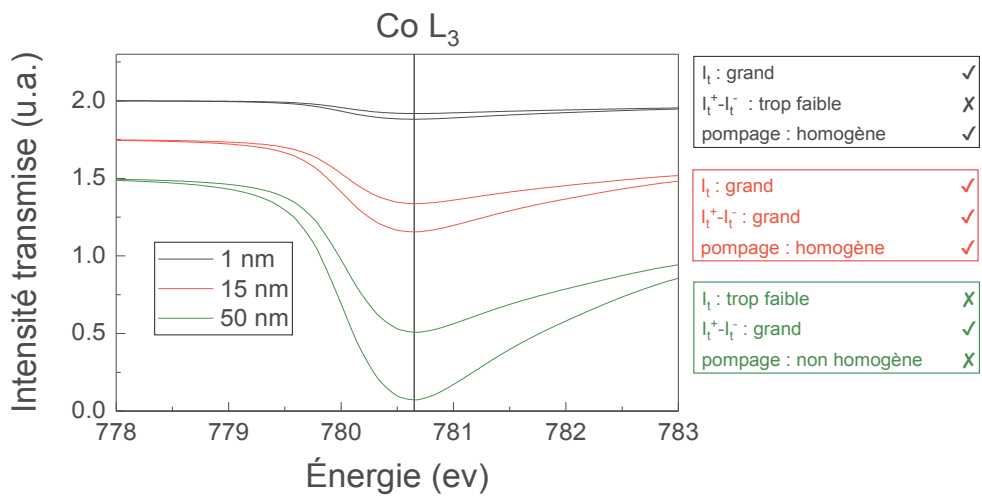


Figure II.7 : Schéma des intensités transmises au seuil Co L<sub>3</sub> en fonction de l'énergie des photons pour 3 épaisseurs différentes d'un film CoTb : 1 nm (en noir), 15 nm (en rouge) et 50 nm (en vert).

Une autre chambre expérimentale peut être connectée sur la ligne UE-56-ZPM et permet de réaliser des expériences tr-XRMR (time-resolved X ray Resonant Magnetic Reflectivity). J'ai participé aux mesures effectuées sur un film de Ni, réalisées dans cette chambre, dans le cadre d'une collaboration scientifique avec l'équipe de N. Jaouen (SOLEIL) [123].

## II.2. Élaboration, structure et caractérisation des échantillons

Tous les échantillons présentés dans ce manuscrit ont été élaborés dans un bâti de pulvérisation cathodique magnétron à l'Institut Jean Lamour (IJL) de Nancy par Michel Hehn. Je présente tout d'abord le principe de fonctionnement d'un bâti de pulvérisation cathodique magnétron. Dans un second temps je détaille et justifie les structures complètes des différents échantillons.

### II.2.1. La pulvérisation cathodique magnétron

En 1852, W. R. Grove montre que l'établissement d'une décharge électrique entre deux électrodes (cathode et anode) dans une enceinte à basse pression de gaz inerte entraîne la formation d'une couche mince sur l'anode du matériau qui compose la cathode. Ce phénomène sera étudié et développé pour la fabrication de film mince seulement un siècle plus tard. La pulvérisation cathodique magnétron repose donc sur le principe suivant : une très basse pression de gaz inerte, de l'argon (Ar), est injectée dans une chambre ultravide. Des électrons émis par des filaments de tungstène et accélérés vont ioniser les atomes d'Ar. Ceci engendre la formation d'un plasma froid constitué principalement d'électrons et d'atomes ionisés  $\text{Ar}^+$ . Une différence de potentiel entre la cathode (=cible) et l'anode (=substrat) accélère les ions  $\text{Ar}^+$  vers la cible. Ceux-ci vont arracher (pulvériser) des atomes ou des grappes d'atomes de la surface de la cible dont une partie vont se déposer sur le substrat et former une couche mince. Ce mécanisme est schématisé en Figure II.8.

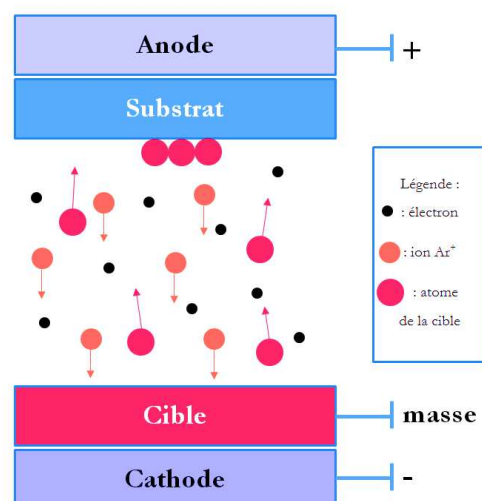


Figure II.8 : Schéma du principe de fonctionnement de la pulvérisation cathodique.

La pulvérisation cathodique magnétron est une technique de dépôt physique en phase vapeur (PVD). Elle permet des grandes vitesses de dépôt par comparaison à d'autres techniques comme par exemple l'épithaxie par jet moléculaire. Une vitesse de dépôt élevée tend à diminuer le nombre d'impuretés dans l'échantillon lors de la fabrication. Elle permet également de déposer tous types de matériaux (bons ou mauvais conducteurs thermiques ou électriques) tant qu'ils résistent à une mise sous vide dans la chambre de dépôt et à une élévation de leur température d'une centaine de degrés causée par les ions  $\text{Ar}^+$ .

Le bâti de pulvérisation cathodique de l'IJL à Nancy peut contenir 10 cibles (6 de 2 pouces et 4 de 3 pouces) de différents matériaux (Co, Pt, IrMn<sub>3</sub>, Cu, Tb ou Dy ou Gd, MgO, Ta, Al et Ni). Certaines cathodes des cibles sont convergentes ce qui permet d'élaborer des alliages  $\text{Co}_x\text{Tb}_{1-x}$ ,  $\text{Co}_x\text{Dy}_{1-x}$ ,  $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ , ou  $\text{Co}_x\text{Ni}_{1-x}$  et également des multicouches Co/Pt, Co/Ni etc. Pendant les dépôts, la température du substrat est maintenue à température ambiante via un système de refroidissement.

## II.2.2. Structures des échantillons

### II.2.2.1. Structure générale des échantillons

Tous les échantillons étudiés au cours de mon travail de doctorat ont une structure qui est représentée sur la Figure II.9. Cette structure est composée d'un substrat, d'un buffer, du matériau magnétique et d'une couche de protection (capping). Le substrat est soit une membrane de nitrure de silicium ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) pour les expériences de transmission des rayons X soit un monocristal de silicium (Si) pour les expériences de spectroscopie des photoélectrons et pour les mesures sur le VSM-SQUID. Le rôle du buffer est de limiter l'augmentation de la température de l'échantillon pendant les expériences pompe-sonde induite par la pompe (le réchauffement lié à la pompe). Sa structure est :

Ta (3 ou 5 nm) / [ Cu (20 nm) / Ta (3 ou 5 nm) ] x avec "x" le nombre de répétition.

Le Cu est un bon conducteur thermique et permet donc une bonne évacuation de la chaleur. L'insertion des couches de Ta a pour rôle de limiter l'augmentation de la rugosité qui est de l'ordre de 1 nm. Les matériaux magnétiques étudiés dans ce manuscrit de thèse sont des alliages binaires MT-TR et plus particulièrement CoGd, CoDy et CoTb. Leurs épaisseurs varient entre 15 et 20 nm. Le rôle du capping est de protéger le matériau magnétique de l'oxydation. Il est généralement composé d'une couche de 3 à 5 nm d'épaisseur d'Al ou de Pt. Dans le chapitre V nous étudions la désaimantation du matériau magnétique induite par des impulsions d'électrons. Pour cette étude nous avons besoin d'un capping qui, en plus de protéger la couche magnétique de l'oxydation, absorbe tous les photons IR de la pompe. C'est pourquoi nous avons rajouté une épaisse couche de Cu (entre 50 et 70 nm) pour cette étude.

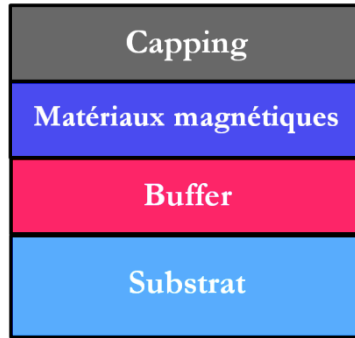


Figure II.9 : Schéma de la structure type des échantillons élaborés.

### II.2.2.2. Structures détaillées des échantillons

Je détaille ici les structures complètes des principaux échantillons, ceux sur lesquels des expériences pompe-sonde ont été réalisées, classées par chapitre. Les nombres entre parenthèse sont les épaisseurs exprimées en nm.

#### Chapitre III :

**Échantillon Co<sub>70</sub>Gd<sub>30</sub>** : Substrat = Si / Ta(3) / [Cu(20) / Ta(3)] x4 / Co<sub>70</sub>Gd<sub>30</sub>(20) / Al(5)

**Échantillon Co<sub>81</sub>Gd<sub>19</sub>** : Substrat = Si / Ta(3) / [Cu(20) / Ta(3)] x4 / Co<sub>81</sub>Gd<sub>19</sub>(20) / Al(5)

#### Chapitre IV :

**n°1** : Substrat = Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> / Ta(3) / [Cu(20) / Ta(3)] x3 / Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub>(18) / Ta(3) / Al (5)

**n°2** : Substrat = Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> / Ta(3) / [Cu(20) / Ta(3)] x3 / Co<sub>78</sub>Dy<sub>22</sub>(18) / Ta(3) / Al (5)

#### Chapitre V :

**n°1** : Substrat = Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> / Ta(5) / Cu(20) / Ta(5) / Co<sub>74</sub>Tb<sub>26</sub>(15) / Cu(3,5) / Pt(2)

**n°2** : Substrat = Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> / Ta(5) / Cu(20) / Ta(5) / Co<sub>74</sub>Tb<sub>26</sub>(15) / Cu(70) / Pt(4)

**n°3** : Substrat = Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> / Ta(5) / Cu(20) / Ta(5) / Co<sub>74</sub>Tb<sub>26</sub>(15) / Cu(3,5) / Pt(10) / Cu(50) / Pt(4)

**n°4** : Substrat = Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> / Ta(3) / [Cu(20) / Ta(3)] x3 / Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub>(18) / Ta(3) / Al (5)

**n°5** : Substrat = Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> / Ta(3) / Cu(20) / Ta(3) / Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub>(18) / Cu(3,5) / [Co(0.1)/Ni(0.6)] x5 / Cu(60) / Ta(3) / Al (5)

**n°6** : Substrat = Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> / Ta(3) / Cu(20) / Ta(3) / Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub>(18) / Cu(3,5) / [Co(0.1)/Ni(0.6)] x5 / Pt (9) / Cu(50) / Ta(3) / Al (5)

### II.2.2.3. Structure cristallographique des différents matériaux et anisotropie magnétique

L'IJL possède un savoir-faire et une grande expérience concernant l'élaboration d'échantillons. Ainsi, nous savons que le Cu et les capping (Al ou Pt) peuvent être considérés comme étant texturés. Le terme texturé signifie que ces matériaux sont polycristallins et les différents cristaux sont préférentiellement orientés suivant une direction cristallographique. Par exemple le Cu est texturé (111). Les alliages magnétiques MT-TR étudiés dans ce manuscrit (CoGd, CoDy et CoTb) et les couches de Ta de 3 ou 5 nm d'épaisseur ont une structure amorphe. Cela signifie que les atomes d'un alliage considéré ne respectent aucun ordre cristallographique à moyenne et grande distance. Nous savons que le CoTb possède une anisotropie magnétique hors plan. Une étude EXAFS réalisée sur un film amorphe de  $\text{Fe}_{74}\text{Tb}_{26}$  par Harris et al. en 1992 [158] montre que l'origine de cette anisotropie magnétique hors plan est la suivante : il y a plus de liaisons chimiques Fe-Tb hors du plan que dans le plan et il y a plus de liaisons chimiques Fe-Fe et Tb-Tb dans le plan que hors du plan. Cet article montre également que cette anisotropie magnétique hors plan est supprimée si le film magnétique est recuit à  $300^\circ\text{C}$  ( $\sim 573\text{ K}$ ) pendant une heure. Le chauffage augmente la mobilité des atomes ce qui conduit vers un système isotrope dans le plan et hors plan et donc sans anisotropie magnétique hors plan. Nous pensons que ces observations peuvent être étendues à l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  que nous avons étudié. L'alliage CoDy possède aussi une anisotropie magnétique hors plan. Nous avons réalisé une étude du champ coercitif en fonction de l'angle ( $\theta$ ) entre la direction du champ magnétique appliquée et la normale à la surface de l'échantillon (voir Annexe D). Cette étude montre qu'il est plus difficile de saturer l'aimantation pour  $\theta=0^\circ$  (hors du plan) que pour  $\theta=40^\circ$ . Ainsi il est plus facile de saturer l'aimantation dans le plan que hors du plan. Les alliages CoGd n'ont pas d'anisotropie magnétique hors plan. La direction de facile aimantation est dans le plan. Cependant il existe dans le plan une direction de facile et de difficile aimantations. Cette anisotropie peut provenir de l'existence d'inhomogénéités latérales de composition liées à un effet d'ombrage des flux d'atomes provenant de deux sources distinctes [159].

Dans ce chapitre j'ai détaillé à la fois les échantillons étudiés ainsi que les expériences utilisées. Nous pouvons maintenant passer aux chapitres expérimentaux. Nous commencerons avec les résultats obtenus sur la ligne TEMPO concernant l'alliage magnétique CoGd. L'étude de la désaimantation ultrarapide du Gd repose sur la mesure des photoélectrons dans le mode de remplissage "Low-Alpha". C'est la première fois que de telles mesures ont été réalisées sur la ligne TEMPO et c'est pourquoi cela m'a demandé beaucoup de temps de mise au point de l'expérience.





# III. Dynamiques ultrarapides des spins 4f du Gd induites par une impulsion laser dans les alliages $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$

Le but de mon travail dans ce chapitre est de tester différents modèles théoriques pour améliorer la compréhension de la dynamique ultrarapide (fs et ps) de l'aimantation des états 4f des terres rares induite par une impulsion laser IR fs.

Le contexte scientifique dans lequel s'inscrit ce projet est principalement défini par 3 articles et une thèse. En 2011 Wietstruk et al. [43] décrivent la dynamique d'aimantation des spins 4f du Gd par XMCD résolue en temps (tr-XMCD). Leurs résultats révèlent que le Gd se désaimante suivant deux temps caractéristiques définissant la dynamique ultrarapide. Le premier temps caractéristique vaut  $760 \pm 250$  fs. Le deuxième temps caractéristique (la température des électrons est égale à celle du réseau) vaut  $40 \pm 10$  ps. Leur interprétation décrit ces deux temps comme étant pilotés par les électrons à haute température pour le 1<sup>er</sup> temps et au couplage spin-réseau pour le 2<sup>ème</sup> temps. En 2015, Frietsch et al. [92] mesurent grâce à une source HHG et un détecteur de photoélectrons la dynamique d'aimantation d'un film Gd/W(001). Cette mesure détecte les photoélectrons 5d, et propose de suivre en dynamique la séparation de l'énergie d'échange des photoélectrons 5d après l'excitation laser. Ce résultat est comparé à la dynamique ultrarapide observée par photoémission des niveaux 4f du Gd par dichroïsme magnétique linéaire résolu en temps (tr-MLDAD). Leurs interprétations décrivent et comparent la dynamique des spins 5d et 4f du Gd. Nous pouvons remarquer que l'interprétation repose sur l'hypothèse forte (et non vérifiée à l'heure actuelle) d'une proportionnalité entre le signal tr-MLDAD et l'aimantation dans l'état transitoire. Ce-faisant, deux temps distinct sont observés pour les 5d et les 4f :  $800 \pm 100$  fs et  $14 \pm 3$  ps respectivement. Ces résultats tentent de valider un découplage entre les spins 5d et 4f contrairement aux résultats obtenus par tr-MOKE [48] et par XMCD [43]. Les auteurs expliquent ces différences avec ceux de Wietstruk et al. [43] et de Sultan [48], par la dynamique spécifique à la surface du film de Gd/W(001) [92]. En résumé, pour les TR, la littérature décrit des dynamiques d'aimantation ultrarapide de manière contradictoires. Ceci permet de penser que le mécanisme de la désaimantation ultrarapide n'est pas décrit correctement.

Au niveau théorique, l'article de Koopmans et al. de 2010 [30] est actuellement une référence dans ce domaine puisqu'il tente d'expliquer la diversité des dynamiques de désaimantation induite par les IR, observées expérimentalement. Les auteurs montrent que suivant les matériaux et leurs propriétés physiques, 2 types de dynamiques peuvent avoir lieu. Celle de type I, qui présente un seul temps caractéristique de désaimantation sub-picoseconde (et un temps de rétablissement de l'aimantation de l'ordre de quelques picosecondes) et celle de type II qui présente deux temps



caractéristiques de désaimantation : le 1<sup>er</sup> étant sub-picoseconde et le 2<sup>ème</sup> de plusieurs picosecondes (et un temps de rétablissement qui peut atteindre quelques nanosecondes). De manière générale, les MT sont de type I et les TR sont de type II. Cependant, pour le MT il a été montré qu'une transition de type I vers type II est possible en augmentant la fluence de la pompe [52,75]. Kim et al. [36] ont également montrés que le MT est de type II dans un alliage MT-TR avec 35% de TR. Une transition type II vers type I n'a jamais été mesurée pour les TR sous forme pur ou dans un alliage MT-TR. Au-delà de ce classement en deux catégories, les mécanismes physiques sous-jacents sont complexes et les consensus difficiles à établir.

Mon travail se fixe donc comme objectif de décrire la dynamique des spins 4f du Gd en surface dans des films d'alliages  $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$  par tr-MCDAD afin de tester la validité des différentes interprétations données dans la littérature [30,43,48,92]. Pour ce faire nous avons mesuré les dynamiques de désaimantation picoseconde des électrons 4f du Gd dans plusieurs alliages  $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$ . La technique de mesure repose sur l'utilisation des rayons X polarisés circulairement, permettant d'être sensible à l'aimantation des états 4f via le dichroïsme circulaire magnétique en photoémission distribuée angulairement (MCDAD). L'un des avantages de la technique de photoémission est sa sélectivité chimique, électronique et sa sensibilité à la surface des films. En effet dans nos conditions expérimentales (TEMPO - synchrotron SOLEIL) seulement le premier nanomètre du film magnétique contribue au signal détecté. Par ailleurs, au regard de la longueur de pénétration et de la direction d'incidence des photons IR, ce premier nanomètre est pompé de manière homogène durant les expériences pompe-sonde.

D'un point de vue expérimental une mesure dynamique en mode low-alpha prend plusieurs jours. Nous devons donc nous assurer que la surface de l'échantillon n'évolue pas au cours du temps. C'est pour cela que nous verrons en détail les caractérisations statiques réalisées par VSM-SQUID, MOKE, AES et XPS. Puis nous présenterons les mesures dynamiques. Nos résultats seront ensuite interprétés en les comparants à la littérature.

Ce travail a donné lieu à une publication :

Mathieu G. Silly, Tom Ferté, Marie Agnes Tordeux, Debora Pierucci, Nathan Beaulieu, Christian Chauvet, Federico Pressacco, Fausto Sirotti, Horia Popescu, Victor Lopez-Flores, Marina Tortarolo, Maurizio Sacchi, Nicolas Jaouen, Philippe Hollander, Jean Paul Ricaud, Nicolas Bergeard, Christine Boeglin, Bharati Tudu, Renaud Delaunay, Jan Luning, Gregory Malinowski, Michel Hehn, Cédric Baumier, Franck Fortuna, Damjan Krizmancic, Luigi Stebel, Rudi Sergo et Giuseppe Cautero, "*Pump-probe experiments at the TEMPO beamline using the low alpha operation mode of synchrotron SOLEIL*", Journal of Synchrotron Radiation **24**, 886-897 (2017).

# III.1. Caractérisations magnétiques et chimiques

## III.1.1. Caractérisations magnétiques

### III.1.1.1. Mesures VSM-SQUID et PPMS : cycles d'hystérésis et $M(T)$

Pour optimiser et caractériser les échantillons utilisés dans les expériences pompe-sonde, nous avons mesuré différents cycles d'aimantation en fonction du champ magnétique appliqué pour différentes valeurs de concentration de l'alliage CoGd. Nous avons mesuré les cycles d'hystérésis de tous les échantillons par VSM-SQUID ou par PPMS pour vérifier qu'ils sont carrés, que le moment magnétique est orienté dans le plan et que les champs coercitifs sont inférieurs à 200 Oe, le champ magnétique maximum pour l'expérience pompe-sonde sur TEMPO-SOLEIL. Nous avons également mesuré la variation du moment magnétique total en fonction de la température afin de déterminer la température de Curie des différents alliages.

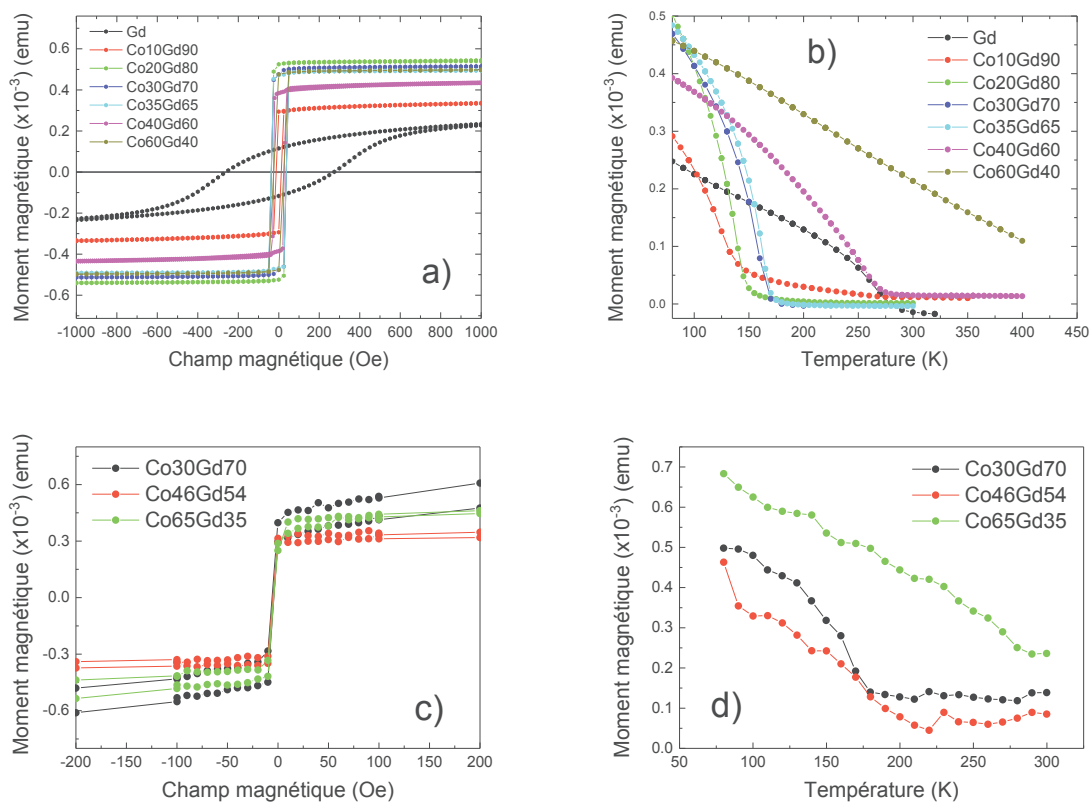


Figure III.1: Évolution du moment magnétique en fonction du champ magnétique appliqué a) et c) et en fonction de la température b) et d). a) et b) sont des mesures réalisées avec un VSM-SQUID. c) et d) sont des mesures réalisées avec un PPMS.

La Figure III.1 représente des mesures réalisées au VSM-SQUID et PPMS sur différents alliages  $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$ . Le VSM-SQUID est un appareil de mesure plus précis que le PPMS. Nous pouvons

le constater en comparant les mesures a) et c) ainsi que les mesures b) et d) de la Figure III.1. Sur le graphique a) nous pouvons voir que tous les cycles d'hystérésis sont carrés avec un champ coercitif inférieur à 200 Oe sauf pour l'échantillon de Gd pur. Cet échantillon ne peut donc pas être mesuré sur la ligne expérimentale TEMPO par photoémission. Sur le graphique d) les moments magnétiques des échantillons  $\text{Co}_{30}\text{Gd}_{70}$  et  $\text{Co}_{54}\text{Gd}_{46}$  ne valent pas 0 après  $T_C$ . Cela peut s'expliquer par une mauvaise calibration du PPMS ou par une perturbation extérieure. La plage de température du VSM-SQUID est de 4 à 400 K. Les alliages dont la  $T_C$  est supérieure à 400 K ne peuvent donc pas être caractérisés par ces méthodes. Pour compléter nos mesures, nous nous sommes appuyés sur plusieurs articles théoriques qui calculent  $T_C$  en fonction de la concentration de Gd dans les alliages CoGd. Les articles sont ceux de Tao et al. de 1974 [160], de Duc et al. de 1993 [161] et de Hansen et al. de 1989 [162].

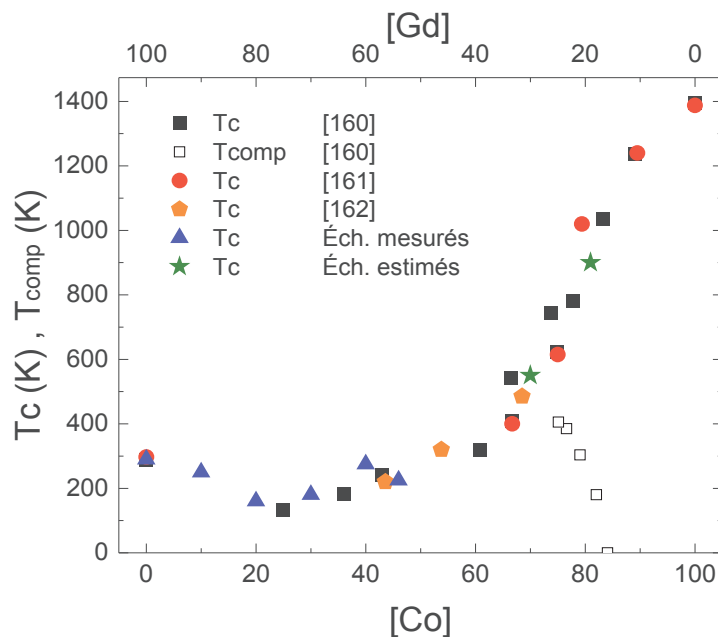


Figure III.2: Évolution de la température de Curie et la température de compensation en fonction de la concentration dans les alliages  $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$  regroupant nos mesures (triangles bleus), des estimations (étoiles vertes) ainsi que des données extraites des articles [160-162].

Sur la Figure III.2 nous observons que nos mesures sont en accord avec les données extraites des différents articles qui décrivent des travaux théoriques et expérimentaux. Nous remarquons que la  $T_C$  en fonction de la concentration n'évolue pas de manière linéaire entre la  $T_C$  donnée pour le Gd pur et la  $T_C$  du Co pur. Pour une concentration de Co comprise entre 0% et environ 40% la  $T_C$  de l'alliage est inférieure à celle du Gd pur. Concernant nos échantillons  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$  étudiés par pompe-sonde sur TEMPO, nous devons malheureusement estimer la  $T_C$  en utilisant la figure I.2. Les valeurs extraites sont  $T_C = 550$  K et 900 K, qui sont représentées par les étoiles vertes de la Figure III.2. D'après l'article de Tao et al. [160], les alliages dont la concentration en Co est comprise entre 75 % et 84 % possèdent une  $T_{comp}$ . Cela signifie que l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  dont  $T_C = 550$  K ne possède pas de  $T_{comp}$  et que l'aimantation du sous réseau du Gd est toujours plus grande que l'aimantation du sous réseau du Co, quelle que soit la température de travail. Par conséquent, l'aimantation globale de l'alliage est pilotée par le Gd entre  $T = 0$  K et  $T = T_C$ . Par

contre, pour notre deuxième alliage  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$  il existe une température de compensation ( $T_{\text{comp}} = 220 \text{ K}$ ). L'aimantation globale est donc pilotée par le Gd à basse température, entre  $T = 0 \text{ K}$  et  $220 \text{ K}$  et par le Co à plus haute température, entre  $T = 220 \text{ K}$  et  $T = T_C$ . Toutes ces informations qui concernent les propriétés magnétiques statiques des alliages CoGd seront très utiles pour avoir une discussion complète afin de comparer les résultats de dynamique d'aimantation obtenus pour les deux alliages  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ .

### III.1.1.2. Mesures MOKE : cycles d'hystérésis et champs coercitifs

En vue de compléter la caractérisation des alliages étudiés dans mon travail, nous avons mesuré par MOKE les cycles d'hystérésis à  $T = 300 \text{ K}$  pour différents échantillons présentant une forte concentration de Co. Le MOKE est une technique qui est principalement sensible au moment magnétique des électrons 3d du Co. La Figure III.3 a) montre les cycles d'hystérésis pour 5 échantillons dont la concentration en Gd est comprise entre 12 % et 23,5 %. Le signe du cycle d'hystérésis s'inverse entre l'échantillon  $\text{Co}_{79,6}\text{Gd}_{20,4}$  piloté Co, et  $\text{Co}_{78}\text{Gd}_{22}$  piloté Gd. Cela signifie que la  $T_{\text{comp}}$  de l'échantillon  $\text{Co}_{79,6}\text{Gd}_{20,4}$  est inférieure 300 K et celle de l'échantillon  $\text{Co}_{78}\text{Gd}_{22}$  est supérieure à 300 K. Le graphique b) représente le champ coercitif en fonction de la concentration. Nous savons que le champ coercitif diverge lorsque nous approchons la  $T_{\text{comp}}$  de l'alliage. D'après l'article de Tao, pour avoir une  $T_{\text{comp}}$  qui vaut 300 K il faut que la concentration de l'alliage soit  $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$  ce qui est représenté ici par le trait noir vertical du graphique b). Nos mesures sont donc en accord avec l'article de Tao et al. [160]. Ceci confirme la qualité de nos échantillons dont les valeurs peuvent donc être superposées avec les courbes extraites de la littérature, comme celle de Tao et al. [160] sur la Figure III.2.

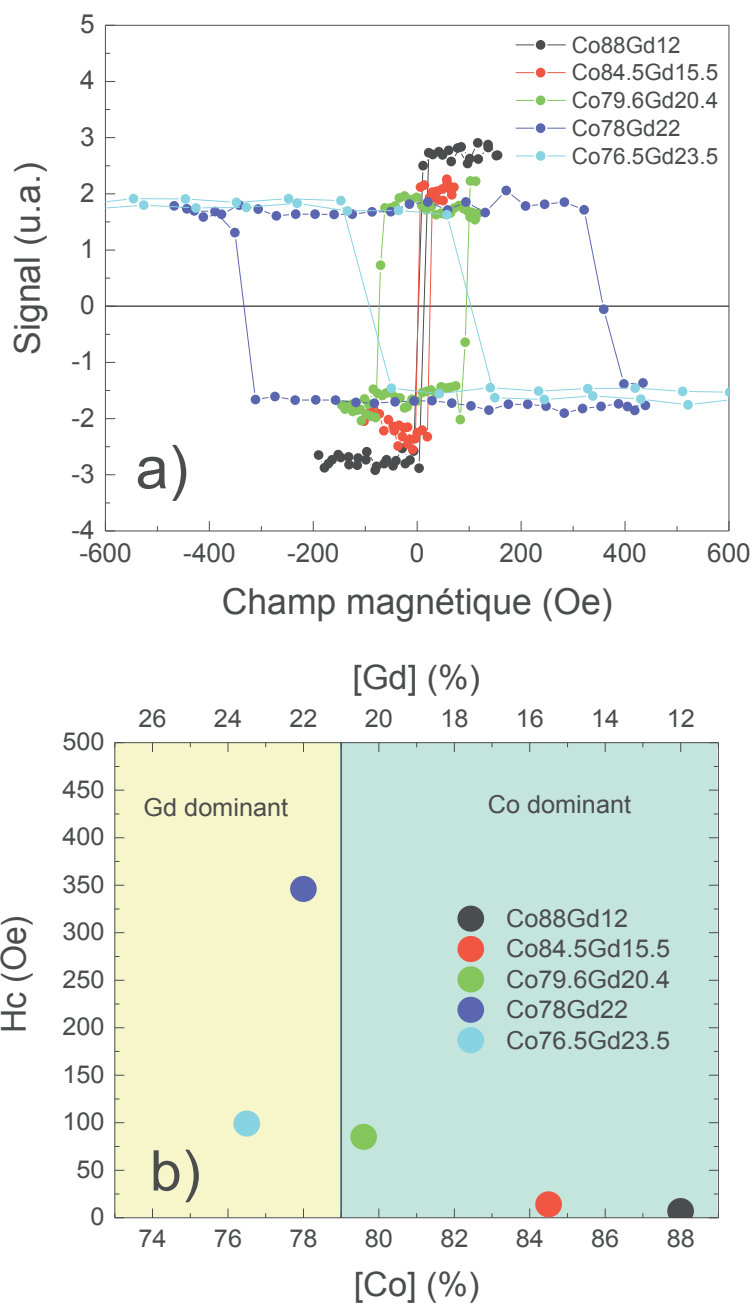


Figure III.3 : a) Cycles d'hystérésis mesurés à 300 K par une technique MOKE pour différents alliages  $Co_{100-x}Gd_x$ . b) variation du champ coercitif en fonction de la concentration en Co et Gd.

Nous avons donc caractérisé nos différents échantillons par différentes techniques (VSM-SQUID, PPMS, MOKE) pour déterminer les formes des cycles d'hystérésis, les champs coercitifs, les températures de Curie et les températures de compensation.

### III.1.2. Caractérisation chimiques

La spectroscopie de photoémission des rayons X, XPS, que nous avons utilisée pour mesurer la dynamique ultrarapide de l'aimantation des spins 4f du Gd, est sensible à la surface des échantillons (~1 nm). La couche de protection (appelée « capping » par la suite) des échantillons étant trop épaisse (~5 nm) pour extraire les photoélectrons à partir de l'alliage CoGd, nous devons réaliser un bombardement ionique (BI) afin d'amincir la couche de protection en aluminium. Nous disposons à l'IPCMS d'une chambre ultravide, d'un canon à ion et d'un spectromètre d'électrons Auger (AES). Ceci nous permet de trouver les bonnes conditions de bombardement ionique (pression d'Argon, tension accélératrice, intensité du courant dans le filament, durée de BI, distance canon-échantillon et angle entre la surface de l'échantillon et la direction de propagation des ions) pour enlever tout ou seulement une partie de l'aluminium. Puisque l'AES permet une caractérisation quantitative de la composition de la surface des échantillons nous avons pu étudier les différents phénomènes qui se produisent à la surface des échantillons lors des bombardements. Nous avons réalisé une étude par AES sur 3 échantillons,  $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ ,  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et  $\text{Co}_{30}\text{Gd}_{70}$  (voir Annexe E). Nous allons présenter les résultats de manière détaillée pour l'échantillon  $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$  et ensuite nous comparerons les résultats finaux pour les 3 échantillons différents.

#### III.1.2.1. Mesures AES : échantillon $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$

Cette étude consiste à suivre l'évolution de l'intensité des pics Auger des différents constituants des premières couches de surface en fonction du traitement de bombardement ionique. Ces éléments sont : Gd, Co, Al,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , AlO et  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ . Le travail a été réalisé à  $T = 300 \text{ K}$  et à 45 degrés d'incidence des ions Argon, ce qui correspond aux conditions expérimentales sur la ligne TEMPO – SOLEIL. La Figure III.4 est une représentation schématique de la structure des échantillons une fois qu'ils ont été mis à l'air libre.

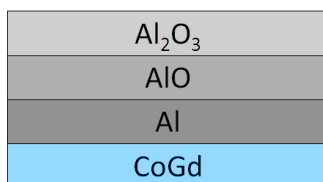


Figure III.4 : Schéma structurelle de la partie supérieure des échantillons.

### Évolution chimique de la surface en fonction du temps de BI:

La Figure III.5 représente  $dN/dE$  en fonction de l'énergie cinétique des électrons pour différents temps de BI. La plage de mesure en énergie cinétique s'étend de 30 à 1400 eV. Les durées de BI vont de 5 min jusqu'à 125 min.

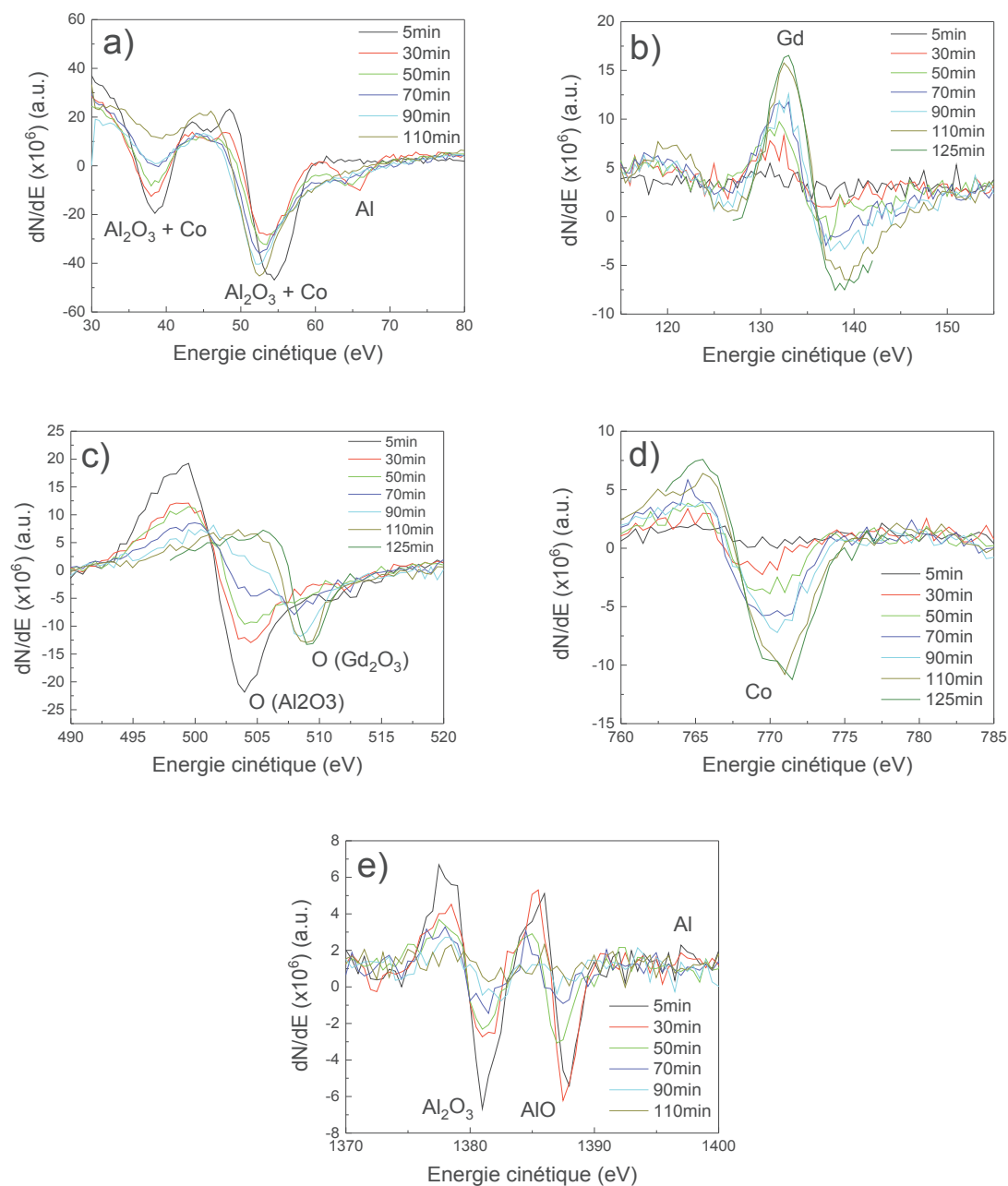


Figure III.5: Les graphiques a), b), c), d) et e) représentent l'intensité Auger  $dN/dE$  en fonction de l'énergie cinétique des électrons de l'Al, Gd, O ( $Al_2O_3$ ) + O ( $Gd_2O_3$ ), Co et Al ( $Al_2O_3$ ) + Al (AlO) respectivement pour différents temps de BI de l'échantillon  $Co_{80}Gd_{20}$ .

Ces différentes mesures nous ont permis de suivre l'évolution de l'intensité Auger de l'aluminium métallique, du gadolinium métallique, de l'oxygène dans l'oxyde d'aluminium et dans l'oxyde de

gadolinium, le cobalt métallique et l'aluminium dans les oxydes d'aluminium ( $\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{AlO}$ ) en fonction du temps de BI.

### Évolution du capping en fonction du temps de BI :

La Figure III.6 représente l'intensité pic à pic du signal Auger, normalisée par la section efficace des différents éléments chimiques qui constituent le capping, c'est à dire l'Al, l' $\text{Al}_2\text{O}_3$  et l' $\text{AlO}$  en fonction du temps de BI. Pour le premier point de la Figure III.6, à 5 min de BI, nous observons une intensité de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et de  $\text{AlO}$  importante ainsi qu'une intensité nulle pour Al. Cela signifie que l'épaisseur de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et de  $\text{AlO}$  est encore trop importante (supérieure à 1 nm) pour pouvoir mesurer des électrons provenant de la couche métallique Al. À  $t=30$  min de BI : nous observons une diminution du signal de l' $\text{Al}_2\text{O}_3$  car cette couche est au-dessous des autres et c'est donc elle qui subit le BI. Nous observons aussi une augmentation du signal  $\text{AlO}$  ainsi qu'un signal non nul provenant de l'Al métallique car l'épaisseur de la couche de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  est plus fine qu'à  $t=5$  min. Pour les temps de BI plus long nous observons une diminution du signal pour l'Al, l' $\text{AlO}$  et l' $\text{Al}_2\text{O}_3$ . La courbe magenta est la somme des intensités des éléments constituant le capping. Pour les deux premiers points nous n'observons pas de diminution du signal. Cela signifie que l'épaisseur du capping est plus grande que l'épaisseur que nous sondons. Ensuite, pour des temps de BI plus longs nous observons une décroissance exponentielle. Ces mesures nous montrent que pour retirer l'intégralité du capping nous devons réaliser un BI de 120 min dans les conditions expérimentales actuelles. Attention cependant car dans cette étude après chaque BI nous mesurons l'échantillon pendant plusieurs dizaines de minutes. La surface s'oxyde très certainement au cours de la mesure Auger. Cela implique que 8 séances de BI de 15 min chacune, espacées d'une heure (avec une ré-oxydation de la surface) ne sont pas équivalentes à une séance unique de 120 minutes de BI. Si le BI est réalisé en une seule fois nous devons donc considérer une durée de BI légèrement inférieure à 120 min.

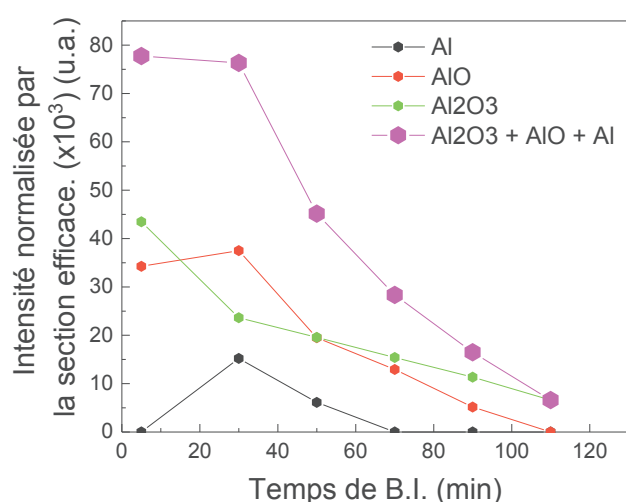


Figure III.6: Intensité pic à pic du signal Auger (dN/dE) normalisée par la section efficace en fonction du temps de BI des différents éléments chimiques qui constituent la couche de capping.



### Ségrégation du Gd :

La Figure III.7 montre l'intensité du Gd, du Co, de l'O dans l' $\text{Al}_2\text{O}_3$  et dans le  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  ainsi que le rapport d'intensité Gd sur Co. En observant le point correspondant à 70 min de BI nous mesurons la présence d'oxyde de gadolinium alors qu'une partie du capping initial est encore présent. Ceci est possible car il n'y a plus d'aluminium métallique ce qui signifie que l'oxygène peut pénétrer plus profond dans l'échantillon jusqu'à l'alliage CoGd. De plus le BI entraîne une augmentation de la rugosité des couches. Il est donc également possible qu'à certains endroits de la surface de l'échantillon il n'y a plus du tout de capping empêchant l'oxydation. Mesurer le rapport d'intensité du Gd sur le Co nous permet de quantifier la concentration de Gd observée à la surface. Si nous ne considérons pas le premier point car les intensités mesurées sont faibles, nous observons un rapport Gd sur Co relativement constant autour de 2 tout au long des mesures. Un rapport de 2 correspond à une concentration élevée en surface de  $[\text{Gd}]_{\text{surface}} = 67\%$ . Sachant que la concentration nominale en volume est de  $[\text{Gd}]_{\text{volume}} = 20\%$ , le rapport des concentrations  $[\text{Gd}]_{\text{surface}} / [\text{Gd}]_{\text{volume}}$  est de 3,35. Nous observons donc une concentration accrue de Gd en surface environ 3 fois plus élevée que celle dans le volume de l'alliage.

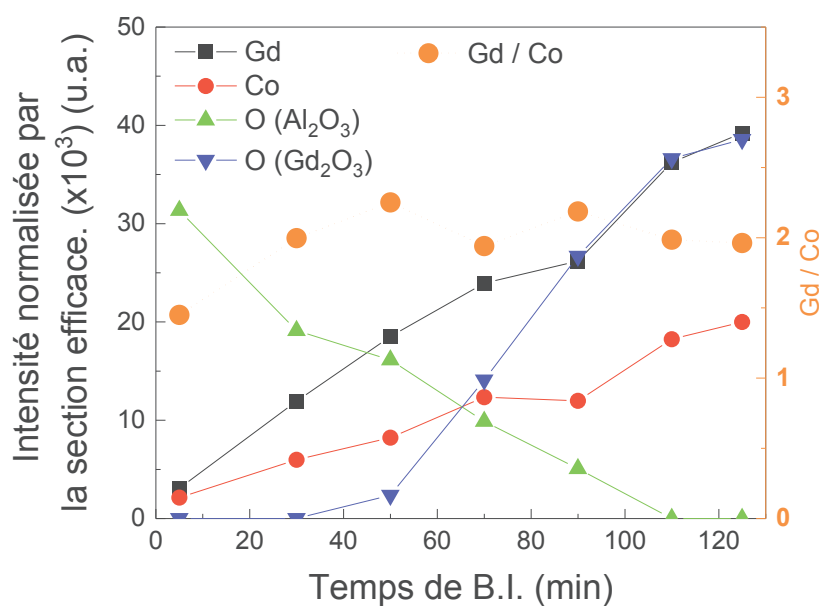


Figure III.7: Intensité pic à pic du signal Auger (dN/dE) normalisée par la section efficace de différents éléments chimiques en fonction du temps de BI.

L'origine de cette concentration en Gd plus élevée en surface qu'en volume est la faible tension de surface du Gd par rapport au Co. Dans l'article de Mezey et al. de 1982 [163] les auteurs calculent la tension de surface de différents éléments à 298 K. Le Tableau III.1 résume les valeurs de tension de surface des différents éléments qui nous intéressent. Il faut noter que la surface considérée doit être libre de capping pour que ces valeurs et ce mécanisme de ségrégation préférentielle soient effectifs.

Tableau III.1: Tension de surface à T= 298 K pour différents éléments chimiques

	Ta	Co	Gd	Al
Tension de surface	3,018	2,709	0,935	1,085

La tension de surface du Gd est environ 3 fois plus faible que celle du Co. Cela signifie qu'une couche de Gd pur vient préférentiellement en surface de l'alliage ce qui change la concentration observée lorsque nous sondons la surface. D'après le travail de thèse de N. Bergéard de 2010 [151], l'épaisseur de la couche de Gd ségrégué est d'environ 5 Å ce qui correspond à peu près à une monocouche atomique. Sur la Figure III.7 nous observons que le rapport Gd / Co est déjà d'environ 2 après seulement 30 min de BI alors qu'il n'y a pas encore d'oxygène qui atteint l'alliage CoGd et qu'une bonne partie du capping est encore présente. Cela signifie que la ségrégation du Gd a déjà lieu pendant l'élaboration des échantillons. Comme la tension de surface du Gd est inférieure à celle de l'Al, il est possible que le Gd ségrége au-dessus de l'Al. Afin de savoir si c'est le cas nous avons effectué des mesures de l'intensité du Gd et de l'Al en fonction du temps de BI. La Figure III.8 montre que nous observons un signal de l'Al alors que celui du Gd est encore nul. En s'appuyant sur la courbe universelle du libre parcours moyen en fonction de l'énergie cinétique des électrons Auger nous pouvons considérer que le libre parcours moyen des électrons à 68 eV pour l'Al et à 138 eV pour le Gd sont les mêmes ( $\sim 5$  Å), cela signifie que le Gd ne ségrége pas au-dessus de l'Al.

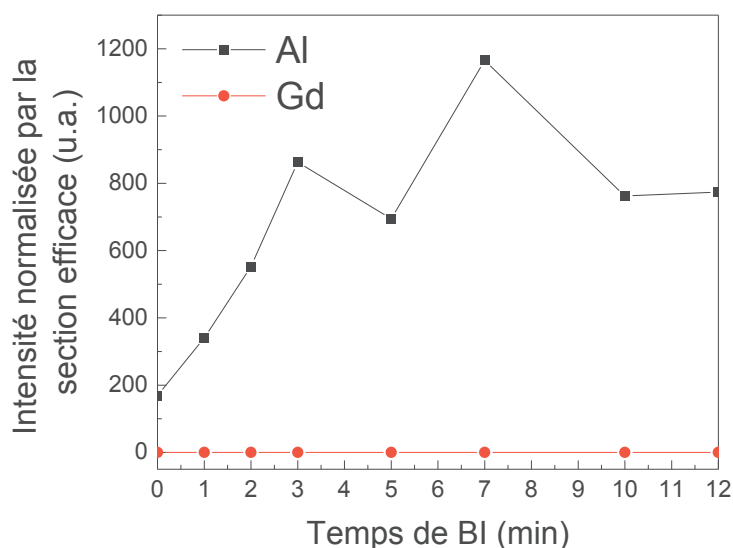


Figure III.8: Intensité pic à pic du signal Auger (dN/dE) normalisée par la section efficace de l'Al et du Gd en fonction du temps de BI.

### Oxydation de la surface au cours du temps :

Nous avons également étudié l'oxydation de la couche de CoGd une fois le capping retiré en mesurant l'évolution de l'intensité du Gd, du Co et de l'O dans la couche CoGd en fonction du temps. Le système est maintenu sous ultravide à une pression de  $1.10^{-9}$  mbar. Les résultats sont présentés dans la Figure III.9 et nous mettons en évidence que l'intensité Auger du Gd diminue de 54 % après 1500 minutes. Dans la même période, l'intensité Auger du Co diminue de 44 %, et l'intensité Auger de l'O augmente de 71%. En ajustant les données avec une exponentielle décroissante, nous pouvons extraire un temps caractéristique ' $\tau$ '. Celui-ci vaut  $182 \pm 15$  min pour l'O,  $191 \pm 11$  min pour le Gd et  $105 \pm 10$  min pour le Co. Nous trouvons le même temps caractéristique pour le Gd et l'O. Le temps caractéristique du Co est quasiment deux fois plus faible que celui du Gd ou de l'O. Ces résultats sont cohérents avec une oxydation de la couche de Gd pur en surface de l'alliage au cours du temps et sous atmosphère contrôlée à  $1.10^{-9}$  mbar. L'épaisseur de la couche de Gd va donc augmenter pour créer une couche d'oxyde de gadolinium. Le temps caractéristique du Co est plus court que les deux autres car l'épaisseur de matière qui se trouve au-dessus augmente. Ces résultats montrent qu'une fois le capping retiré la surface évolue avec des temps caractéristiques compris entre 100 min et 200 min. Ces temps caractéristiques sont reliés à la pression dans la chambre et particulièrement à la pression partielle d'oxygène. Plus la pression est faible plus les temps caractéristiques d'oxydation seront grands. Bien que la pression dans la chambre d'expérience de la ligne TEMPO est plus faible, environ  $1.10^{-10}$  mbar, que celle dans la chambre à l'IPCMS, environ  $1.10^{-9}$  mbar, le laser de pompe utilisé sur TEMPO pour réaliser les expériences de dynamiques de l'aimantation va favoriser l'oxydation de la surface. Nous concluons ainsi que les expériences de dynamiques de l'aimantation des alliages CoGd n'est possible que si nous laissons une partie du capping contenant encore une partie d'aluminium métallique. Nous constatons également que le rapport de l'intensité du Gd sur celle du Co est relativement constant, autour de 2, pendant les 300 premières minutes. Cela signifie que le rapport mesuré juste après le BI ou 300 minutes après aura environ la même valeur. Ceci va faciliter l'étude suivante dans le sens où nous ne sommes pas obligés d'attendre un temps bien défini entre la fin du BI et la mesure AES.

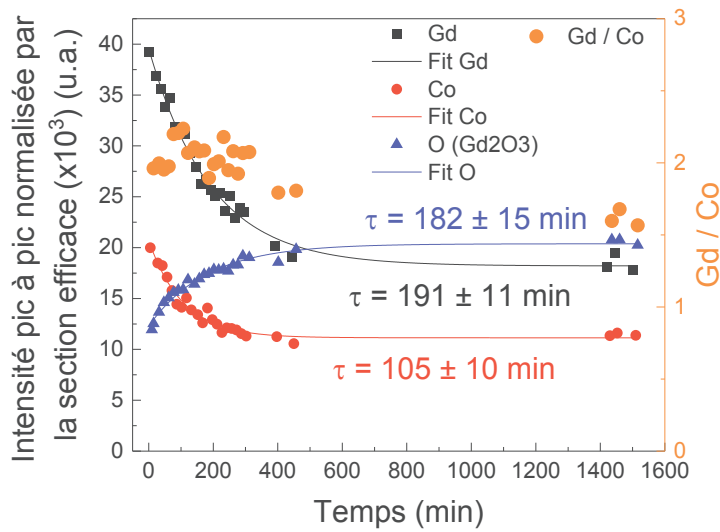


Figure III.9: Intensité pic à pic du signal Auger (dN/dE) du Gd, du Co et de l'O en fonction du temps. Oxydation de l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$  sans capping à  $T=300\text{ K}$  et  $P=1.10^{-9}\text{ mbar}$ .

### III.1.2.2. Mesures AES : comparaisons entre les différents échantillons $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$

Nous avons également étudié d'autres alliages CoGd afin de mesurer la concentration de Gd de surface par rapport à celle de volume. Comme nous l'avons vu précédemment, les mesures par Auger effectuées avec l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$  donnent un rapport entre intensités normalisées  $\text{Gd} / \text{Co} = 2$ . Cela correspond à une concentration atomique et locale du premier nanomètre en surface de Gd de 67 %. Pour les échantillons  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et  $\text{Co}_{30}\text{Gd}_{70}$  les rapports des intensités Auger valent 4,5 et 26 respectivement. Ce qui correspond à une concentration atomique de Gd en surface de 82 % et 96 % respectivement. Nous nous sommes également appuyés sur l'article de Shen et al. de 1982 [187] dans lequel les auteurs étudient un film amorphe de CoGd via une technique de XPS. Ils observent une concentration de Gd en surface qui est plus élevée que dans le volume. La  $[\text{Gd}]_{\text{surface}} = 70\%$  alors que la  $[\text{Gd}]_{\text{volume}} = 27\%$ . Le rapport  $[\text{Gd}]_{\text{surface}} / [\text{Gd}]_{\text{volume}} = 2,6$ . Ces résultats ainsi que les nôtres sont reportés dans le Tableau III.2 ci-dessous.

Tableau III.2: Tableau récapitulatif du rapport Gd sur Co mesuré par AES pour différents alliages CoGd. Le terme surface correspond à une épaisseur d'environ 1 nm.

[Gd] volume (%)	Rapport vol Gd / Co	[Gd] surface (%)	[Gd] surface / [Gd] volume
0	--	0	--
20	2	67	3,35
27	--	70	2,6
30	4,5	82	2,34
70	26	96	1,37
100	--	100	1

Les échantillons possédant une concentration  $[Gd]_{\text{volume}} = 0\%$  ou  $100\%$  n'ont pas été étudiés mais nous pouvons tout de même en déduire que la  $[Gd]_{\text{surface}}$  sera la même, c'est à dire  $0\%$  et  $100\%$  respectivement. Le Tableau III.2 nous permet finalement de tracer la  $[Gd]_{\text{surface}}$  en fonction de la  $[Gd]_{\text{volume}}$  représentée sur la Figure III.10.

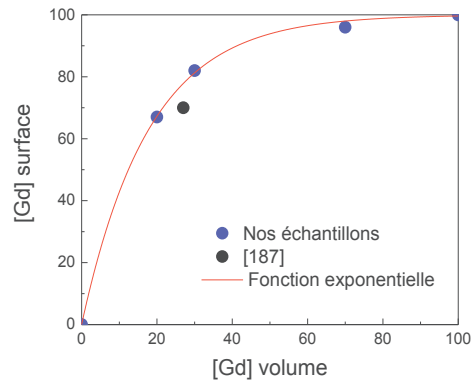


Figure III.10:  $[Gd]_{\text{surface}}$  en fonction de  $[Gd]_{\text{volume}}$ . Une fonction exponentielle (ligne rouge) permet d'ajuster les données.

Les données extraites de l'article de Shen et al. [187] s'intègrent assez bien avec les données mesurées sur nos échantillons. Nous pouvons ajuster les données avec une fonction exponentielle. La ségrégation d'une monocouche de Gd en surface explique ces résultats. Sans ségrégation nous aurions dû avoir une droite linéaire de la  $[Gd]_{\text{surface}}$  en fonction de  $[Gd]_{\text{volume}}$ .

L'étude de la ségrégation du Gd vers la surface suppose que l'épaisseur sondée appelée "surface" soit constante pour l'ensemble des alliages étudiés. Une alternative à cette étude aurait été de faire varier l'épaisseur sondée de "surface" pour une concentration donnée. Cette alternative est cependant en contradiction avec les mesures Auger dont la profondeur sondée est constante.

Cette étude AES sur différents échantillons de CoGd nous permet de tirer certaines conclusions. Tout d'abord nous avons mesuré une augmentation de la concentration de Gd en surface. Cela s'explique par la présence d'environ 1 monocouche de Gd ségrégué en surface de l'alliage CoGd. Nous avons également montré que cette monocouche de Gd ségrégué reste bloquée sous le capping d'Al. Pour les mesures de dynamiques de l'aimantation il est impératif de laisser une partie du capping sur l'alliage pour stabiliser chimiquement ce dernier. Cette étude nous amène à nous poser des questions importantes dans le cadre des études de dynamique de l'aimantation de ses couches d'alliages. Sachant que la surface de l'alliage présente une concentration accrue en Gd : est-ce que les propriétés magnétiques statiques de la surface sont différentes de celles du volume stœchiométrique de l'alliage CoGd ? Pouvons-nous considérer que la dynamique d'aimantation mesurée par photoémission résonante, sera celle de l'alliage homogène ? La prochaine étude permet d'apporter une réponse à la première question. Il faudra cependant attendre les résultats de la dynamique de l'aimantation sur deux alliages différents pour répondre à toutes nos interrogations.

### III.1.3. Caractérisations magnétiques : évolution du signal XMCD de la surface et du volume en fonction de la température

#### III.1.3.1. Géométrie de mesure et échantillons

Lors de cette étude nous avons réalisé des mesures XAS sensibles au volume et des mesures TEY sensibles à la surface des couches de CoGd pour comparer les signaux XMCD émanant de la surface avec ceux du volume. Pour éventuellement différencier leur comportement, nous avons comparé les évolutions des deux signaux XMCD en fonction de la température. Ces mesures ont été réalisées sur la chambre ALICE du synchrotron BESSY II dans la configuration géométrique représentée sur la Figure II.2. La valeur de l'angle  $\theta$  est de  $35^\circ$ .

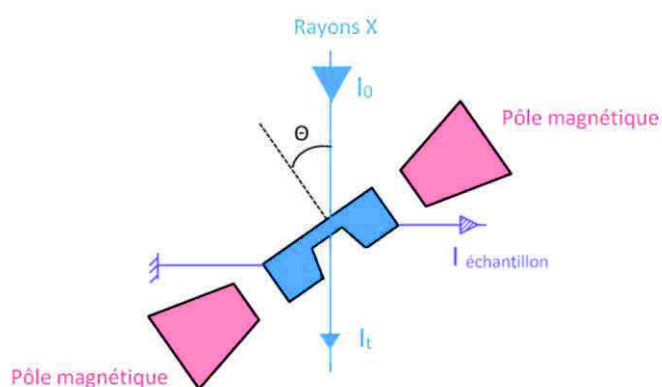


Figure III.11 : Schéma de la configuration géométrique de l'expérience sur la ligne ALICE à BESSY II.

Nous avons étudié deux échantillons avec une structure légèrement différente de celle des échantillons précédents dans le chapitre II.

Voici la structure détaillée des 2 échantillons :

Membrane  $\text{Si}_3\text{N}_4$  (100nm) / Ta(3nm) / Cu(20nm) / Ta(3nm) /  $\text{Co}_{85}\text{Gd}_{15}$ (20nm) / Al (3nm)

Membrane  $\text{Si}_3\text{N}_4$  (100nm) / Ta(3nm) / Cu(20nm) / Ta(3nm) /  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ (20nm) / Al (3nm)

Pour réaliser des expériences de transmission des rayons X nous avons déposé les échantillons sur des membranes de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  de 100 nm d'épaisseur qui n'absorbe pas les rayons X. Pour avoir une meilleure transmission nous avons diminué le nombre de répétitions du buffer. Nous avons également diminué l'épaisseur du capping à 3 nm afin de pouvoir mesurer un signal en TEY sans réaliser de BI.

#### III.1.3.2. Mesures TEY et XAS : cycles d'hystérésis et XMCD(T)

Le graphique a) de la Figure III.12 montre deux cycles d'hystérésis mesurés au seuil  $\text{Co } L_3$  à  $T=300$  K. Les deux cycles sont carrés et leurs champs coercitifs sont faibles, inférieurs à 50 Oe. Comme nous mesurons l'intensité de rayons X transmis, le cycle d'hystérésis, tracé en noir, qui correspond à l'échantillon  $\text{Co}_{85}\text{Gd}_{15}$  indique que l'aimantation de celui-ci est pilotée par le sous

réseau de Co alors que celle de l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  est pilotée par le sous réseau de Gd. Nous vérifions, que l'intensité des rayons X transmise au seuil du Co  $L_3$  est plus faible pour l'échantillon possédant plus de Co (courbe noir) par rapport à celle de l'échantillon possédant moins de Co (courbe rouge). Les graphiques b) et c) représentent respectivement un ensemble de mesures obtenus en TEY et en XAS aux seuils Gd  $M_{4,5}$  de l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  à 300 K. Le champ magnétique extérieur nous permet de saturer l'aimantation des échantillons suivant une des directions dans le plan. Nous observons une grande similitude entre la forme du signal XMCD du graphique b) et c). Cela signifie que le remplissage des niveaux électroniques de la bande 4f est similaire à la surface et dans le volume. Pour extraire une valeur numérique du signal XMCD obtenu en transmission (graphique c), nous devons extraire l'intensité absorbée à partir de l'intensité transmise.

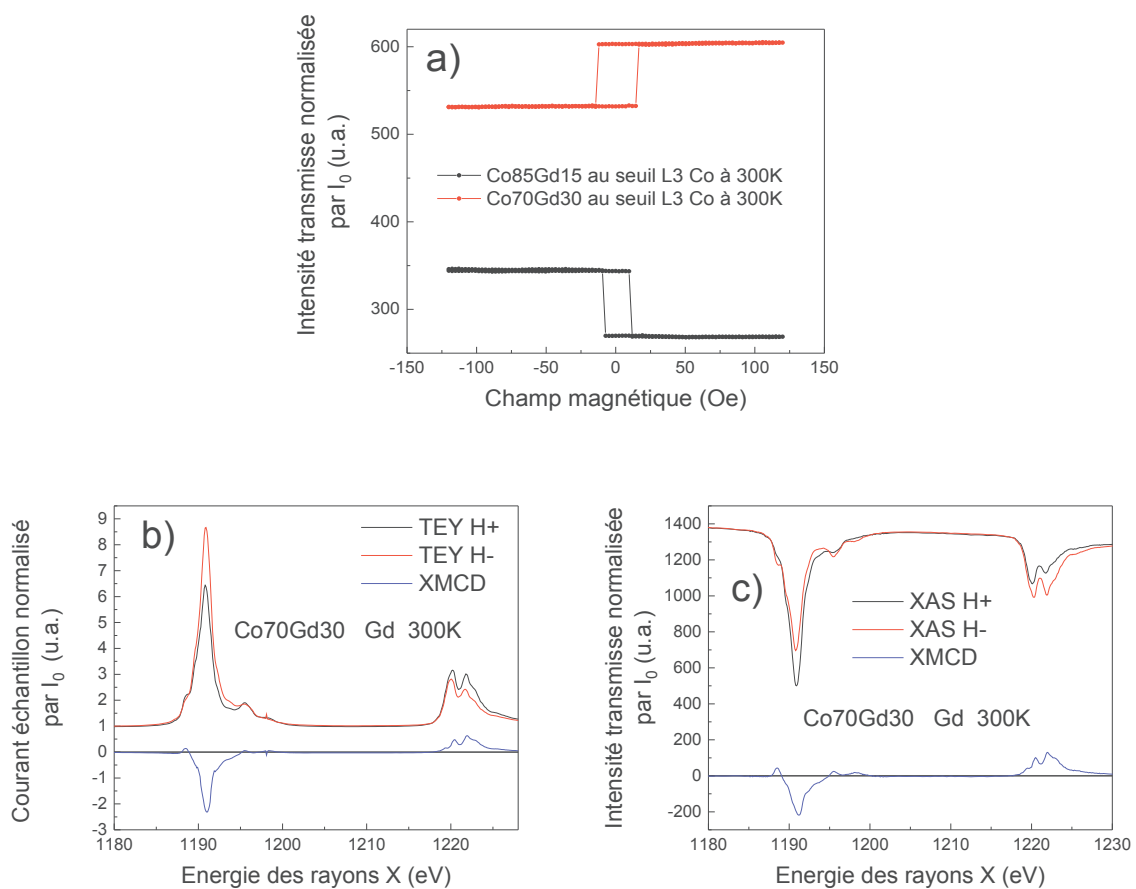


Figure III.12 : a) Cycles d'hystérésis des échantillons  $\text{Co}_{85}\text{Gd}_{15}$  et  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  à 300 K au seuil  $L_3$  Co. b) Exemple de mesures TEY aux seuils  $M_5$  et  $M_4$  du Gd. c) Exemple de mesures XAS aux seuils  $M_5$  et  $M_4$  du Gd.

Nous avons reporté les valeurs XMCD obtenues par TEY (de la surface) et celles obtenues par XAS en transmission (volume) au seuil Gd  $M_5$  pour les deux échantillons en fonction de la température (80 K, 150 K, 220 K et 300 K) comme le montre la Figure III.13.

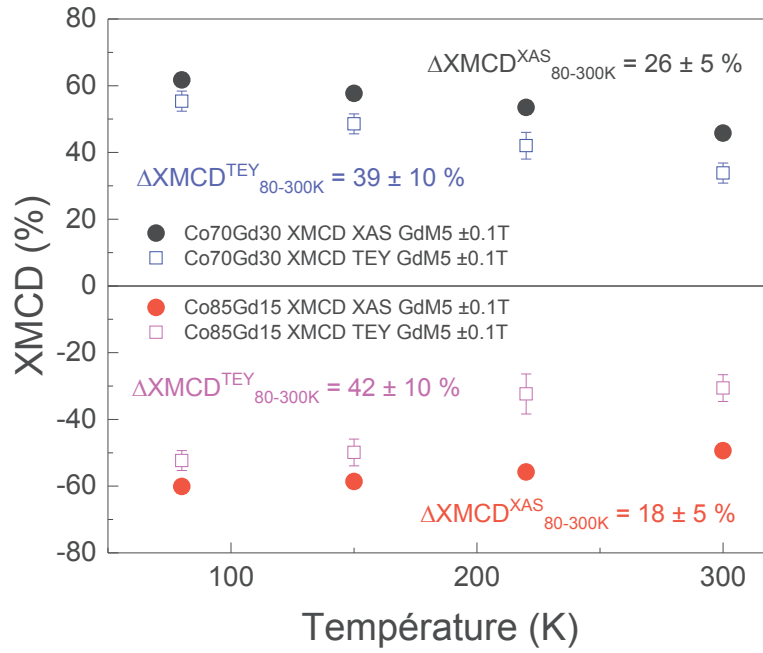


Figure III.13 : Signal XMCD obtenu par XAS (ronds pleins) et par TEY (carrés creux) au seuil M<sub>5</sub> du Gd en fonction de la température.

Nous ne pouvons pas comparer directement les valeurs numériques XMCD obtenues par XAS en transmission et par TEY. En effet pour les mesures TEY nous devons prendre en compte le facteur de correction lié à l'effet de saturation défini ainsi dans l'article de Nakajima et al. de 1999 [145] :

$$f(\theta, \lambda_e, \lambda_x) = \frac{1}{1 + \lambda_e/\lambda_x \cos \theta} \quad (\text{III. 1})$$

Cependant nous pouvons comparer l'évolution du signal XMCD entre 80 K et 300 K d'une mesure XAS et TEY car le facteur de correction ne dépend pas de la température. Intéressons-nous donc à la variation du signal XMCD entre 80 K et 300 K défini ainsi pour les mesures XAS et TEY :

$$\Delta XMCD_{80-300K} = \frac{XMCD_{80K} - XMCD_{300K}}{XMCD_{300K}} \quad (\text{III. 2})$$

Pour l'échantillon Co<sub>70</sub>Gd<sub>30</sub> la variation du signal XMCD entre 80 et 300 K est de 26 ± 5 % pour les mesures XAS et de 39 ± 10 % pour les mesures TEY. Pour l'échantillon Co<sub>85</sub>Gd<sub>15</sub> la variation du signal XMCD entre 80 et 300 K est de 18 ± 5 % pour les mesures XAS et de 41 ± 10 % pour



les mesures TEY. Tout d'abord nous pouvons constater que la variation du signal XMCD du volume de l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  dont la  $T_C$  est estimée à 550 K est plus grande que celle de l'échantillon  $\text{Co}_{85}\text{Gd}_{15}$  dont la  $T_C$  est estimée à 900 K. Nous observons aussi que pour les deux échantillons la variation du signal XMCD entre 80 K et 300 K est plus grande pour la surface que pour le volume. En conclusion, cela signifie que les propriétés magnétiques statiques de la surface et du volume ne sont pas les mêmes.

### III.1.3.3. Estimation de la variation du XMCD de la monocouche de Gd

L'étude précédente a montré qu'une monocouche de Gd ségrége en surface de l'alliage CoGd et reste sous l'Al. Lorsque nous mesurons le signal XMCD en TEY nous mesurons la monocouche de Gd ségrégée ainsi que la partie supérieure de l'alliage CoGd. La variation du signal XMCD a donc deux origines, la monocouche de Gd et l'alliage CoGd. Nous pouvons écrire l'équation suivante :

$$\Delta XMCD_{80-300K}^{TEY} = \alpha \Delta XMCD_{80-300K}^{monocouche\ Gd\ pur} + \beta \Delta XMCD_{80-300K}^{CoGd} \quad (\text{III. 3})$$

En considérant que  $\Delta XMCD_{80-300K}^{CoGd} = \Delta XMCD_{80-300K}^{XAS}$  et en calculant, via un modèle simple de décroissance exponentielle, les facteurs  $\alpha$  et  $\beta$ , nous pouvons en déduire  $\Delta XMCD_{80-300K}^{monocouche\ Gd\ pur}$  et comparer cette valeur pour les deux échantillons. Considérons que les échantillons sont constitués d'une monocouche de Gd de 5 Å [151] d'épaisseur au-dessus d'une couche de  $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$  de 195 Å d'épaisseur. Ainsi l'épaisseur totale est de 200 Å soit 20 nm, l'épaisseur du film magnétique. Le libre parcours moyen des électrons possédant une énergie cinétique de 1192 eV, ce qui correspond au seuil Gd  $M_5$ , est de 7,2 Å [153]. D'après la courbe universelle du libre parcours moyen en fonction de l'énergie cinétique des électrons nous pouvons considérer que celui-ci est de 15 Å pour des électrons à 1192 eV dans le Co. En considérant que le libre parcours moyen des électrons évolue linéairement entre 7,2 Å pour du Gd pur et 15 Å pour du Co pur, nous pouvons écrire :

$$\lambda_{\epsilon\ 1192\ eV}^{Co_{100-x}Gd_x} = [Gd] * \lambda_{\epsilon\ 1192\ eV}^{Gd} + [Co] * \lambda_{\epsilon\ 1192\ eV}^{Co} \quad (\text{III. 4})$$

$$\text{d'où : } \lambda_{\epsilon\ 1192\ eV}^{Co_{70}Gd_{30}} = 0,3 * 7,2 + 0,7 * 15 = 12,7 \text{ \AA}$$

$$\text{et } \lambda_{\epsilon\ 1192\ eV}^{Co_{85}Gd_{15}} = 0,15 * 7,2 + 0,85 * 15 = 13,8 \text{ \AA}$$

L'intensité du courant mesuré provenant de la monocouche de Gd pur est proportionnelle à :

$$\sum_{d=0}^{5 \text{ \AA}} e^{-d/\lambda_{\epsilon}^{Gd} 1192 \text{ eV}} = a \quad (\text{III. 5})$$

L'intensité du courant mesuré provenant de l'alliage CoGd est proportionnelle à :

$$e^{-5/\lambda_{\epsilon}^{Gd} 1192 \text{ eV}} * [Gd] * \sum_{d=5}^{200 \text{ \AA}} e^{-d/\lambda_{\epsilon}^{CoGd} 1192 \text{ eV}} = b \quad (\text{III. 6})$$

avec :  $\alpha = \frac{a}{a+b}$  et  $\beta = \frac{b}{a+b}$

En réalisant les calculs nous trouvons pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  que  $\alpha = 0.74$  et  $\beta = 0.26$ . Cela signifie que 74 % du signal mesuré en TEY provient de la monocouche de Gd ségréguée et que 26 % du signal provient de l'alliage CoGd en-dessous. Pour l'échantillon  $\text{Co}_{85}\text{Gd}_{15}$  nous trouvons que  $\alpha = 0.84$  et  $\beta = 0.16$ , c'est à dire que 84 % du signal mesuré en TEY provient de la monocouche de Gd ségréguée et que 16 % du signal provient de l'alliage CoGd en-dessous. Nous pouvons donc maintenant calculer  $\Delta XMCD_{80-300K}^{monocouche \text{ Gd pur}}$  avec :

$$\Delta XMCD_{80-300K}^{monocouche \text{ Gd pur}} = \frac{\Delta XMCD_{80-300K}^{TEY} - \beta \Delta XMCD_{80-300K}^{CoGd}}{\alpha} \quad (\text{III. 7})$$

Pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  :  $\Delta XMCD_{80-300K}^{monocouche \text{ Gd pur}} = \frac{39\% - 0,26 * 26\%}{0,74} = 44 \pm 10 \%$

Pour l'échantillon  $\text{Co}_{85}\text{Gd}_{15}$  :  $\Delta XMCD_{80-300K}^{monocouche \text{ Gd pur}} = \frac{42\% - 0,16 * 18\%}{0,84} = 47 \pm 10 \%$

Avec un modèle physique relativement simple et à partir des données expérimentales nous avons calculé la variation du signal XMCD entre 80 K et 300 K de la monocouche de Gd pur. Nous constatons que cette variation est la même pour les deux échantillons, aux barres d'erreurs près. De plus, ces résultats montrent que la monocouche de Gd pur a une  $T_c$  supérieure à 297 K, celle du Gd pur volumique. Cette différence peut s'expliquer par le couplage magnétique entre la monocouche de Gd pur et l'alliage CoGd en-dessous. Comme le modèle physique repose sur certaines hypothèses et que les données expérimentales possèdent des barres d'erreurs assez grandes nous n'irons pas plus loin dans les interprétations.

## III.2. Mesures statiques sur la ligne TEMPO

### III.2.1. Cartographie de la surface après BI

En arrivant au synchrotron nous devons tout d'abord monter les échantillons souhaités sur les portes-échantillons. Nous collons les échantillons à l'aide de laque d'argent afin d'avoir une bonne conduction thermique entre l'échantillon et le porte-échantillon. Les échantillons sont, en plus, fixés par une plaque de Ta qui pousse l'échantillon dans le fond du porte échantillon. La surface accessible de l'échantillon est d'environ 8 mm sur 3,5 mm. Nous réalisons ensuite des BI pour diminuer l'épaisseur de la couche de capping. Afin d'avoir un BI le plus homogène possible sur toute la surface de l'échantillon nous dé-focalisons le canon à ion et nous tournons l'échantillon lorsque la moitié du temps de BI est réalisé. Lorsque le BI est effectué nous réalisons une cartographie de l'échantillon en mesurant le signal MCDAD au seuil  $Gd M_5$ . La Figure III.14 est un exemple de cartographie. Nous observons tout de même des variations dans le signal MCDAD avec des valeurs d'environ 20% pour  $Z=252$  mm et d'environ 24 % pour  $Z=249$  mm. Nous observons en plus des points où le signal MCDAD est très grand, environ 35 %. Des poussières sur la surface de l'échantillon peuvent expliquer la présence de ces points. Pour réaliser les mesures dynamiques nous évitons les points où le signal MCDAD est très grand. De plus, lorsque nous devons changer la zone sondée car celle-ci a changé chimiquement nous conservons la même valeur de  $Z$  et changeons la valeur de  $X$  afin de retrouver des conditions initiales similaires à la zone sondée précédemment.

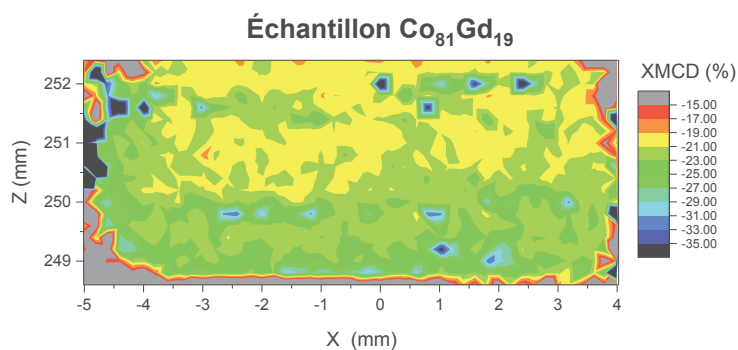


Figure III.14 : Cartographie du signal MCDAD de la surface de l'échantillon  $Co_{81}Gd_{19}$  à 300 K ayant subi un B.I.

### III.2.2. Mesures XPS : caractérisations chimiques et magnétiques

Nous avons réalisé une étude de la surface de l'échantillon, via des mesures XPS, en fonction de l'énergie des photoélectrons pour différents temps de BI. Ces résultats sont présentés sur la Figure III.15 graphiques a), b) et c). Le graphique a) est une vue d'ensemble, allant de -5 à 105 eV d'énergie de liaison. Les deux premiers pics correspondent respectivement à l'alumine ( $Al_2O_3$ ) et à l'aluminium (Al) métallique. Ceux-ci constituent le capping. Le troisième pic correspond au Co.

Le quatrième pic correspond au Ta. Ces atomes de Ta proviennent de la plaque de Ta qui fixe l'échantillon. En effet, le BI étant dé-focalisé, nous bombardons également la plaque de Ta de laquelle des atomes de Ta se déposent sur la surface de l'échantillon. L'intensité du pic du Ta est grande. Cela est dû au fait que ces atomes sont à la surface et que leur section efficace est grande. Le cinquième pic correspond au Gd. Le graphique b) est une mesure plus précise du pic d'Al, d'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et du Co. Comme dans l'étude AES vu dans la partie précédente, nous retirons d'abord l'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> en surface de l'échantillon et l'intensité du pic de l'Al métallique augmente. Une fois qu'il n'y a quasiment plus d'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, c'est l'intensité du pic d'Al qui diminue. Le graphique c) est une mesure plus précise du pic de Gd. La forme du pic du Gd lorsque le BI=30 min (courbe noire) semble être composée de 2 gaussiennes : une principale pour le Gd métallique autour de 8 eV d'énergie de liaison et une autre pour le Gd oxydé autour de 10-11 eV d'énergie de liaison. Cette deuxième composante liée au Gd oxydé n'est plus présente lorsque le BI=40 min. Le Gd oxydé a donc été retiré en même temps que l'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Cela signifie que les atomes de Gd oxydés sont dans la couche d'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Certains atomes de Gd se sont donc ségrégués au-dessus de l'Al lors de son dépôt. Nous pensons que cette quantité d'atomes est relativement faible car malgré le fait que ceux-ci soient en surface de l'échantillon et que donc leur signal est moins atténué, l'intensité du pic des atomes de Gd métallique est plus grande. Ce résultat semble en contradiction avec les conclusions obtenues dans l'étude AES de la partie III.1.2.1 dans laquelle nous montrons que le Gd ne ségrége pas au-dessus de l'Al. Deux possibilités sont envisagées pour expliquer cette contradiction. La première est que le nombre d'atomes de Gd ségrégué au-dessous de l'Al est relié à la concentration de Gd dans l'alliage. Pour l'étude AES nous avons mesuré un échantillon Co<sub>80</sub>Gd<sub>20</sub> alors que pour les mesures en Figure III.15 l'échantillon considéré est Co<sub>30</sub>Gd<sub>70</sub>. La deuxième possibilité est que nous n'ayons pas la sensibilité nécessaire pour mesurer ces atomes ségrégués en surface avec l'AES. De 40 min à 50 min de BI le pic du Gd conserve sa forme et son intensité augmente. Le graphique d) de la Figure III.15 représente le nombre de photoélectrons Auger à résonance Gd 4f par seconde pour un champ appliqué H+ et H- ainsi que le signal MCDAD correspondant en fonction du temps de BI. Plus le temps de BI est grand, plus le nombre de coups est grand mais plus le signal MCDAD est faible. Nous devons trouver le bon compromis entre le nombre de photoélectrons et la valeur du signal MCDAD, tout cela en ayant toujours de l'Al métallique pour éviter l'oxydation du Gd. De manière générale nous souhaitons avoir un signal MCDAD d'au moins environ 20 % à 300 K et un nombre de coups moyen entre H+ et H- d'au moins 2000 coups/s.

### Échantillon $\text{Co}_{30}\text{Gd}_{70}$

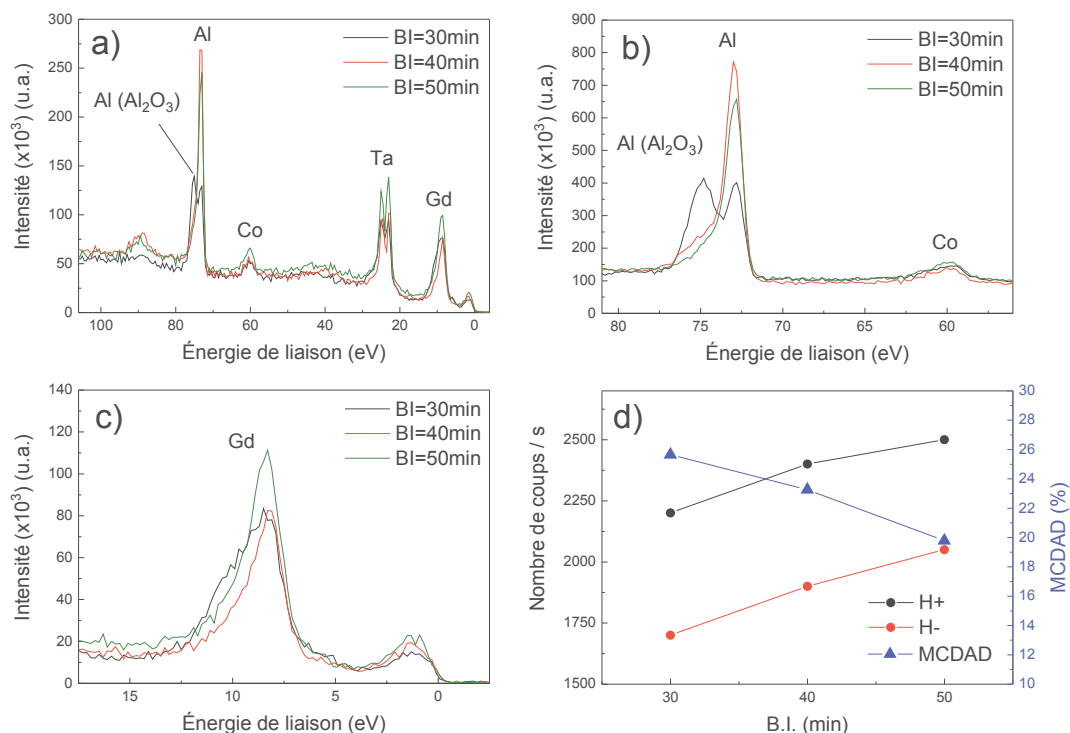


Figure III.15 : Graphiques a), b) et c) : Intensité XPS en fonction de l'énergie des photoélectrons pour différents temps de BI d'un échantillon  $\text{Co}_{30}\text{Gd}_{70}$ . L'énergie d'excitation des rayons X est de 700 eV. Le graphique d) est le nombre de photoélectrons Auger 4f du Gd à résonance en fonction du temps de BI lorsque l'énergie d'excitation des rayons X correspond au seuil  $M_5$  du Gd.

### III.2.3. Influence du laser sur l'échantillon

#### III.2.3.1. Stabilité chimique de la surface au cours et après l'expérience pompe-sonde

Lors des mesures dynamiques l'échantillon est soumis à l'excitation laser (la pompe) pendant plusieurs heures. En intégrant tout le signal enregistré au cours d'une mesure résolue temporellement nous pouvons suivre l'évolution de l'intensité pour les deux directions du champ magnétique et donc suivre le signal MCDAD. La Figure III.16 est un exemple au cours d'une mesure effectuée en mode hybride de remplissage du synchrotron pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ . La diminution de l'intensité de la courbe rouge et noire au cours du temps est liée, comme nous l'avons vu précédemment, à l'oxydation de l'Al. Les oscillations sont liées à la variation de l'intensité du courant dans l'anneau de stockage. La valeur du signal MCDAD est relativement constante pendant l'expérience pompe-sonde. Nous observons tout de même une petite diminution du signal XMCD que nous pouvons attribuer à une légère oxydation de la monocouche de Gd ségrégué.

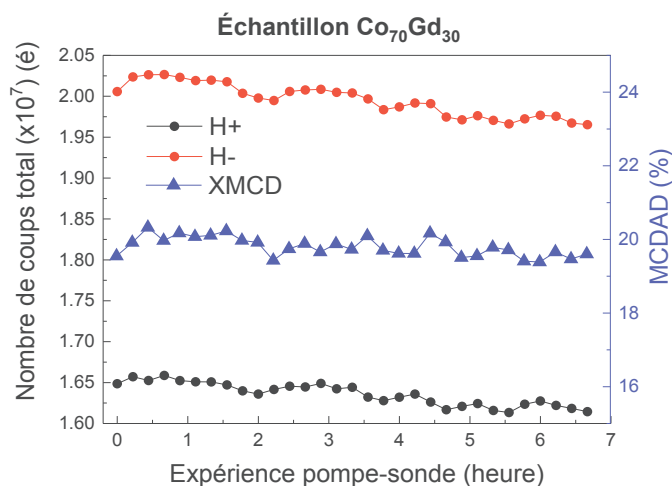


Figure III.16 : Intensité XPS totale, pour un champ magnétique appliqué positif et négatif ainsi que le signal MCDAD, en fonction du nombre d'heures de l'expérience pompe-sonde pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  avec une fluence de  $2,1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  et une température d'équilibre de 150 K.

Nous avons réalisé des mesures XPS de l'échantillon après 14 heures d'irradiation du laser (Fluence =  $2,1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ ) et après 14 heures sans laser (sur une région non pompée de l'échantillon) ceci afin de connaître l'influence du laser sur la surface de l'échantillon. Ces mesures sont présentées dans la Figure III.17. Intéressons-nous au pic de l'Al et de l' $\text{Al}_2\text{O}_3$  du graphique a). Après un BI total de 50 min (courbe noire) il n'y a quasiment plus d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  sur l'échantillon. Après 14 heures d'irradiation laser (courbe rouge), nous observons une oxydation de l'Al qui se traduit par une diminution du pic d'Al et une augmentation du pic d' $\text{Al}_2\text{O}_3$ . En mesurant sur une région non pompée c'est à dire après 14 heures sans laser (courbe verte) nous observons l'oxydation de l'Al pour un vide de  $2.10^{-10}$  mbar à 80 K. En effet le pic d'Al a un peu diminué et celui de l' $\text{Al}_2\text{O}_3$  a un peu augmenté. Si nous comparons la courbe rouge (avec laser) et la courbe verte (sans laser) nous constatons que l'effet du laser sur la surface se traduit par une augmentation de la vitesse d'oxydation de l'Al. Intéressons-nous maintenant au pic de Gd du graphique b). Nous observons qu'après 14 heures avec ou sans laser l'intensité du pic du Gd diminue. L'oxydation de l'Al entraîne un gonflement de la couche de capping qui limite le nombre de photoélectrons sortant de l'échantillon et donc l'intensité mesurée. La courbe rouge (avec laser) est plus large que les 2 autres ce qui indique une légère oxydation du Gd. Malgré la présence d'Al métallique qui nous indique que l'oxygène n'atteint pas le Gd, il est possible qu'à certains endroits de l'échantillon la rugosité soit telle qu'il n'y ait plus d'Al métallique et que donc le Gd puisse s'oxyder.

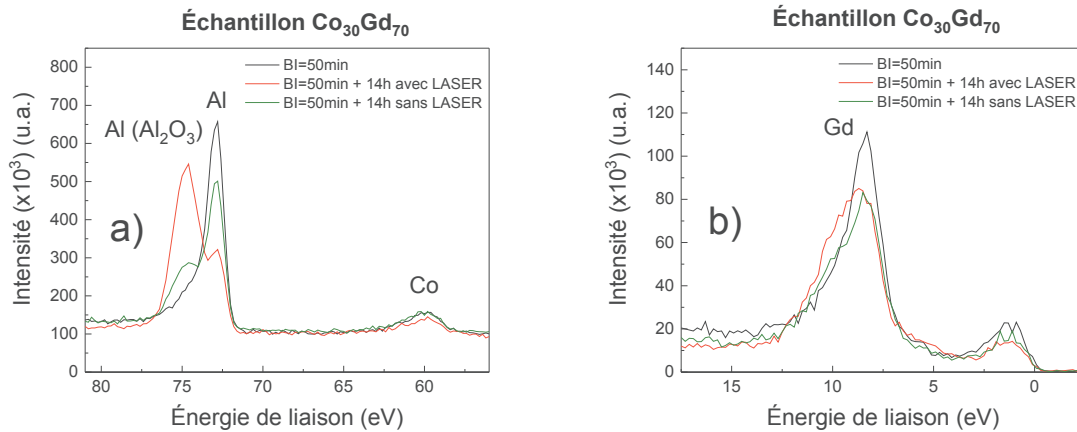


Figure III.17 : a) et b) Intensité XPS en fonction de l'énergie des photoélectrons d'un échantillon  $\text{Co}_{30}\text{Gd}_{70}$  dans 3 conditions différentes : juste après le BI, après le BI + 14 heures d'irradiation laser (Fluence = 2.1  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ ) et après le BI + 14 heures sans laser. L'énergie d'excitation des rayons X est de 700 eV.

### III.2.3.2. Détérioration de la surface causée par une fluence laser trop forte

Sur un échantillon convenablement décappé, comme nous l'avons vu précédemment, nous avons constaté que lorsque la fluence dépasse une certaine valeur, environ 3  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ , la surface de l'échantillon se détériore en très peu de temps, après moins d'une minute d'exposition au laser. Nous avons donc, à l'aide des mesures XPS, mesuré l'échantillon à un endroit non exposé au laser et aussi à un endroit exposé au laser. Le graphique a) de la Figure III.18 représente la valeur du signal XMCD en fonction de la position sondée sur l'échantillon dans la direction Z. La position du laser est centrée sur la valeur de  $Z=0$  mm. Nous constatons que le signal XMCD à la position du laser a nettement diminué. Nous passons d'environ 25 % vers 3-4 %. Nous remarquons que la largeur à mi-hauteur est d'environ 300  $\mu\text{m}$  ce qui correspond assez bien avec la largeur à mi-hauteur du laser de pompe dans la direction Z (voir chapitre II). Le graphique b) représente deux mesures XPS aux positions repérées par les cercles bleu et rouge du graphique a), c'est à dire avec et sans le laser. En comparant les courbes bleue et rouge nous pouvons en déduire l'influence du laser sur la surface. Nous constatons que les intensités des pics d'Al et d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  ont diminué. Les pics du Co et du Gd ont fortement augmenté. Le laser a donc retiré la quasi-totalité du capping restant. Nous ne pouvons donc pas dépasser une fluence d'environ 3  $\text{mJ}/\text{cm}^2$  si nous souhaitons conserver une partie du capping pour éviter l'oxydation de l'échantillon.

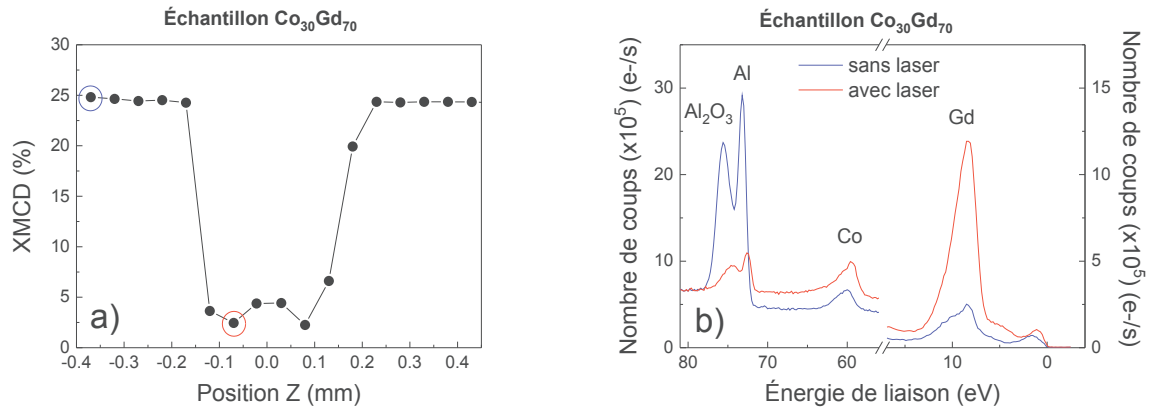


Figure III.18 : a) Signal MCDAD au seuil M<sub>5</sub> du Gd à 80 K pour l'échantillon Co<sub>30</sub>Gd<sub>70</sub> en fonction de la position sur l'échantillon, dans la direction Z. La position 0 correspond au centre du faisceau laser. b) Intensité XPS en fonction de l'énergie de liaison sans laser (à la position repérée par un cercle bleu sur le graphique a)) et avec laser (à la position repérée par un cercle rouge sur le graphique a))

### III.2.3.3. Estimation de l'augmentation de la température de l'échantillon via le laser

En mesurant la variation du signal MCDAD statique des spins 4f du Gd en fonction de la fluence laser il est possible d'estimer le réchauffement de l'échantillon (D.C. Heating) lié au laser de pompe. Nous avons donc mesuré la variation du signal MCDAD pour 3 fluences différentes de l'échantillon Co<sub>30</sub>Gd<sub>70</sub> pour une température du cryostat de 80 K. Pour une fluence de 1,7 mJ/cm<sup>2</sup>, 1,9 mJ/cm<sup>2</sup> et 2,1 mJ/cm<sup>2</sup> nous avons mesuré une variation du signal MCDAD de -34 %, -55 % et -70 % respectivement par rapport à la valeur du MCDAD sans laser à 80 K. Afin de relier la variation du signal MCDAD à une variation de température nous avons dû poser l'hypothèse selon laquelle la variation du signal MCDAD statique des spins 4f du Gd est proportionnelle à la variation de l'aimantation totale du film magnétique mesuré en VSM-SQUID. Le graphique a) de la Figure III.19 représente la mesure VSM-SQUID du moment magnétique en fonction de la température de l'échantillon Co<sub>30</sub>Gd<sub>70</sub>. Cette mesure nous permet donc de relier une variation du signal MCDAD à une variation de température. Le graphique b) représente l'augmentation de la température en fonction de la fluence laser. Pour une fluence de 2 mJ/cm<sup>2</sup> et 3 mJ/cm<sup>2</sup> l'augmentation de température est, respectivement, d'environ 60 K et 100 K.



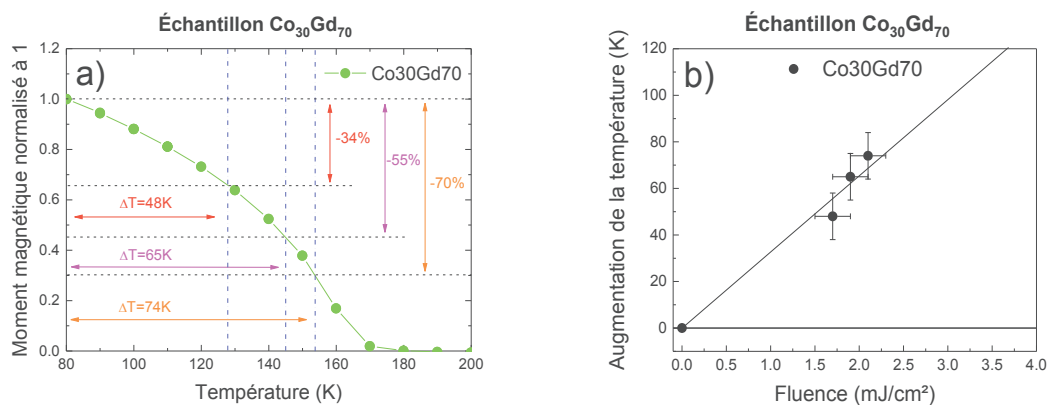


Figure III.19 : a) Évolution du moment magnétique en fonction de la température. b) Augmentation de la température en fonction de la fluence laser.

Afin d'avoir une estimation plus précise de l'augmentation de la température liée au laser nous aurions pu mesurer d'abord le signal MCDAD des spins 4f du Gd en fonction de la température réglée sur le cryostat sans laser, puis mesurer le signal MCDAD avec laser pour beaucoup de fluences différentes. Malheureusement le temps de faisceau limité ne nous a pas permis de réaliser une telle étude. Malgré les incertitudes des mesures et les hypothèses considérées, cela nous permet d'avoir une idée de l'augmentation continue de la température liée au laser de pompe.

### III.3. Mesures dynamiques sur la ligne TEMPO

#### III.3.1. Mesure de la dynamique ultrarapide : mode hybride

Dans le mode de remplissage Hybride de l'anneau de stockage du synchrotron SOLEIL il y a un paquet d'électrons isolé dont la longueur temporelle est d'environ 60 ps. L'intensité de courant du paquet isolé est de 5 mA pour un courant total de 430 mA. L'intensité du courant et la longueur temporelle du paquet isolé vont définir le flux de photons de la sonde et la résolution temporelle de l'expérience. Nous avons donc effectué une mesure pompe-sonde sur l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  avec une fluence laser de  $2,4 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ . La température du cryostat est de 80 K. Nous estimons que la température d'équilibre (cryostat + réchauffement lié au laser) est d'environ 160 K pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  (voir partie III.2.3.3). La Figure III.20 a) et b) présente l'intensité des électrons Auger primaires mesurée par le détecteur Scienta, à l'énergie de la résonance Gd  $M_5$  ( $E = 1186 \text{ eV}$ ). Le graphique a) correspond à un délai temporel négatif, c'est à dire avant l'excitation laser. Le graphique b) correspond à un délai temporel de  $t = 150 \text{ ps}$  après l'excitation laser. Le contraste observé entre le spectre mesuré pour une direction de l'aimantation (courbe rouge) et son opposé (courbe noir) nous permet d'être sensible et proportionnel au moment magnétique des électrons Gd 4f en utilisant les rayons X polarisés circulairement. Le moment magnétique des électrons 4f du Gd est proportionnel à la différence de l'intégrale du nombre de coups pour H+ et de l'intégrale du nombre de coups pour H-. L'intégrale du nombre de coups total pour H+ et H- est d'environ 86 000 coups en 12 minutes. Cela correspond à environ 120 coups par seconde. Ou encore  $8.10^{-4}$  coups par impulsion laser. Nous observons sur le graphique b), 150 ps après l'impulsion laser, une diminution du moment magnétique des électrons 4f du Gd ce qui correspond à une désaimantation ultrarapide « picoseconde ». Nous effectuons donc ces mesures pour différents délais temporels. Ceci nous permet de tracer une courbe de désaimantation au cours du temps.

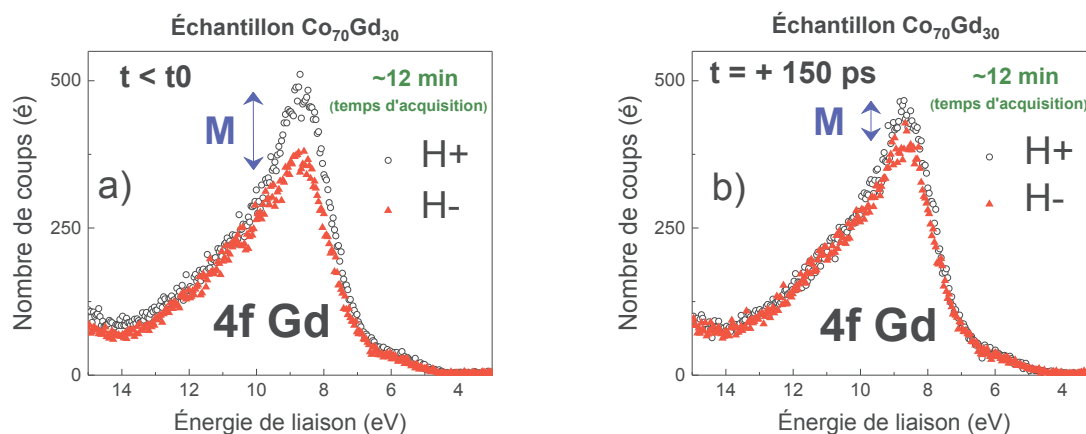


Figure III.20 : Spectres de photoémission (MCDAD) 4f Gd à la résonance ( $E = 1184 \text{ eV}$ ), reportés en fonction de l'énergie de liaison. En a) et b) sont présentés deux délais temporels pompe-sonde : a) pour le délai  $t$  avant l'excitation laser, b)  $t = +150 \text{ ps}$ , après l'excitation laser. L'échantillon mesuré est  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  à  $T_{\text{eq}}=160 \text{ K}$  avec une fluence laser de  $2,4 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ .

La Figure III.21 représente la mesure de dynamique ultrarapide pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ . La durée d'acquisition est de l'ordre de 3 heures et 40 minutes. Cela signifie que nous avons répété la mesure pompe-sonde environ 3,8 milliard de fois pour obtenir cette courbe. Sur la Figure III.21 nous constatons que la surface du film magnétique se désaimante de plus de 50 %. La simulation représentée par la courbe rouge nous permet d'extraire un temps caractéristique de désaimantation qui vaut  $59 \pm 7$  ps. Cela correspond à la résolution temporelle de l'expérience. Ce qui signifie que l'échantillon se désaimante plus rapidement mais que nous sommes limités par la résolution de l'expérience. Le temps caractéristique de la ré-aimantation vaut  $460 \pm 60$  ps. Bien que nous n'ayons pas la résolution temporelle nécessaire à l'extraction du temps caractéristique de désaimantation, cette mesure nous a permis de définir différents paramètres expérimentaux pour les futures mesures en mode de remplissage low-alpha (résolution temporelle de 12 ps). Ces paramètres sont : la fluence nécessaire pour avoir une désaimantation significative, les temps caractéristiques de ré-aimantation et une estimation du temps d'acquisition nécessaire pour avoir une statistique équivalente en mode low-alpha. Cette estimation, qui repose sur le rapport du courant du paquet isolé en mode hybride sur celui en mode low-alpha, prévoit qu'il faut environ 280 heures d'acquisition en mode low-alpha pour une statistique équivalente à la Figure III.21 en considérant le même nombre de points. En sachant que le temps d'expérience est de 6 jours par session et que les réglages initiaux peuvent prendre 2 à 3 jours, il nous reste environ 72 heures de mesure prévisible par échantillon. Le bruit statistique étant inversement proportionnel à la racine carré du temps de mesure, nous pouvons estimer que ce bruit statistique sera environ 2 fois plus grand en mode low-alpha qu'en mode hybride pour un même échantillon.

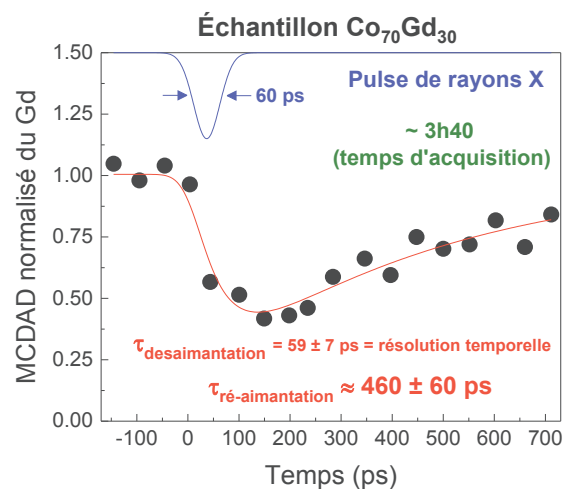


Figure III.21 : tr-MCDAD normalisé des électrons 4f du Gd en fonction du délai temporel entre la pompe et la sonde (ronds noirs) pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  avec une fluence laser de  $2.4 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  et une température d'équilibre de 160 K. Fonction exponentielle décroissante avec rétablissement de l'aimantation (ligne rouge)(voir Annexe C).Schéma de l'impulsion de rayons X de FWHM=60 ps (ligne bleue).

### III.3.2. Mesures des dynamiques ultrarapides en low-alpha.

Dans le mode de remplissage low-alpha de l'anneau de stockage du synchrotron SOLEIL il y a un paquet d'électrons isolé dont la longueur temporelle est d'environ 12 ps. L'intensité de courant du paquet isolé est de 65  $\mu\text{A}$  pour un courant total de 16,5 mA. L'intensité du courant et la longueur temporelle du paquet isolé vont définir le flux de photons utilisé comme sonde, et la résolution temporelle de l'expérience. Nous avons effectué deux mesures pompe-sonde sur les échantillons suivants :  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  avec une fluence laser de 2,1  $\text{mJ}/\text{cm}^2$  ;  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$  avec une fluence laser de 2,8  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ . La température du cryostat choisie est de  $T = 80 \text{ K}$  pour  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et de  $T = 220 \text{ K}$  pour  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ . Leurs températures d'équilibre sont respectivement  $T_{\text{éq}} = 160 \text{ K}$  et  $T_{\text{éq}} = 310 \text{ K}$  et leurs  $T_C$  sont respectivement  $T_C = 550 \text{ K}$  et  $T_C = 900 \text{ K}$ . La différence des deux températures  $T_C - T_{\text{éq}}$  est de 390 K pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et de 590 K pour l'échantillon  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ . Comme dans la partie III.3.1 en mode hybride, la Figure III.22 représente les signaux spectroscopiques mesurés à deux délais temporels. Le graphique a) correspond à un délai temporel négatif, c'est à dire avant l'excitation laser. Le graphique b) correspond à un délai temporel de  $t = +100 \text{ ps}$  après l'excitation laser. L'intégrale du nombre de coups total pour H+ et H- est de 6000 coups pour 5 heures d'acquisition. Cela correspond à 0,34 photoélectrons par seconde, c'est à dire environ  $2,4 \cdot 10^{-6}$  photoélectrons par impulsion laser. Nous sommes à la limite de la faisabilité de l'expérience. Nous effectuons ce type de mesure pour différents délais temporels entre la pompe et la sonde afin d'obtenir une mesure résolue en temps avec une résolution temporelle de 12 ps.

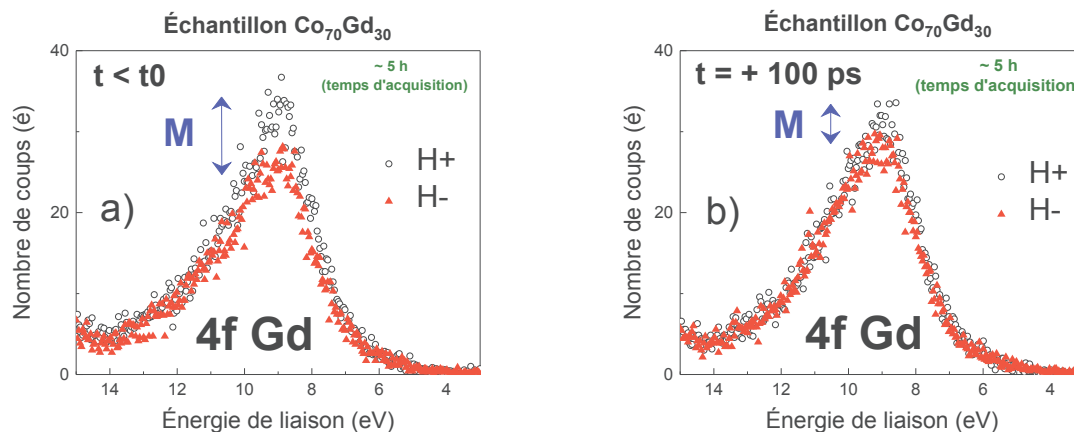


Figure III.22 : Spectres de photoémission (MCDAD) Gd 4f en résonance ( $E = 1184 \text{ eV}$ ) en fonction de l'énergie de liaison pour deux délais temporels différents entre la pompe et la sonde : a) avant l'excitation laser, b) 100 ps après l'excitation laser. L'échantillon analysé est l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  à  $T = 160 \text{ K}$  avec une fluence laser de 2,1  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ .

La Figure III.23 représente les mesures des dynamiques ultrarapides des deux échantillons en mode low-alpha. La durée d'acquisition est de 77 heures pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et de 90 heures pour l'échantillon  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$  dont la concentration en Gd est inférieure au premier. Cela signifie que nous avons répété la mesure pompe-sonde sur chaque échantillon au moins 39 milliard de fois. Le graphique a) concerne l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ . La surface du film magnétique se

désaimante d'environ 50 %. La simulation représentée par la courbe rouge nous permet d'extraire un temps caractéristique de désaimantation qui vaut  $37 \pm 10$  ps. Étant donné que la mesure en mode low-alpha ne nous permet pas de définir un temps caractéristique de ré-aimantation, car il n'y a pas de point correspondant à un temps supérieur à  $t = 190$  ps, nous avons injecté dans l'ajustement celui mesuré précédemment en mode hybride de  $460 \pm 60$  ps, supposant que l'ensemble des paramètres expérimentaux (température et fluence IR) sont identiques pour les deux mesures. Le graphique b) concerne l'alliage  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ . La surface du film magnétique se désaimante d'environ 40 %. Le temps caractéristique de désaimantation correspond à la résolution temporelle de l'expérience, c'est à dire de 12 ps. Le temps caractéristique de rétablissement de l'aimantation vaut  $55 \pm 10$  ps. La Figure III.24 reprend les mesures de la Figure III.23 des deux échantillons et nous permet de mieux comparer les dynamiques de chaque échantillon. Nous constatons que les temps caractéristiques de désaimantation et de ré-aimantation ainsi que l'amplitude de désaimantation sont différents entre les deux alliages  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ .

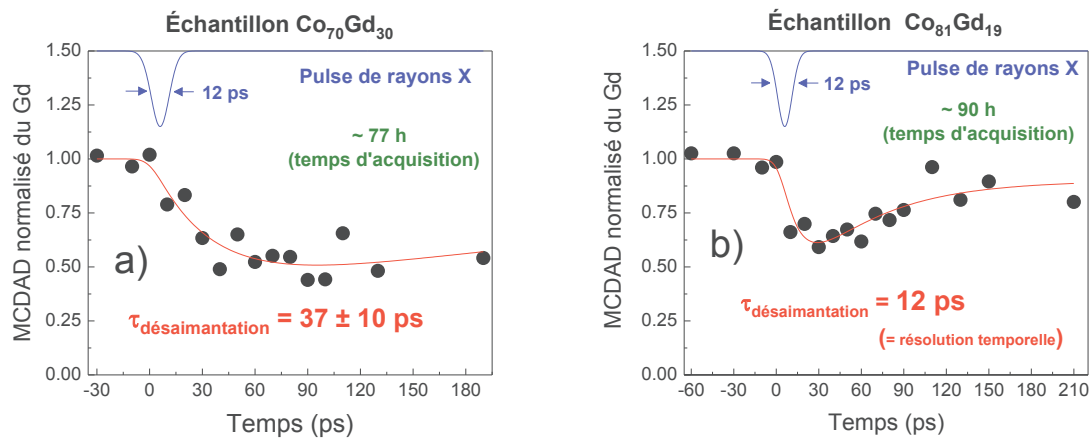


Figure III.23 : tr-MCDAD normalisé des électrons 4f du Gd en fonction du délai temporel entre la pompe et la sonde (ronds noirs). Fonction exponentielle décroissante avec rétablissement de l'aimantation (ligne rouge) (voir Annexe C). Schéma de impulsion de rayons X de FWHM=12 ps (ligne bleue). a) pour l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  avec une fluence laser de  $2,1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  et une température d'équilibre de 160 K. b) pour l'échantillon  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$  et avec une fluence laser de  $2,8 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  et une température d'équilibre de 310 K.

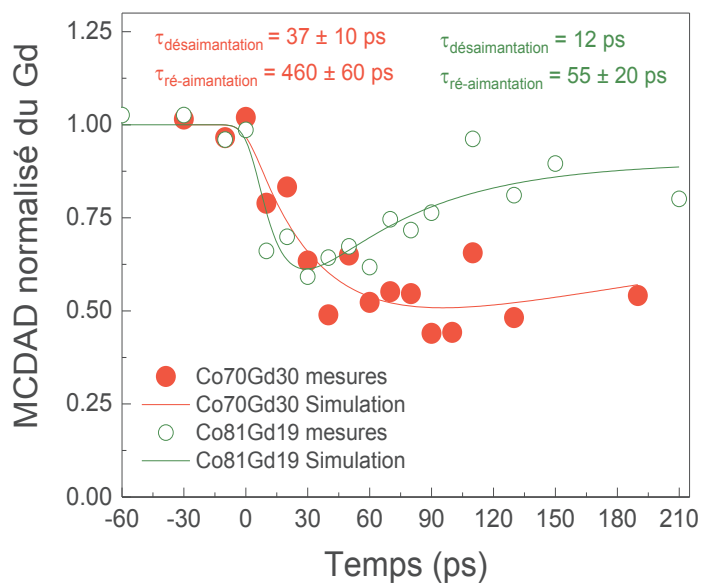


Figure III.24 : tr-MCDAD normalisé des électrons 4f du Gd en fonction du délai temporel entre la pompe et la sonde pour les échantillons  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  (ronds rouges) et  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$  (ronds verts) et leurs ajustements respectifs (ligne rouge et verte) (voir Annexe C).

## III.4. Interprétations, conclusions et ouvertures

### III.4.1. Interprétations et conclusions

La dynamique de la désaimantation des états Gd 4f obtenue pour  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  montre que ces états 4f se désaimantent avec un temps caractéristique de  $37 \pm 10$  ps. Il est à noter que l'ajustement qui nous permet d'extraire ce temps caractéristique est composé seulement d'une exponentielle décroissante (désaimantation) et d'une exponentielle de rétablissement de l'aimantation. Or, les mesures de Wietstruk et al. [43] montrent que le Gd pur se désaimante avec deux temps caractéristiques successifs (court et long), et correspond donc à une dynamique de type II d'après Koopmans et al. [30]. Pour notre mesure, nous ne possédons pas la résolution temporelle pour réaliser un ajustement avec deux exponentielles décroissantes. Il faut donc avoir un regard critique quant à la valeur extraite de notre ajustement. Cependant cette valeur de  $37 \pm 10$  ps pour le Gd 4f de l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  est similaire à celle mesurée par Wietstruk et al. [43] de  $40 \pm 10$  ps pour du Gd pur. Ce dernier auteur explique le deuxième temps caractéristique (temps long) de la désaimantation des électrons Gd 4f de la manière suivante : le moment orbital de la bande électronique 4f est nul alors le couplage direct des spins 4f avec le réseau est nul. Cependant, il est aujourd'hui avéré que les spins 4f et 5d sont fortement couplés via l'interaction d'échange ( $\sim 100$  meV) [92,164] et comme les spins 5d possèdent un moment orbital ils sont couplés au réseau. Ainsi les spins 4f sont couplés indirectement au réseau via les spins 5d. L'ajout d'atomes de Co modifie le nombre d'électrons dans la bande électronique d, le couplage spin-réseau des électrons d et donc aussi le couplage indirect spin-réseau des électrons 4f. D'après le modèle décrit par Wietstruk et al. [43] nous aurions dû voir une diminution du deuxième temps caractéristique (temps long) de la désaimantation pour notre alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  comparativement au Gd pur (40 ps). Or ceci n'a pas été observé à l'intérieur des barres d'erreurs expérimentales. Deux explications peuvent justifier nos résultats. La première est que le changement du couplage indirect spin-réseau des électrons 4f est trop faible pour que nous l'observions ou (et) que la barre d'erreur est trop grande par rapport à l'effet escompté. La deuxième est que l'interprétation proposée par Wietstruk et al. [43] n'est pas exacte. Il faut également savoir que l'ajout de Co ne change pas seulement le couplage spin-réseau mais également de nombreux paramètres microscopiques et macroscopiques tel que la  $T_C$ , l'anisotropie, les couplages d'échange (5d-5d, 4f-4f, 5d-3d), etc. Nous pouvons tout de même conclure que le deuxième temps caractéristique de désaimantation des spins 4f du Gd dans l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  est le même que celui du Gd pur. Celui-ci ne semble pas être affecté par l'ajout de Co.

Les résultats récents présentés par Frietsch et al. [92] montrent, via une mesure de tr-MLDAD, que les électrons 4f du Gd pur se désaimantent avec un seul temps caractéristique de  $14 \pm 3$  ps. Ils expliquent la différence des résultats obtenus par rapport à Wietstruk et al. [43] (40 ps) par la sensibilité à la surface de l'expérience tr-MLDAD. Or notre mesure par tr-MCDAD, qui est elle aussi sensible à la surface, montre que le Gd de l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  se désaimante de la même manière ( $37 \pm 10$  ps) que le Gd 4f du volume dans un film de Gd pur (40 ps). Notre mesure laisse donc penser que l'explication de Frietsch et al. [92], pour expliquer la différence entre ses

mesures et celles de Wietstruk et al. [43], est incorrecte. Une explication possible est que la technique de dichroïsme utilisant la polarisation linéaire (tr-MLDAD) ne soit pas seulement proportionnelle au moment magnétique mais aussi au champ cristallin. L'article de Jal et al. [123] montre que l'épaisseur d'un film magnétique subissant une excitation laser est modifiée de manière anisotrope et en surface dès la première picoseconde en surface. Cela modifie le champ cristallin dans l'état transitoire après l'excitation laser et peut donc avoir un effet prépondérant sur le signal tr-MLDAD. Très récemment, Bobowski et al. [120] ont réalisé des expériences de tr-XRMR sur un monocristal de Gd et ont mesuré, comme dans l'article de Wietstruk et al. [43] et la thèse de Sultan [48], une désaimantation suivant 2 temps caractéristiques. Ces résultats soulignent à nouveau la singularité des résultats trouvés par Frietsch et al. [92].

La mesure de la dynamique de désaimantation des électrons 4f du Gd dans un second alliage  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$  montre que : (1) le temps caractéristique de ré-aimantation est beaucoup plus court que celui de l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  ; (2) nous n'observons plus de temps caractéristique de désaimantation long de l'ordre de 40 ps ; (3) la résolution temporelle de l'expérience ( $\sim 12$  ps) nous limite dans la détermination du temps caractéristique de désaimantation. Nous pouvons nous appuyer sur l'article de López-Flores et al. [71] dans lequel les auteurs mesurent la dynamique ultrarapide de désaimantation des électrons 4f du Gd dans un alliage  $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ , très proche en composition de l'échantillon que nous avons mesuré. Ils mesurent un seul temps caractéristique de désaimantation rapide de  $480 \pm 40$  fs. Notre mesure ainsi que celle de López-Flores et al. [71] montrent donc que les électrons Gd 4f dans les alliages  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$  et  $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$  correspondent à une dynamique de type I selon Koopmans [30]. En augmentant de 10 % la concentration du Co dans l'alliage CoGd (passant de l'échantillon  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  à l'échantillon  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ ) nous avons montré qu'il est possible de modifier le régime de la dynamique ultrarapide de la désaimantation et en provoquant une transition d'une dynamique de type II vers type I.

Le modèle microscopique M3TM de Koopmans et al. [30] propose que la désaimantation est de type II lorsque le facteur R (proportionnel à  $T_C^2 / \mu_{at}$ ) est faible et que la désaimantation est de type I lorsque R est grand. En considérant  $\mu_{at}$  identique pour les deux échantillons (le moment magnétique atomique indépendant des fluctuations thermiques) nous constatons que :

$$R(\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}) < R(\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19})$$

car

$$T_C(\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}) = 550 \text{ K} < T_C(\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}) = 900 \text{ K}.$$

Nos mesures montrent que :

$$\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30} \rightarrow \text{Type II} \quad \text{et} \quad \text{Co}_{81}\text{Gd}_{19} \rightarrow \text{Type I}$$

Les prédictions du modèle m3TM sont donc en accord avec les deux type de dynamique (II et I) observée en comparant  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ .

Pour résumer ce projet, nous avons montré qu'il est possible de mesurer la dynamique de désaimantation via une technique de tr-MCDAD en utilisant le mode de remplissage low-alpha. Ces mesures montrent : (1) que le deuxième temps caractéristique de désaimantation des



électrons Gd 4f de l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et le même que celui du Gd 4f pur ; (2) que la surface d'un film magnétique et son volume ont la même dynamique de désaimantation ; (3) que les dynamiques de désaimantation mesurées pour les 2 alliages CoGd peuvent être décrites par des dynamiques de type I et II correspondant aux 2 températures de Curie ( $T_C$ ) des alliages. Nos résultats sont donc en accord avec le modèle m3TM de B. Koopmans [30] considérant un mécanisme de spin-flip pour expliquer la désaimantation aux temps court et long.

### III.4.2. Ouvertures : suite du projet et développement du slicing à SOLEIL

Nous souhaitons poursuivre et approfondir ce projet en réalisant des expériences en transmission des rayons X avec une meilleure résolution temporelle avec la chambre Femtoslicing du synchrotron BESSY II à Berlin. Le but est de mesurer précisément les deux temps caractéristiques de désaimantation (le temps court sub-picoseconde et le temps long de plusieurs picosecondes) de l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  ainsi que le temps caractéristique de désaimantation (court) de l'alliage  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ . En d'autres termes nous souhaitons mieux caractériser cette transition type II - type I dans les alliages CoGd. Nous souhaitons également connaître l'influence de l'ajout de Co sur le premier temps caractéristique de désaimantation du Gd dans l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ . Du temps de faisceau nous a été alloué en janvier 2018.

Le synchrotron SOLEIL et plus particulièrement la ligne de lumière CRISTAL et TEMPO sont en train de développer la technique du slicing. Dans un futur proche nous envisageons de réaliser des expériences en transmission des rayons X sur la ligne TEMPO avec une résolution temporelle d'environ 200 à 250 fs (voir Annexe F).





# IV. Rôle de la température de compensation dans la dynamique de désaimantation ultrarapide

Le but de mon travail dans ce chapitre est d'étudier l'influence, si elle existe, de la température de compensation ( $T_{\text{comp}}$ ) sur la désaimantation ultrarapide d'un alliage MT-TR en mesurant séparément la désaimantation des MT et des TR lorsque la température de l'alliage est supérieure ou inférieure à  $T_{\text{comp}}$ . Certains alliages MT-TR ferrimagnétiques possèdent une  $T_{\text{comp}}$ . Celle-ci correspond à la température à laquelle les aimantations des deux sous réseaux (MT et TR) se compensent, induisant une aimantation totale nulle.

Plusieurs études s'intéressent à la désaimantation ultrarapide d'alliages MT-TR [9,10,35,51,54,70,71,80,127] et plus particulièrement au retournement tout optique de l'aimantation dans des alliages FeCoGd excités par des impulsions laser femtosecondes (AOS) [9,10,35,51,54,70]. Bien que la  $T_{\text{comp}}$  soit une propriété macroscopique, certains de ces articles suggèrent qu'elle influence la désaimantation ultrarapide et le mécanisme de l'AOS. Medapalli et al. [54,70] ont étudié la désaimantation ultrarapide d'alliages FeCoGd en fonction de la température et de la composition via une expérience tr-MOKE qui est sensible au moment magnétique porté par les électrons 3d du MT. Ils ont montré que l'amplitude de la désaimantation est supérieure si la température à l'équilibre ( $T_{\text{éq}}$ ) de l'alliage est inférieure à  $T_{\text{comp}}$ . Dans la même période, López-Flores et al. [71] ont mesuré différents temps caractéristiques de désaimantation des TR dans des alliages MT-TR lorsque  $T_{\text{éq}}$  est supérieure ou inférieure à  $T_{\text{comp}}$ . La désaimantation est plus rapide pour  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$ . Mais cette différence est attribuée, par ces auteurs, à la fluctuation des spins liée à la proximité de la température de Curie ( $T_C$ ) et non pas à un effet de la  $T_{\text{comp}}$  sur la désaimantation ultrarapide. Ainsi, selon Medapalli et al. [54,70] la température de compensation influence la désaimantation ultrarapide contrairement à l'interprétation de López-Flores et al. [71]. Cependant, il est à noter que dans l'article de López-Flores et al. [71] différents alliages magnétiques ont été comparés ( $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  et  $\text{Co}_{86}\text{Tb}_{14}$ ). Cela peut également expliquer les différences observées entre ces auteurs.

C'est pour pallier aux limitations des mesures dans les deux travaux précédents [54,70,71] (mesures limité à la dynamique des MT et mesures effectuées sur deux alliages de concentrations très différentes) que nous avons réalisé ce projet.

Pour des raisons pratiques et expérimentales (champs coercitifs, anisotropies,  $T_{\text{comp}}$ ) nous avons choisi d'étudier l'alliage CoDy. La première partie de ce chapitre est dédiée aux caractérisations magnétiques statiques des alliages CoDy. Dans la deuxième partie nous décrivons les mesures de

la désaimantation ultrarapide. Pour terminer, nous discuterons les résultats obtenus en nous appuyant sur les données de la bibliographie.

Ces résultats ont donné lieu à une publication :

T. Ferté, N. Bergeard, L. Le Guyader, M. Hehn, G. Malinowski, E. Terrier, E. Otero, K. Holldack, N. Pontius, et C. Boeglin, "*Element-resolved ultrafast demagnetization rates in ferrimagnetic CoDy*", Phys. Rev. B **96**, 134303 (2017)

## IV.1. Caractérisations magnétiques statiques des alliages CoDy

L'objectif avec les mesures des caractérisations magnétiques statiques présentées ci-dessous est de définir un ou plusieurs alliages CoDy nous permettant de réaliser ce projet, c'est à dire de mesurer les désaimantations ultrarapides des moments 3d du Co et 4f du Dy induites par des impulsions laser femtosecondes au-dessus et en dessous de  $T_{\text{comp}}$ .

### IV.1.1. Le choix de la concentration des alliages CoDy

Afin de réaliser ce projet, les contraintes expérimentales de la chambre Femtoslicing (température et champ magnétique) nous imposent que la  $T_{\text{comp}}$  de l'alliage CoDy soit comprise entre 80 K et 350 K et que le champ coercitif de l'échantillon soit inférieur à 0,55 T. D'après l'article de Duc et al. [161], il faut que les alliages  $\text{Co}_x\text{Dy}_{1-x}$  possèdent une concentration en Co comprise entre 76 % et 84 % pour que  $T_{\text{comp}}$  soit comprise entre 80 K et 350 K. Nous avons donc élaboré un échantillon  $\text{Co}_{79}\text{Dy}_{21}$  et mesuré son champ coercitif en fonction de la température (voir Figure IV.1). Par ailleurs nous savons que le champ coercitif diverge autour de  $T_{\text{comp}}$  [22,23]. Cette mesure indique que la  $T_{\text{comp}}$  de l'alliage  $\text{Co}_{79}\text{Dy}_{21}$  est d'environ 250 K et que pour saturer magnétiquement l'échantillon (avec 0,55 T) il faut que sa température soit inférieure à 150 K ou supérieure à 320 K.

Nous avons donc essayé de mesurer les désaimantations ultrarapides de cet alliage  $\text{Co}_{79}\text{Dy}_{21}$  par tr-XMCD en réglant la température du cryostat à 80 K (pour que  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$ ) et à 320 K (pour que  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ ). Malheureusement ces mesures n'ont pas été possibles. Lors des expériences pompe-sondes le laser de pompe entraîne un réchauffement de l'échantillon. Pour la mesure à  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$ , la température à l'équilibre ne pouvait pas être baissée en deçà de 150 K et l'échantillon ne pouvait donc pas être saturé magnétiquement. Pour la mesure à  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ , la température à l'équilibre de l'échantillon était trop importante et l'alliage magnétique présentait des signes de détérioration (diminution du XMCD probablement liée à une ségrégation chimique).

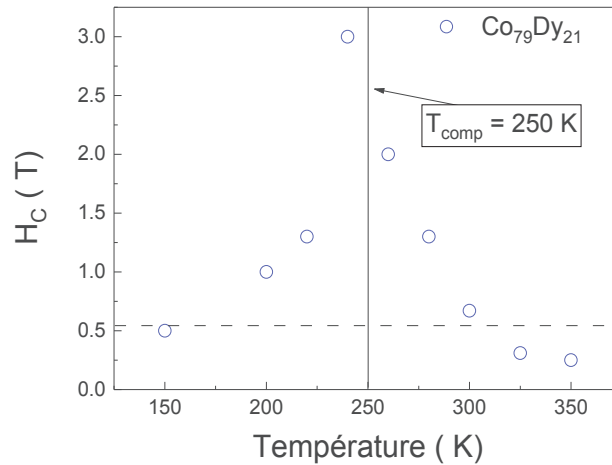


Figure IV.1 : Champs coercitif en fonction de la température pour un alliage  $\text{Co}_{79}\text{Dy}_{21}$  mesurés au VSM-SQUID.

Pour contourner ces difficultés nous avons élaboré deux alliages CoDy proches en concentration mais avec deux  $T_{\text{comp}}$  différentes. Le premier alliage devant avoir une  $T_{\text{comp}}$  inférieure à 250 K pour pouvoir être mesuré à  $T_{\text{éq}} = 270$  K ( $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ ) sans détériorer l'alliage. Le deuxième alliage devant avoir une  $T_{\text{comp}}$  supérieure à 250 K pour être saturé magnétiquement à  $T_{\text{éq}} = 150$  K ( $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$ ). Nous avons donc élaboré les deux alliages suivants :  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  (n°1) et  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  (n°2).

#### IV.1.2. $T_{\text{comp}}$ , $T_C$ et cycles d'hystérésis des alliages $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ et $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$

Nous avons mesuré la  $T_{\text{comp}}$  des deux alliages CoDy afin de s'assurer que la  $T_{\text{comp}}$  de l'échantillon n°1  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  (resp. n°2  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$ ) est bien inférieure (supérieure) à 250 K. La Figure IV.2 représente l'évolution de l'aimantation des 2 alliages (n°1  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  et n°2  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$ ) en fonction de la température mesurée par un magnétomètre VSM-SQUID. Pour l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  (resp.  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$ )  $T_{\text{comp}} = 219 \pm 3$  K ( $T_{\text{comp}} = 314 \pm 3$  K). Ainsi les  $T_{\text{comp}}$  des 2 alliages correspondent aux caractéristiques ce que nous souhaitions.

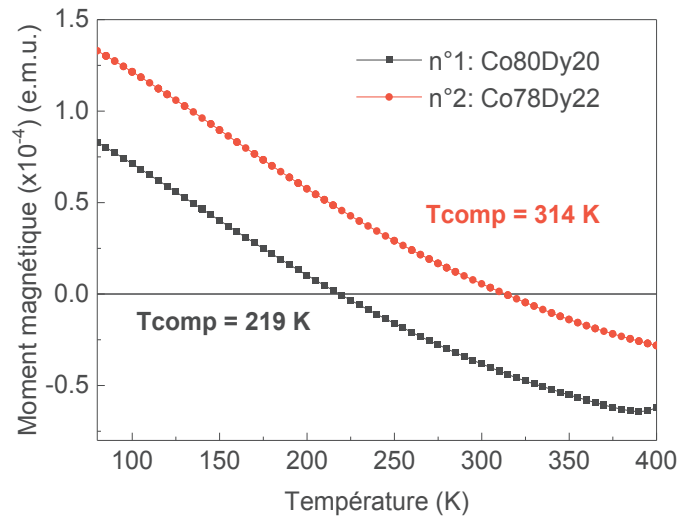


Figure IV.2: Évolution du moment magnétique total en fonction de la température pour les deux alliages CoDy.

Nous souhaitons également connaître la température de Curie ( $T_C$ ) des 2 alliages. Malheureusement leurs  $T_C$  sont trop élevées pour être mesurées expérimentalement. La Figure IV.3 représente l'évolution de la  $T_C$  et de la  $T_{comp}$  en fonction de la concentration de Co dans les alliages  $Co_xDy_{100-x}$ . Cette figure s'appuie d'une part sur les calculs de Duc et al. [161] ainsi que ceux d'Hansen et al. [165] et d'autre part sur nos propres mesures expérimentales. Les températures de compensation mesurées par VSM-SQUID sur les deux alliages (n°1  $Co_{80}Dy_{20}$  et n°2  $Co_{78}Dy_{22}$ ) sont en accord avec celles calculées par Duc et al. [161]. Nous pouvons donc utiliser ces calculs pour estimer la température de Curie de nos alliages. Pour l'alliage n°1  $Co_{80}Dy_{20}$   $T_C = 760 \pm 30$  K. Pour l'alliage n°2  $Co_{78}Dy_{22}$   $T_C = 630 \pm 30$  K.



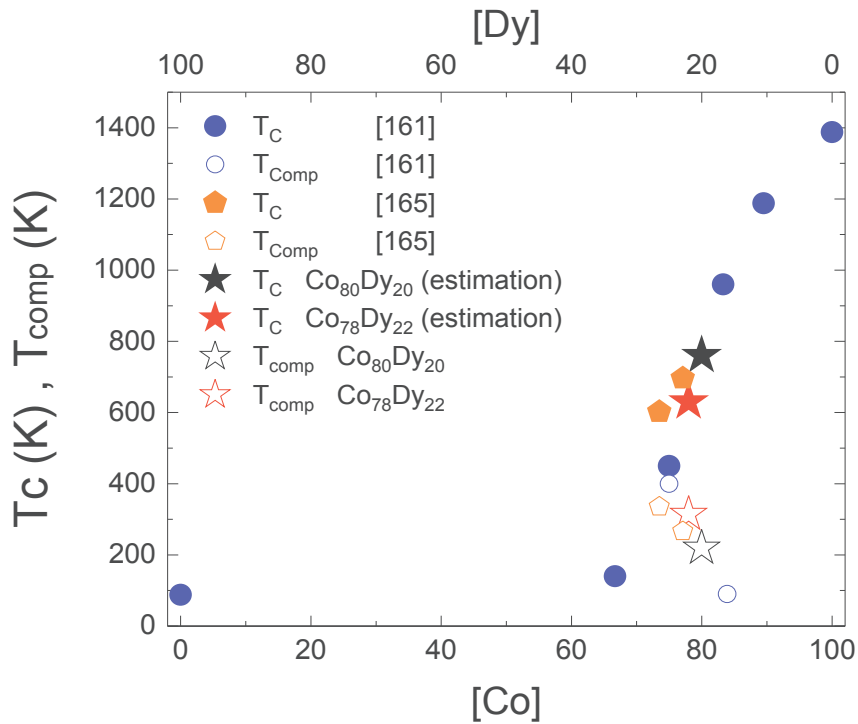


Figure IV.3 : Évolution de la température de Curie et de la température de compensation en fonction de la concentration de Dy dans les alliages  $Co_{100-x}Dy_x$  regroupant nos mesures (étoiles creuses), des estimations (étoiles pleines) ainsi que des données extraites des articles [161,165].

Par ailleurs, il faut s'assurer que ces deux alliages pourront être saturés magnétiquement lors des expériences pompe-sondes. Pour cela nous avons mesuré leurs cycles d'hystérésis aux températures auxquelles les deux alliages seront mesurés lors des expériences pompe-sondes (voir Figure IV.4). Ces températures sont : 270 K pour l'alliage n°1  $Co_{80}Dy_{20}$  ( $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ ) et 150 K pour l'alliage n°2  $Co_{78}Dy_{22}$  ( $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$ ). Nous constatons que les champs coercitifs des deux alliages sont inférieurs à 0,55 T. Ainsi, ils pourront être saturés pendant les expériences pompe-sonde.

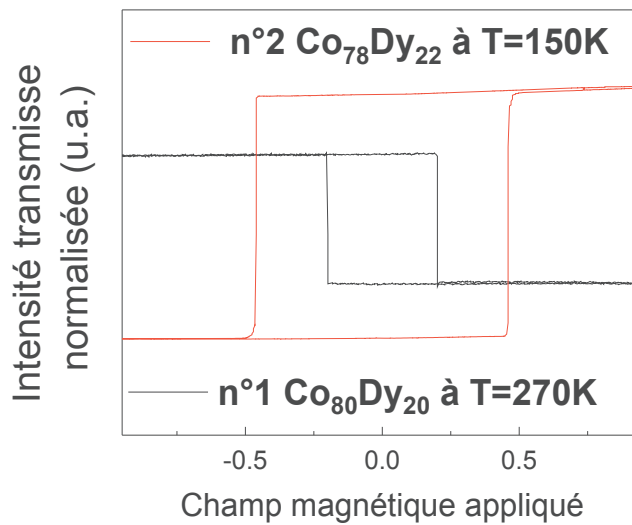


Figure IV.4 : Cycles d'hystérésis des deux échantillons (n°1 Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> et n°2 Co<sub>78</sub>Dy<sub>22</sub>) mesurés à 270 K et 150 K respectivement au seuil M<sub>5</sub> du Dy.

L'utilisation de deux alliages avec des températures de Curie différentes nous donne la possibilité de réaliser les expériences pompe-sondes en dessous et au-dessus de leurs  $T_{\text{comp}}$  en ayant, environ, la même valeur de  $T_C - T_{\text{éq}} \approx 430$  K. Cette précaution est nécessaire, si nous souhaitons étudier uniquement l'influence de la  $T_{\text{comp}}$  sur la désaimantation ultrarapide, puisque le modèle M3TM de Koopmans et al. [30] montre que la désaimantation ultrarapide dépend de  $T - T_C$ .

Les caractérisations des propriétés magnétiques statiques nous ont permis de sélectionner deux alliages (n°1 Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> et n°2 Co<sub>78</sub>Dy<sub>22</sub>) afin de réaliser les mesures pompe-sonde des désaimantations ultrarapides à  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$  et  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$  respectivement. Si cela nous permet de travailler à  $T_C - T_{\text{éq}}$  constant (comme c'est le cas pour nos 2 alliages), il est nécessaire de s'assurer que les 2% d'écart de composition ne modifient pas les propriétés magnétiques à l'échelle microscopique de nos alliages.

### IV.1.3. Spectres d'absorptions des rayons X et moments magnétiques des alliages Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> et Co<sub>78</sub>Dy<sub>22</sub>

Toutes les mesures de cette partie ont été réalisées sur la ligne DEIMOS du synchrotron SOLEIL. Afin de comparer les propriétés magnétiques à l'échelle microscopique de 2 alliages nous avons mesuré les spectres XAS et XMCD des échantillons n°1 et n°2 aux seuils L<sub>2,3</sub> du Co et M<sub>4,5</sub> du Dy à 150 K représentés respectivement sur la Figure IV.5 et la Figure IV.6. Nous constatons que la forme et l'intensité des spectres XAS obtenus pour le Co et le Dy sont similaires pour l'échantillon n°1 et n°2. Cela montre que l'occupation des niveaux électroniques

est la même pour les deux alliages. Pour le Dy, les spectres XMCD de l'échantillon n°1 et n°2 sont identiques. Pour le Co, il y a une différence entre le spectre XMCD mesuré au Co  $L_{2,3}$  de l'échantillon n°1 et n°2. L'amplitude XMCD de l'échantillon n°1 est plus grande. Cependant, en appliquant les règles de sommes (voir Annexe A) pour extraire les moments magnétiques par atomes de Co et de Dy à  $T = 150$  K, nous constatons que les moments magnétiques des deux alliages peuvent être considérés comme égaux au vu des barres d'erreurs (voir Tableau IV.1).

Les mesures XAS et XMCD statiques à  $T=150$  K montrent que les propriétés magnétiques microscopiques des deux échantillons sont identiques malgré les 2 % d'écart en composition. Ce résultat est en accord avec les hypothèses des calculs en champ moyen, qui reproduisent fidèlement les propriétés magnétiques des alliages TR-MT [161,162,166]. Cette étape était indispensable afin de pouvoir comparer la désaimantation ultrarapide dans les deux alliages.

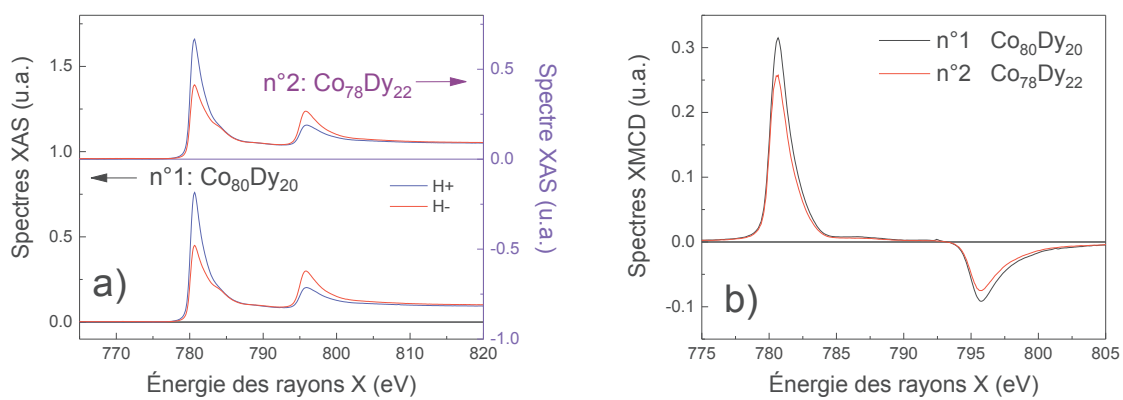


Figure IV.5 :a) Spectres XAS aux seuils  $L_{2,3}$  du Co des échantillons n°1 (axe de gauche) et n°2 (axe de droite) pour deux configurations magnétiques différentes H+ et H- à 150 K. b) Spectres XMCD aux seuils  $L_{2,3}$  du Co des échantillons n°1 et n°2 à 150 K.

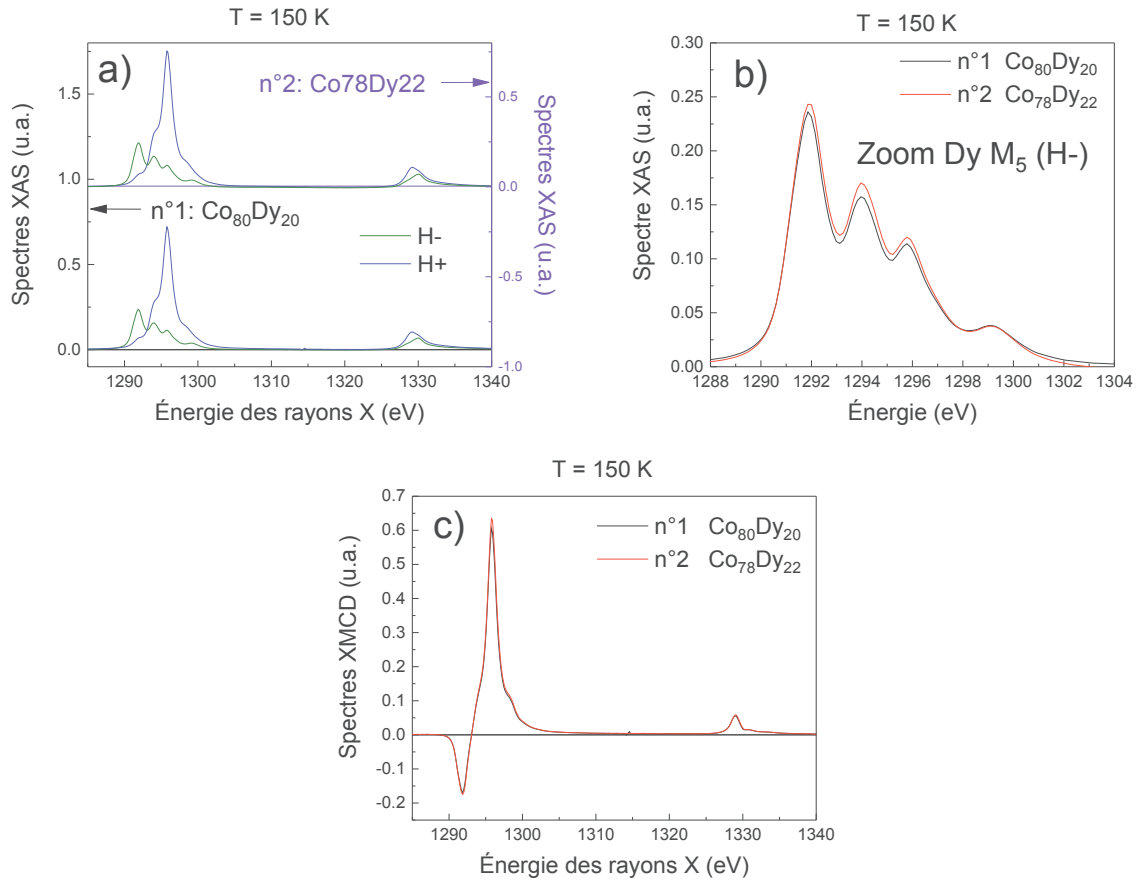


Figure IV.6: a) Spectres XAS aux seuils  $M_{4,5}$  du Dy des échantillons n°1 (axe de gauche) et n°2 (axe de droite) pour deux configurations magnétiques différentes H+ et H- à 150 K. b) Spectres XAS agrandit au seuil  $M_5$  du Dy des deux échantillons pour un champ appliqué H- à 150 K. c) Spectres XMCD aux seuils  $M_{4,5}$  du Dy des échantillons n°1 et n°2 à 150 K.

Lors des expériences pompe-sondes nous souhaitons mesurer l'alliage n°1  $Co_{80}Dy_{20}$  à  $T_{\text{éq}}=270$  K ( $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ ) et l'alliage n°2  $Co_{78}Dy_{22}$  à  $T_{\text{éq}} = 150$  K ( $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$ ). Pour comparer les propriétés magnétiques statiques des deux alliages à leurs  $T_{\text{éq}}$  respectives nous avons également mesuré la transmission des rayons X aux seuils  $L_{2,3}$  du Co et  $M_{4,5}$  du Dy pour l'échantillon n°1  $Co_{80}Dy_{20}$  à 270 K. La Figure IV.7 permet de comparer (aux seuils  $M_5$  du Dy et  $L_3$  du Co) l'intensité transmise (a,c) et le signal XMCD (b,d) de l'échantillon n°1 à 270 K et n°2 à 150 K. Notez : dans le but de mieux comparer le signal XMCD des 2 alliages le signal XMCD de l'alliages n°2  $Co_{78}Dy_{22}$  a été multiplié par -1.

Concernant le Dy : en comparant la forme des spectres XAS de l'échantillon n°1  $Co_{80}Dy_{20}$  à 270 K (courbes noires) et de l'échantillon n°2  $Co_{78}Dy_{22}$  à 150 K (courbes rouges) de la Figure IV.7 a), nous constatons que l'occupation des niveaux électroniques Zeeman des états 4f est différente. Cette différence est attribuée aux fluctuations thermiques [167,168]. En Figure IV.7 b), nous voyons que le signal XMCD au seuil Dy  $M_5$  de l'échantillon n°1  $Co_{80}Dy_{20}$  à 270 K est plus faible que celui de l'échantillon n°2  $Co_{78}Dy_{22}$  à 150 K. Nous constatons également que la forme des deux signaux XMCD est la même. On observe par contre, une différence d'amplitude entre les

deux courbes XMCD. La diminution du signal XMCD à 270 K provient d'un désordre induit par la température.

Concernant le Co : en comparant la forme des spectres XAS de l'échantillon n°1  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  à 270 K (courbes noires) et de l'échantillon n°2  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  à 150 K (courbes rouges) de la Figure IV.7 c), nous constatons que l'occupation des niveaux électroniques Zeeman des états 4f est similaire. En Figure IV.7 d), nous voyons que le signal XMCD au seuil Co  $L_3$  de l'échantillon n°1  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  à 270 K est plus important que celui de l'échantillon n°2  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  à 150 K. Ainsi le signal XMCD augmente lorsque la température augmente de 150 K à 270 K. Chen et al. [168] ont également observé cette augmentation du moment magnétique du Co en augmentant la température sur un seul alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ .

Grâce à ces mesures nous avons appliqué les règles de sommes (voir Annexe A) pour extraire les moments magnétiques par atomes de Co et de Dy résumés dans le Tableau IV.1. L'échantillon n°1 à 270 K a un moment magnétique total de  $-4,12 \mu\text{B}/\text{at}$  pour le Dy et de  $1,88 \mu\text{B}/\text{at}$  pour le Co. L'échantillon n°2 à 150 K a un moment magnétique total de  $6,55 \mu\text{B}/\text{at}$  pour le Dy et de  $-1,53 \mu\text{B}/\text{at}$  pour le Co. Ces valeurs et leurs évolutions en fonction de la température sont en accord avec celles mesurées par Chen et al. [168] sur un seul alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ .

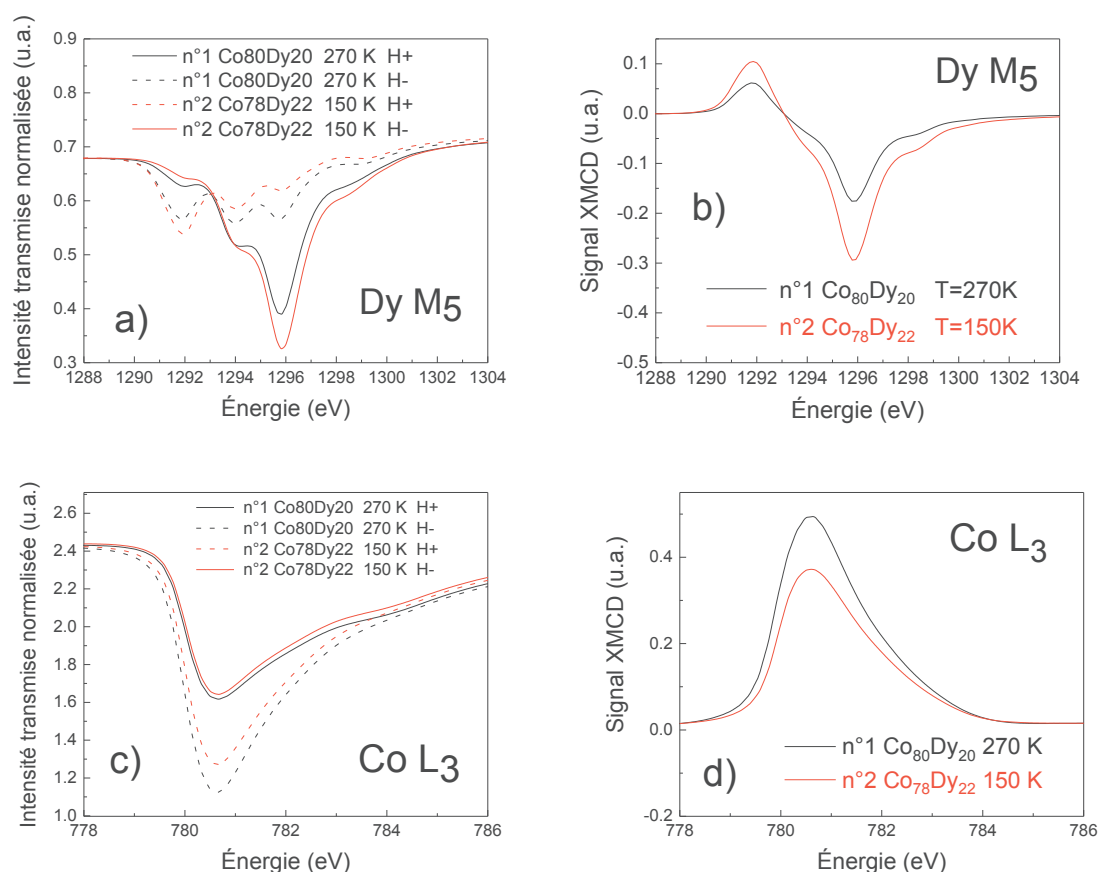


Figure IV.7 : Intensité XAS (a,c) et signal XMCD (b,d) de l'échantillon n°1 à 270 K et de l'échantillon n°2 à 150 K aux seuils  $M_5$  du Dy et  $L_3$  du Co. Notez : dans le but de mieux comparer des 2 alliages, le signal XMCD de l'alliages n°2  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  a été multiplié par -1.

Tableau IV.1: Moment de spin et moment orbital du Co et du Dy de l'échantillon n°1 et n°2 à différentes températures.

Échantillon	T (K)	Élément	M spin ( $\mu_B/at$ )	M orb ( $\mu_B/at$ )	M tot ( $\mu_B/at$ )
n°1 : Co <sub>80</sub> Dy <sub>20</sub>	150	<b>Co</b>	-1.50 ± 0.08	-0.19 ± 0.02	-1.69 ± 0.10
		<b>Dy</b>	2.98 ± 0.15	3.66 ± 0.18	<b>6.64 ± 0.33</b>
	270	<b>Co</b>	1.66 ± 0.08	0.22 ± 0.02	1.88 ± 0.10
		<b>Dy</b>	-1.89 ± 0.10	-2.23 ± 0.11	<b>-4.12 ± 0.21</b>
n°2 : Co <sub>78</sub> Dy <sub>22</sub>	150	<b>Co</b>	-1.35 ± 0.07	-0.18 ± 0.02	-1.53 ± 0.09
		<b>Dy</b>	2.96 ± 0.15	3.59 ± 0.18	<b>6.55 ± 0.33</b>

Les spectres XAS des deux échantillons à 150 K montrent que la structure électronique des deux alliages peut être considérée comme identique. Les spectres XMCD nous assure que les deux échantillons présentent les mêmes propriétés magnétiques à l'échelle microscopique (moment magnétique atomique). Nous avons en plus quantifié l'aimantation des sous réseaux de Co et de Dy de l'échantillon n°1 à 270 K et de l'échantillon n°2 à 150 K.

L'objectif qui consistait à déterminer un protocole expérimental nous permettant de mesurer les dynamiques des moments 3d du Co et 4f du Dy induites par des impulsions laser femtosecondes au-dessus et en dessous de  $T_{comp}$  a donc été atteint.

## IV.2. Mesures des désaimantations ultrarapides par XMCD résolues en temps

Nous avons mesuré la désaimantation ultrarapide des deux échantillons CoDy par tr-XMCD avec une résolution temporelle de 130 fs sur la ligne Femtoslicing du synchrotron BESSY II à Berlin. Nous allons tout d'abord décrire précisément les conditions expérimentales et ensuite les résultats obtenus.

### IV.2.1. Détails des conditions expérimentales

#### IV.2.1.1. Températures de Curie, de compensation et d'équilibre.

La Figure IV.8 ci-dessous résume les conditions de température des échantillons n°1 et n°2 lors des expériences pompe-sondes. Les températures de Curie ( $T_C$ ) ont été déterminées grâce à l'article de Duc et al. [161]. Les températures d'équilibre ( $T_{eq}$ ) ont été estimées assez précisément grâce à l'échantillon n°1. En effet, nous savons que le champ coercitif de l'échantillon n°1 est supérieur à 0,55 T, disponible dans la chambre expérimentale lorsque sa température est comprise entre la température de compensation, c'est à dire 219K et 260K. Pour une fluence donnée du laser de pompe nous avons donc augmenté la température du cryostat jusqu'à ce que le coercitif soit inférieur à 0,55 T, c'est à dire que la température réelle de l'échantillon soit supérieure à 260 K. Cela nous a permis d'estimer l'augmentation de température liée au laser de pompe en faisant la différence entre la température cryostat réglée et la valeur seuil de 260 K. Cette différence est de l'ordre de + 70 K. Comme la même fluence laser a été utilisée pour les deux expériences alors l'augmentation de température liée au laser de pompe pour l'échantillon n°2 doit être sensiblement la même. Il est à noter que la valeur de  $T_C - T_{eq}$  est la même pour l'échantillon n°1 et n°2 et qu'elle vaut  $430 \pm 30$  K.

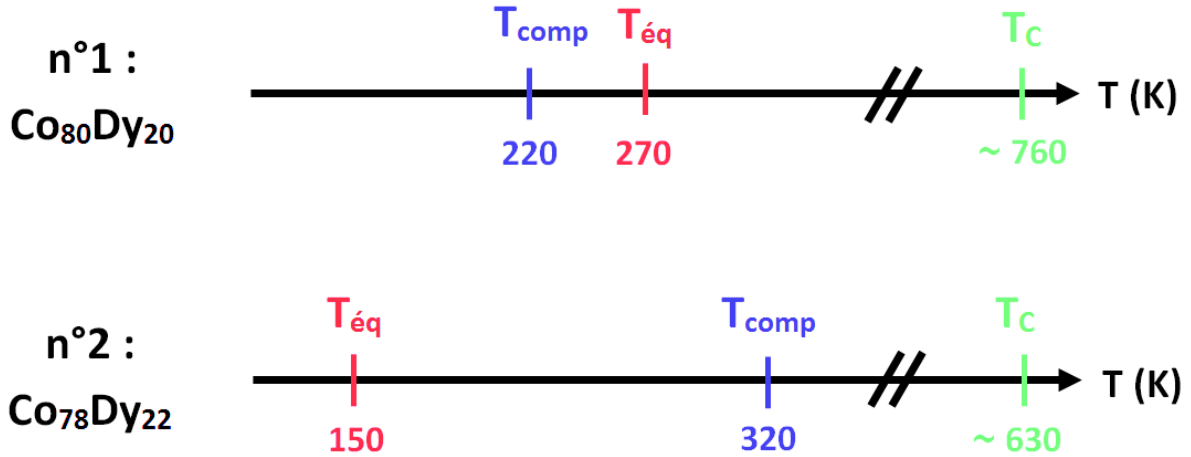


Figure IV.8: Schéma des températures caractéristiques des échantillons n°1 et n°2.  $T_{\text{éq}}$  est la température d'équilibre, c'est à dire la température de l'échantillon pendant les expériences pompe-sondes.  $T_{\text{comp}}$  est la température de compensation magnétique.  $T_c$  la température de Curie.

#### IV.2.1.2. Configuration géométrique

Lors des premiers tests expérimentaux nous nous sommes rendu compte que le signal sur bruit était légèrement meilleur lorsqu'il y avait un angle de  $30^\circ$  entre la normale à la surface de l'échantillon et la direction de propagation des rayons X. Les mesures ont donc été réalisées dans cette configuration géométrique.

#### IV.2.2. Désaimantation ultrarapide du Co et du Dy.

Nous avons mesuré la désaimantation ultrarapide aux seuils  $L_3$  du Co et  $M_5$  du Dy pour l'échantillon n°1  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  lorsque  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$  et l'échantillon n°2  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  lorsque  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$  via une technique de tr-XMCD.

Le signal XMCD (%) est défini ainsi :

$$XMCD (\%) = 200 * \frac{I_{H+} - I_{H-}}{I_{H+} + I_{H-}} \quad (\text{IV.1})$$

$I_{H+}$  : intensité des rayons X transmise lorsque le champ magnétique appliqué est positif,

$I_{H-}$  : intensité des rayons X transmise lorsque le champ magnétique appliqué est négatif.



Sur la Figure IV.9 a) le signal XMCD exprimé en % aux temps négatif (avant l'impulsion laser) vaut 4,1 % pour le Co et -2,1 % pour le Dy. Sur la Figure IV.9 b) le signal XMCD aux temps négatifs vaut -3,3 % pour le Co et 4,3 % pour le Dy. Tout d'abord nous constatons que le signal XMCD change de signe entre l'élément chimique Co et Dy pour un même échantillon. Cela confirme que les moments magnétiques du Co et du Dy sont alignés antiparallèlement comme attendu dans un alliage ferrimagnétique. Nous constatons également que le signal XMCD change de signe entre l'échantillon n°1 au n°2 pour un même élément chimique. Cela confirme que l'échantillon n°1 est au-dessus de  $T_{comp}$  et que l'échantillon n°2 est en-dessous de  $T_{com}$ . De plus le rapport du signal XMCD de l'échantillon n°1 sur celui de l'échantillon n°2 au seuil du Co ou du Dy devrait être égal au rapport du moment magnétique total mesuré précédemment (voir Tableau IV.1).

$$\left[ \begin{array}{l} \frac{XMCD_{Co} \text{ échantillon } n^{\circ}1}{XMCD_{Co} \text{ échantillon } n^{\circ}2} = \frac{4.1}{-3.3} = -1.24 \quad (IV.2) \\ \\ \frac{M_{TOT} Co \text{ échantillon } n^{\circ}1}{M_{TOT} Co \text{ échantillon } n^{\circ}2} = \frac{1.88}{-1.53} = -1.23 \quad (IV.3) \end{array} \right.$$

$$\left[ \begin{array}{l} \frac{XMCD_{Dy} \text{ échantillon } n^{\circ}1}{XMCD_{Dy} \text{ échantillon } n^{\circ}2} = \frac{-2.1}{4.3} = -0.49 \quad (IV.4) \\ \\ \frac{M_{TOT} Dy \text{ échantillon } n^{\circ}1}{M_{TOT} Dy \text{ échantillon } n^{\circ}2} = \frac{-4.12}{6.55} = -0.63 \quad (IV.5) \end{array} \right.$$

Pour le Co, le rapport du signal XMCD est égal au rapport de  $M_{TOT}$  du Co. Pour le Dy, les deux rapports ne sont pas égaux. Cette différence a certainement pour origine un réglage en énergie non optimum, c'est à dire à une énergie qui ne correspond pas au maximum du signal XMCD, lors de la mesure de désaimantation ultrarapide de l'échantillon n°1 au seuil du Dy sur la Figure IV.9 a).

En comparant les dynamiques mesurées sur la Figure IV.9 a) et b) nous observons que, le Co se désaimante plus vite que le Dy, que l'amplitude de désaimantation du Co est plus faible que celle du Dy et que l'ordre magnétique du Co commence à se rétablir avant même que l'aimantation du Dy atteigne son minimum. Ces observations sont en accord avec toutes les autres publications traitant sur les alliages MT-TR [9,10,71,80,127]. Cela signifie que malgré le couplage d'échange entre le sous réseau des MT et le sous réseau des TR les dynamiques ultrarapides de désaimantations sont différentes dans chaque sous réseau.

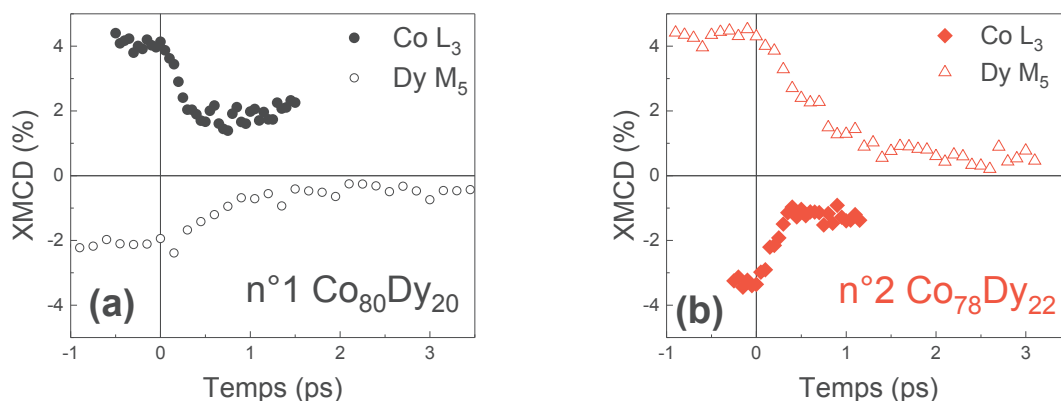


Figure IV.9 : tr-XMCDaux seuils  $L_3$  du Co et  $M_5$  du Dy pour a) l'échantillon n°1 à 270 K et b) l'échantillon n°2 à 150 K.

Nous souhaitons maintenant comparer, pour les deux échantillons, les dynamiques de désaimantation du Co et du Dy. Pour cela nous avons tracé dans la Figure IV.10 et la Figure IV.11 le signal XMCD normalisé du Co et du Dy respectivement pour les deux échantillons. La fonction mathématique utilisée pour ajuster les données expérimentales est une fonction exponentielle décroissante avec relaxation convoluée avec une gaussienne de 130 fs de FWHM représentant la résolution expérimentale (voir Annexe C). Ces ajustements nous permettent d'extraire le temps caractéristique et l'amplitude de désaimantation. Ainsi la Figure IV.10 montre que le sous réseau de Co de l'échantillon n°1 se désaimante avec un temps caractéristique de  $190 \pm 60$  fs et une amplitude de  $59 \pm 5$  %. L'échantillon n°2 se désaimante avec un temps caractéristique de  $160 \pm 60$  fs et une amplitude de  $65 \pm 4$  %. Ainsi les deux échantillons se désaimantent avec le même temps caractéristique et quasiment la même amplitude. Cela signifie donc que, pour le sous réseau de Co, la désaimantation ultrarapide est la même pour  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$  et  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ . Autrement dit, la  $T_{\text{comp}}$  n'a pas d'influence sur le temps caractéristique et l'amplitude de désaimantation du Co. La Figure IV.11 montre que le sous réseau de Dy de l'échantillon n°1 se désaimante avec un temps caractéristique de  $610 \pm 70$  fs et une amplitude de  $80 \pm 9$  %. L'échantillon n°2 se désaimante avec un temps caractéristique de  $630 \pm 60$  fs et une amplitude de  $92 \pm 8$  %. Les deux échantillons se désaimantent donc avec le même temps caractéristique et quasiment la même amplitude. Cela signifie que, pour le sous réseau de Dy, la désaimantation ultrarapide est la même pour  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$  et  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ . Autrement dit, la  $T_{\text{comp}}$  n'a pas d'influence sur le temps caractéristique et l'amplitude de désaimantation du Dy.

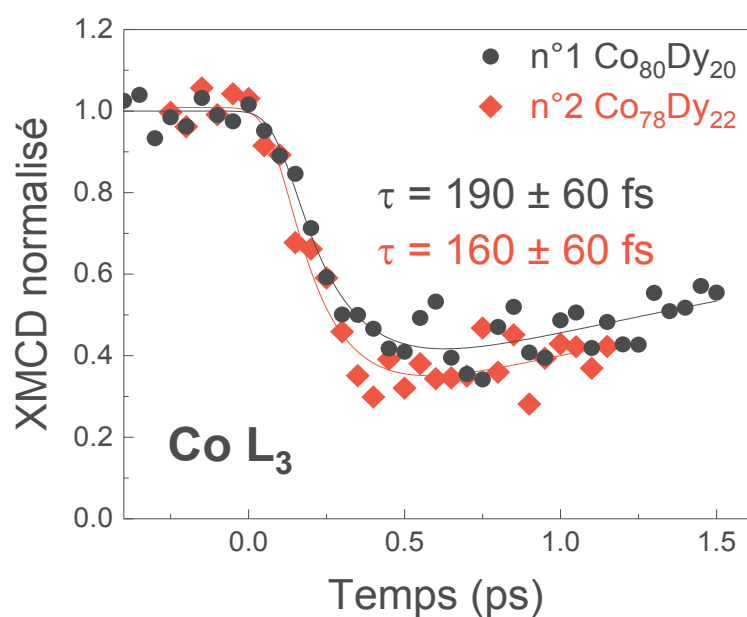


Figure IV.10: XMCD normalisé en fonction du temps au seuil  $L_3$  du Co ainsi que leurs ajustements (voir Annexe C) pour l'échantillon n°1  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  lorsque  $T_{\text{éq}} = 270 \text{ K} > T_{\text{comp}}$  et l'échantillon n°2  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  lorsque  $T_{\text{éq}} = 150 \text{ K} < T_{\text{comp}}$ . La fluence est de  $6 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  pour les 2 échantillons.

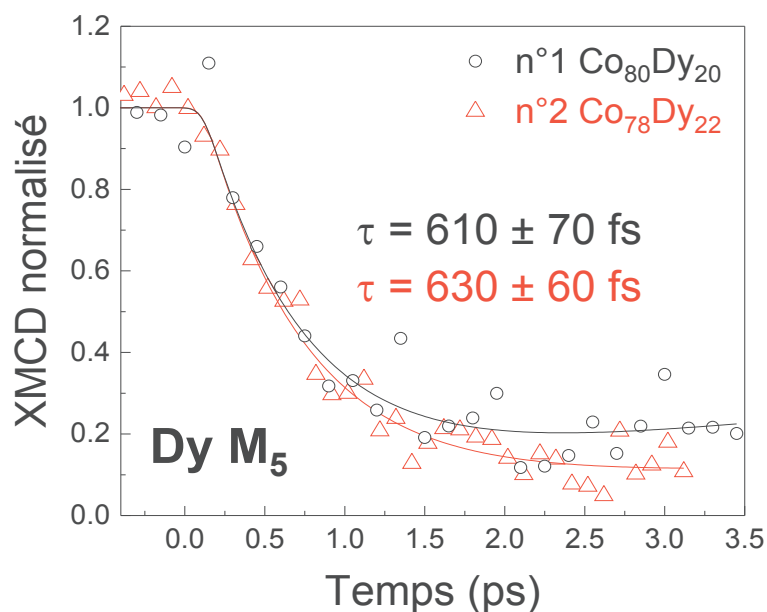


Figure IV.11: XMCD normalisé en fonction du temps au seuil  $M_5$  du Dy ainsi que leurs ajustements (voir Annexe C) pour l'échantillon n°1  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  lorsque  $T_{\text{éq}} = 270 \text{ K} > T_{\text{comp}}$  et l'échantillon n°2  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  lorsque  $T_{\text{éq}} = 150 \text{ K} < T_{\text{comp}}$ . La fluence est de  $6 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  pour les 2 échantillons.

Nos résultats montrent que les temps caractéristiques et l'amplitude de désaimantation ne sont pas influencés par le fait que la température d'équilibre soit inférieure ou supérieure à la température de compensation dans l'alliage  $\text{CoDy}$ . Cependant si nous considérons le temps

caractéristique de désaimantation  $\tau$ , l'amplitude de désaimantation  $A_1$  et le moment magnétique atomique total  $M_{TOT}$  nous pouvons calculer le rapport de désaimantation "D" défini ainsi :

$$D = \frac{M_{TOT} * A_1}{\tau_D} \quad (IV.6)$$

Le rapport de désaimantation peut être aussi vu comme la capacité ou l'efficacité du matériau magnétique à évacuer son moment magnétique. Le Tableau IV.2 récapitule les valeurs du rapport de désaimantation calculées pour les deux échantillons. Pour l'échantillon n°1  $Co_{80}Dy_{20}$  à une  $T_{\text{éq}} = 270$  K nous mesurons un rapport de désaimantation de  $5,8 \pm 2,7 \mu_B / (\text{ps.at})$  pour le Co et de  $-5,4 \pm 1,5 \mu_B / (\text{ps.at})$  pour le Dy. Pour l'échantillon n°2  $Co_{78}Dy_{22}$  à  $T_{\text{éq}} = 150$  K nous mesurons un rapport de désaimantation de  $-6,2 \pm 3,1 \mu_B / (\text{ps.at})$  pour le Co et de  $-9,4 \pm 1,7 \mu_B / (\text{ps.at})$  pour le Dy. Nous constatons que ces rapports sont tous identiques (au signe près) excepté celui du Dy de l'échantillon n°2 lorsque  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$ . Ainsi, pour le Co et pour  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$  ou  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ , le rapport de désaimantation ne change globalement pas alors que pour le Dy la valeur du rapport est quasiment doublée. Ces résultats posent un certain nombre de questions : 1) quel mécanisme physique permet d'expliquer l'augmentation du rapport de désaimantation dans le cas du Dy ? 2) Pourquoi un processus similaire n'a-t-il pas été observé pour le sous réseau de Co ?

Tableau IV.2 :tableau récapitulatif du temps caractéristique de désaimantation, du moment magnétique total, de l'amplitude de désaimantation et du rapport de désaimantation pour l'échantillon n°1 et n°2 au seuil du Co et du Dy.

Échantillons	$T_{\text{éq}}$	Éléments	$\tau$ (ps)	$M_{TOT}$ ( $\mu_B/\text{at}$ )	$A_1$ (%)	$D = M_{TOT} * A_1 / \tau$ ( $\mu_B / \text{ps.at}$ )
n°1 : $Co_{80}Dy_{20}$	$> T_{\text{comp}}$	Co $L_3$	$0.19 \pm 0.06$	$1.88 \pm 0.10$	$59 \pm 5$	<b><math>5.8 \pm 2.7</math></b>
		Dy $M_5$	$0.61 \pm 0.07$	$-4.12 \pm 0.21$	$80 \pm 9$	<b><math>-5.4 \pm 1.5</math></b>
n°2 : $Co_{78}Dy_{22}$	$< T_{\text{comp}}$	Co $L_3$	$0.16 \pm 0.06$	$-1.53 \pm 0.09$	$65 \pm 4$	<b><math>-6.2 \pm 3.1</math></b>
		Dy $M_5$	$0.63 \pm 0.06$	$6.55 \pm 0.33$	$92 \pm 8$	<b><math>9.6 \pm 2.2</math></b>

### IV.3. Discussions et interprétations

Deux articles [71,127] nous permettent de compléter nos données expérimentales. Radu et al. [127] ont mesuré les désaimantations ultrarapides et les moments magnétiques totaux de chaque sous réseau dans l'alliage  $\text{Co}_{83}\text{Dy}_{17}$  lorsque  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ . Cela permet de calculer le rapport de désaimantation pour le Co et le Dy. López-Flores et al. [71] ont mesuré les désaimantations ultrarapides et les moments magnétiques totaux de chaque sous réseau dans l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  lorsque  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$ . Ils ont également mesuré la désaimantation ultrarapide du sous réseau de Tb d'un alliage  $\text{Co}_{86}\text{Tb}_{14}$  lorsque  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ . Ces mesures complémentaires sont présentées dans le Tableau IV.3.

Tableau IV.3: tableau récapitulatif des rapports de désaimantation.

Échantillons	$T_{\text{éq}}$	Éléments	$\tau$ (ps)	$M_{\text{TOT}}$ ( $\mu_B/\text{at}$ )	$A_1$ (%)	$D = M_{\text{TOT}} * A_1 / \tau$ ( $\mu_B/\text{ps.at}$ )
n°1 : $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$	$> T_{\text{comp}}$	Co $L_3$	$0.19 \pm 0.06$	$1.88 \pm 0.10$	$59 \pm 5$	<b><math>5.8 \pm 2.7</math></b>
		Dy $M_5$	$0.61 \pm 0.07$	$-4.12 \pm 0.21$	$80 \pm 9$	<b><math>-5.4 \pm 1.5</math></b>
n°2 : $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$	$< T_{\text{comp}}$	Co $L_3$	$0.16 \pm 0.06$	$-1.53 \pm 0.09$	$65 \pm 4$	<b><math>-6.2 \pm 3.1</math></b>
		Dy $M_5$	$0.63 \pm 0.06$	$6.55 \pm 0.33$	$92 \pm 8$	<b><math>9.6 \pm 2.2</math></b>
[127] $\text{Co}_{83}\text{Dy}_{17}$	$> T_{\text{comp}}$	Co $L_3$	$0.17 \pm 0.03$	$1.52 \pm 0.21$	$46 \pm 6$	<b><math>4.1 \pm 1.8</math></b>
		Dy $M_5$	$1.025 \pm 0.15$	$-8.91 \pm 0.84$	$48 \pm 4$	<b><math>-4.2 \pm 1.4</math></b>
[71] $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$	$< T_{\text{comp}}$	Co $L_3$	$0.18 \pm 0.04$	$-1.01 \pm 0.2$	$63 \pm 5$	<b><math>-3.5 \pm 1.8</math></b>
		Tb $M_5$	$0.28 \pm 0.03$	$4 \pm 0.4$	$68 \pm 2$	<b><math>9.7 \pm 2.3</math></b>
[71] $\text{Co}_{86}\text{Tb}_{14}$	$> T_{\text{comp}}$	Co $L_3$		$1.59 \pm 0.4$		
		Tb $M_5$	$0.5 \pm 0.1$	$-6,12 \pm 0.4$	$50 \pm 12$	<b><math>-6.12 \pm 3.2</math></b>

En observant les valeurs absolues du rapport de désaimantation "D", exprimées en  $\mu_B/(\text{ps.at})$ , du Tableau IV.3 nous constatons que :

- pour les échantillons dont  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$  ( $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  et  $\text{Co}_{83}\text{Dy}_{17}$ ), D est le même pour les deux sous réseaux. Cela signifie que l'efficacité des deux sous réseaux à transférer du moment angulaire vers l'extérieur est identique.

- pour les échantillons dont  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$  ( $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  et  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ ),  $D$  est différents pour les deux sous réseaux.  $D$  est plus grand pour le sous réseau des TR que pour les MT. Cela signifie que les TR évacuent mieux le moment angulaire que les MT.

Les données expérimentales de Radu et de López-Flores [71,127] confirment les évolutions du rapport de désaimantation que nous avons observées. Cela laisse supposer que nos résultats sont peut-être généralisables à d'autres alliages MT-TR.

Malheureusement, avec les données expérimentales actuelles, nous ne pouvons pas répondre aux 2 questions posées ci-dessus qui sont :1) quel mécanisme physique permet d'expliquer l'augmentation du rapport de désaimantation dans le cas du Dy ? 2) Pourquoi un processus similaire n'a-t-il pas été observé pour le sous réseau de Co ?

## IV.4. Conclusions et ouvertures

La première conclusion de cette étude est que les dynamiques de désaimantation, c'est à dire les temps caractéristiques et les amplitudes de désaimantation de chaque sous réseau, sont les mêmes pour  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$  ou  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$  dans l'alliage CoDy. La température de compensation n'a donc pas d'influence sur la désaimantation ultrarapide dans les alliages CoDy.

La deuxième conclusion est que le rapport de désaimantation  $D$ , qui représente la capacité ou l'efficacité du sous réseau à évacuer leurs moments angulaires est identique pour le sous réseau de Co et de Dy lorsque  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$ .

La troisième, et dernière conclusion est que  $D$  augmente pour le Dy lorsque  $T_{\text{éq}} < T_{\text{comp}}$  par rapport au cas où  $T_{\text{éq}} > T_{\text{comp}}$  alors que celui du Co reste le même. Cela signifie que les TR évacuent mieux le moment angulaire vers l'extérieur que les MT.

À l'heure actuelle et à notre connaissance aucun modèle théorique ne permet d'expliquer l'augmentation du rapport de désaimantation de la TR.

Afin de compléter cette étude, nous souhaitons mesurer l'influence de  $T_{\text{comp}}$  pour d'autres alliages MT-TR. De plus, le développement d'une nouvelle chambre expérimentale avec un champ magnétique pouvant atteindre 2 T sur la ligne UE-56ZPM du synchrotron BESSY II nous permettra de réaliser cette étude sur un seul échantillon tout en ayant une valeur de  $T_C - T_{\text{éq}}$  relativement proche.







# V. Désaimantation ultrarapide induite par des électrons chauds dans les alliages $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ et $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$

Les chapitres III et IV de ma thèse étudient les dynamiques ultrarapides de l'aimantation lorsque l'impulsion laser excitatrice est directement absorbée dans le matériau magnétique. Dans ce chapitre j'étudie l'influence de la nature de l'excitation sur la dynamique de désaimantation des TR et des MT dans différents alliages MT-TR. Les alliages étudiés sont  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  et  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ .

En 2013, Eschenlohr et al. [69] étudient pour la première fois les désaimantations ultrarapides induites par des électrons chauds dans un film de Ni. Ils utilisent un échantillon muni d'une couche de protection d'Au de 30 nm d'épaisseur (capping), qui est censé absorber tous les photons IR de la pompe et générer une impulsion excitatrice d'électrons chauds. Ils constatent que les électrons chauds générés par le laser de pompe induisent également des désaimantations ultrarapides. En comparant les désaimantations induites par les photons IR et les impulsions d'électrons chauds les auteurs constatent quelques différences : le temps correspondant au début de la désaimantation est décalé d'une centaine de fs, le temps caractéristique de désaimantation augmente et pour avoir la même amplitude de désaimantation la fluence laser doit être supérieure. Cependant il est avéré que malgré le capping d'Au de 30 nm, une partie non négligeable des photons IR sont absorbés dans le film de Ni [169,170]. Cela signifie que le film de Ni est excité par les photons IR et par les électrons chauds. Ceci complique l'interprétation des données. Trois articles publiés en 2016 [106-108] s'intéressent aux désaimantations induites par des impulsions d'électrons chauds et également aux propriétés de transport de ces électrons chauds dans différents matériaux. Vodungbo et al. [108] étudient la désaimantation ultrarapide d'une multicouche de Co/Pd possédant un capping de 40 nm d'Al. Les auteurs s'assurent que le pourcentage de photons transmis au travers du capping est bien inférieur à 1 %. En comparant la désaimantation induite par les photons à celle induite par les électrons chauds ils observent, comme dans l'article d'Eschenlohr et al. [69], un décalage temporel du début de désaimantation relié au temps de propagation des électrons chauds jusqu'au film magnétique, une augmentation du temps caractéristique reliée à l'augmentation de la durée temporelle de l'impulsion excitatrice et à la propagation de l'excitation dans le matériau magnétique ainsi qu'une diminution de l'amplitude de désaimantation reliée à des pertes d'énergies. Une étude plus complète a été réalisée plus récemment par Bergeard et al. [107]. Les auteurs étudient les désaimantations induites par des électrons chauds sur une multicouche magnétique de Co/Pt possédant un capping de Pt de 3 nm augmenté d'une couche de Cu dont ils font varier l'épaisseur. Ils montrent qu'entre 0 et 300 nm d'épaisseur de Cu le décalage temporel de désaimantation ainsi que l'augmentation du temps caractéristique de la désaimantation est proportionnel à l'épaisseur du capping de Cu. Ces résultats sont en accord avec l'interprétation suivante : le décalage temporel est lié au temps de propagation de l'excitation jusqu'au matériau magnétique et l'augmentation du

temps caractéristique de la désaimantation est liée à l'augmentation de la durée de l'impulsion excitatrice ainsi qu'au temps de propagation de l'excitation dans le matériau magnétique. Tous ces articles étudient la désaimantation ultrarapide dans des métaux 3d. Mais que se passe-t-il pour une TR, dont le moment magnétique provient principalement de la bande 4f, lorsque celle-ci est excitée par des électrons chauds ? C'est pour répondre à cette question que nous avons réalisé cette étude.

La suite de ce chapitre détaille: les empilements des échantillons, les mesures magnétiques statiques et les mesures dynamiques pour l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  puis pour l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ . Ces deux alliages magnétiques ont été choisis pour plusieurs raisons. La première est que les propriétés magnétiques statiques ont déjà été caractérisées. La deuxième est que des mesures tr-XMCD pour ces alliages ont déjà été réalisées lorsque ceux-ci sont excités par les photons IR du laser [71]. Il est donc possible de s'appuyer et de comparer nos résultats à des données déjà existantes. La troisième est de pouvoir comparer les résultats obtenus pour deux TR différentes. De plus, le temps caractéristique de désaimantation du Tb dans l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  est très court ( $\sim 280$  fs) [71] ce qui permet d'être plus sensible aux faibles changements du temps caractéristique de la désaimantation.

Une publication de ce travail vient d'être acceptée :

T. Ferté, N. Bergeard, L. G. Malinowski, R. Abrudan, T. Kachel, K. Holldack, M. Hehn, et C. Boeglin, "*Ultrafast hot-electrons induced quenching of Tb4f magnetic order*", sous presse, Physical Review B.

# V.1. Empilements des échantillons et justification des capping

## V.1.1. Empilements des échantillons des alliages $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ et $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$

Trois types d'empilements différents ont été conçus et élaborés pour les deux alliages magnétiques étudiés. La Figure V.1 et la Figure V.2 représentent les différents empilements constituant les échantillons pour l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  et  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  respectivement. Les couches en dessous des matériaux magnétiques ne sont pas présentées sur la Figure V.1 et la Figure V.2 (voir Chapitre II pour connaître les empilements complets). Le laser IR de pompe est représenté par la flèche rouge. Les rayons X de sonde, représentés par la flèche bleue, traversent l'intégralité de l'échantillon. C'est le nombre de rayons X transmis qui est mesuré. Tous les échantillons sont déposés sur des membranes de nitrure de silicium qui absorbe peu les rayons X. Pour les échantillons contenant l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  ( $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ ) les mesures pompe-sonde ont été réalisées avec un angle de  $0^\circ$  ( $30^\circ$ ) entre la direction de propagation des photons IR du laser et la normale à la surface des échantillons. Une telle configuration géométrique a été choisie pour l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  car le signal XMCD était légèrement supérieur.

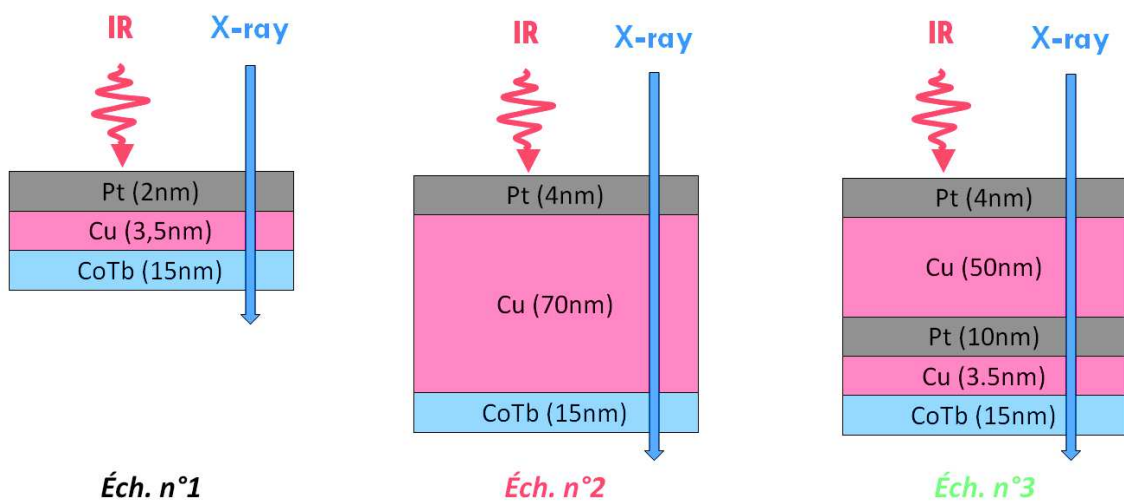


Figure V.1 : Schéma de l'empilement des différents échantillons (1 à 3) étudiés.

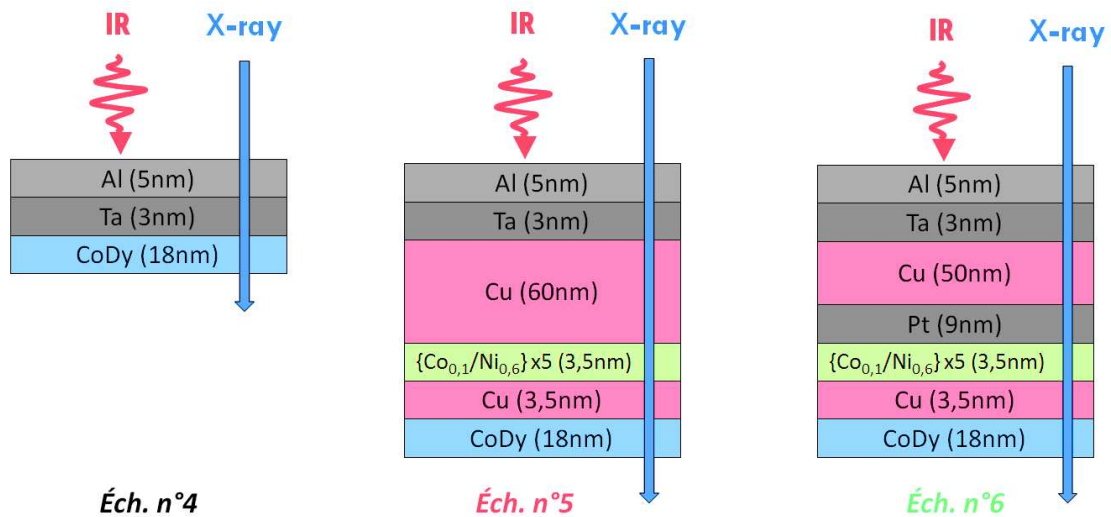


Figure V.2 : Schéma de l'empilement des différents échantillons (4 à 6) étudiés.

## V.1.2. Justification des capping

### V.1.2.1. Le choix du cuivre

Comme le montre la Figure V.1 et la Figure V.2, les capping épais pour l'échantillon n°2, n°3, n°5 et n°6 sont principalement constitués de cuivre. Le cuivre a été choisi pour 3 raisons. La première est que le libre parcours moyen des photons IR de pompe dans le Cu est de 10,3 nm [107]. Ainsi, pour une épaisseur de Cu de 50 nm la transmission des photons IR est de l'ordre de 1 % dans le film magnétique. La quasi-totalité des photons IR peuvent être bloqués avec des épaisseurs de Cu modérées. La deuxième raison est que la transmission des rayons X, aux seuils  $L_3$  du Co et  $M_5$  du Dy, dans le Cu est grande. Par exemple, elle est de plus de 70 % dans 50 nm [171]. Et la troisième raison est que le libre parcours moyen inélastique des électrons chauds est grand, environ 150 nm [107]. Ainsi, le Cu est un bon capping pour que les photons IR n'excitent pas directement le matériau magnétique, que la transmission des rayons X soit la plus grande possible et que les électrons chauds générés par l'impulsion laser se propagent sans trop de pertes.

Un modèle physique simple de décroissance exponentielle du pourcentage de photons IR dans les différents matériaux des capping permet de s'assurer que le nombre de photons IR qui arrivent dans le matériau magnétique est négligeable. Ce modèle repose sur des valeurs de libres parcours moyens résumées dans le Tableau V.1 ci-dessous. Comme les deux alliages magnétiques sont principalement constitués de Co et que je n'ai pas trouvé les valeurs des libres parcours moyens des photons IR dans du Tb et du Dy dans la bibliographie, j'ai considéré la valeur de libre parcours moyen des photons IR dans du Co pour les deux alliages magnétiques.

Tableau V.1 : Récapitulatif des valeurs du libre parcours moyen des photons IR dans différents matériaux constitutif des échantillons n°1 à n°6.

	Al	Ta	Pt	Cu	Co <sub>0,1</sub> /Ni <sub>0,6</sub>	Co (CoTb et CoDy)
$\lambda^{IR}$ (nm)	7,6 <sup>[a]</sup>	8,7 <sup>[a]</sup>	7,9 <sup>[a]</sup>	10,3 <sup>[b]</sup>	7,4 <sup>[a]</sup>	8,4 <sup>[a]</sup>

[a] : [172] [b] : [107]

Dans ce modèle, je considère qu'il y a 100 % des photons IR de pompe dans la première couche atomique du capping pour les échantillons n°1 à n°6. La Figure V.3 et la Figure V.4 représentent les différents échantillons dont le film magnétique est du Co<sub>74</sub>Tb<sub>26</sub> et du Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> respectivement. Ce modèle ne prend pas en compte la réflexion des photons IR sur les interfaces. L'échantillon n°3 possède 1 interface supplémentaire par rapport aux échantillons n°1 et n°2. Ainsi la valeur calculée du pourcentage de photons IR qui arrivent dans le film magnétique est surement surestimé par rapport aux échantillons n°1 et n°2. Pour les échantillons n°5 et n°6 la présence de la multicouche Co/Ni fait que leurs nombres d'interfaces est beaucoup plus grand (14 interfaces pour l'échantillon n°5 et 15 interfaces pour l'échantillon n°6) que celui de l'échantillon n°4 qui est de 2 interfaces. Ainsi les valeurs calculées du nombre de photons IR qui arrivent dans le film magnétique des échantillons n°5 et n°6 sont surement surestimées par rapport à l'échantillon n°4.

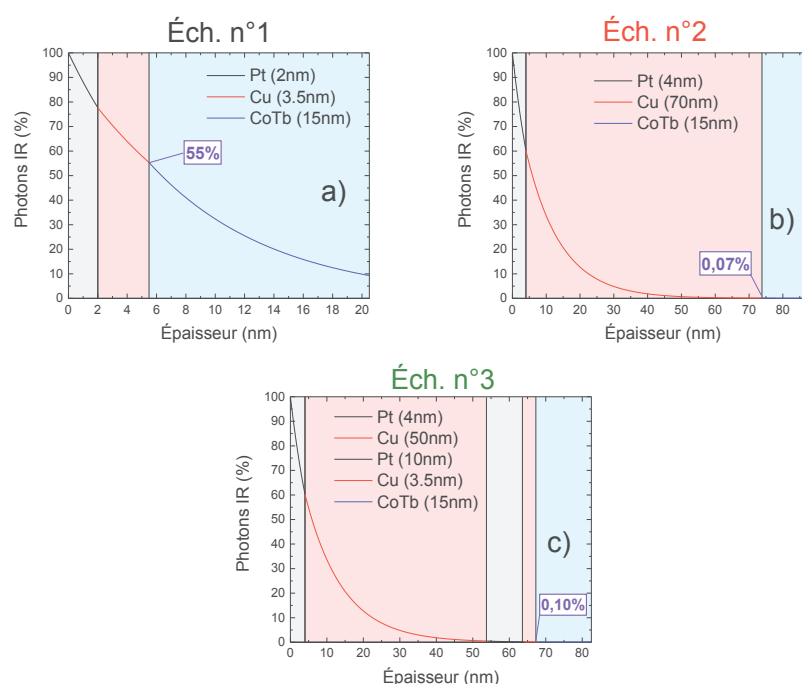


Figure V.3 : Pourcentage de photons IR calculé en fonction de l'épaisseur pour les échantillons n°1, n°2 et n°3 soit les graphiques a), b) et c) respectivement. Notez : les 3 graphiques ont différentes échelles pour l'axe x.

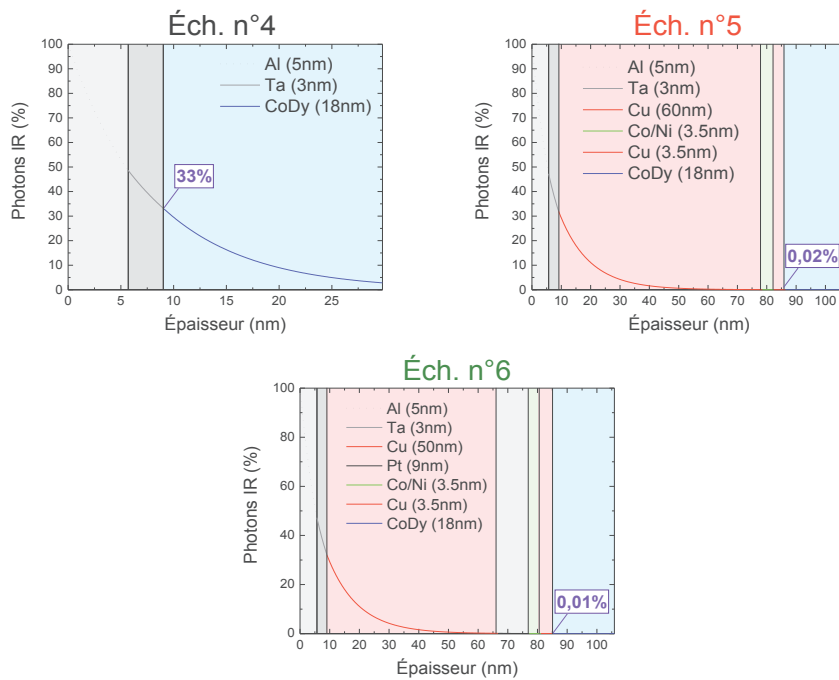


Figure V.4 : Pourcentage de photons IR calculé en fonction de l'épaisseur pour les échantillons n°4, n°5 et n°6 soit les graphiques a), b) et c) respectivement. Notez : les 3 graphiques ont différentes échelles pour l'axe x et les épaisseurs réelles sont différentes des épaisseurs traversées par les photons IR à cause d'un angle de 30° entre la direction de propagation des photons IR et la normale à la surface de l'échantillon lors des expériences pompe-sonde.

Le Tableau V.2 ci-dessous récapitule le nombre des photons IR qui arrivent dans les matériaux magnétiques pour les 6 échantillons. Le modèle, qui ne tient pas compte des réflexions sur les interfaces, permet de considérer que l'excitation du film magnétique par les photons IR est négligeable pour les échantillons n°2, n°3, n°5 et n°6 et qu'il n'y a donc pas d'excitation directe des films magnétiques par les photons IR.

Tableau V.2 : Récapitulatif des pourcentages de photons IR arrivant dans les films magnétiques  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  et  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ .

Alliages magnétiques	$\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$			$\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$		
	Éch. n°1	Éch. n°2	Éch. n°3	Éch. n°4	Éch. n°5	Éch. n°6
Photons IR	55%	0,07%	0,1%	33 %	0,02 %	0,01 %

### V.1.2.2. L'ajout de Pt et de Co/Ni

Les échantillons n°5 et n°6 possèdent en plus une multicouche de  $\text{Co}(0,1\text{nm})/\text{Ni}(0,6\text{nm})$  de 5 répétitions car les structures des échantillons de  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  ont été élaborées pour une étude différente. Cette étude avait pour but d'étudier l'influence de la polarisation en spin des électrons chauds sur la désaimantation. Cette étude n'a malheureusement pas pu aboutir pour l'instant. Mais les résultats partiels obtenus restent intéressants et permettent de compléter cette étude sur la

désaimantation ultrarapide induite par des électrons chauds. Il est à noter que l'orientation magnétique de la multicouche Co/Ni est toujours parallèle à celle de la couche magnétique de CoDy lors des expériences pompe-sonde. La multicouche Co/Ni va donc polariser en spin les électrons chauds. Pour les échantillons n°2 et n°3 les électrons chauds ne seront pas polarisés en spin.

Comme nous l'avons vu précédemment tous les photons IR vont être absorbés dans le capping des échantillons n°2, n°3 n°5 et n°6. Les photons IR vont générer des électrons chauds, dont la distribution électronique est hors équilibre par rapport à la distribution de Fermi-Dirac, qui vont se propager de manière superdiffusive [56] (voir Figure V.5 [173]) à une vitesse proche de la vitesse de Fermi du matériau considéré. Dans le Cu, cette vitesse est de 0,68 nm/fs [107]. Dans le Co, cette vitesse est de 0,25 nm/fs [174]. Dans les échantillons n°3 et n°6 nous avons ajouté une couche de Pt entre la couche épaisse de Cu et le matériau magnétique pour bloquer les électrons chauds hors équilibre. Comme le libre parcours moyen inélastique des électrons chauds hors équilibre dans le Pt est d'environ 5 nm [175] alors une couche de Pt de 9-10 nm va en absorber environ 85 %. Ces électrons chauds hors équilibre sont thermalisés avec les électrons du Pt. Ces électrons chauds thermalisés ont alors une distribution de type Fermi-Dirac (voir Figure V.6) et se déplacent de manière diffusive. Ces électrons chauds thermalisés se propagent avec une vitesse d'environ 0,1 nm/fs dans le Cu [7] et d'environ 0,01 nm/fs dans le Co et le Pt [173]. Cet ordre de grandeur de différence entre la vitesse de propagation des électrons chauds thermalisés dans le Cu et le Co se justifie par une masse effective des électrons d'environ 7,5 dans le Co [176] et de seulement 1 dans le Cu [177]

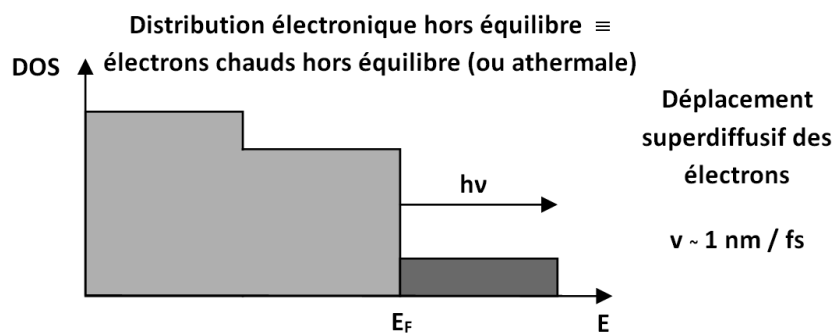


Figure V.5 : Schéma de la densité d'état en fonction de l'énergie des électrons. Le laser entraîne une distribution hors équilibre (ou athermale) des électrons chauds superdiffusifs.



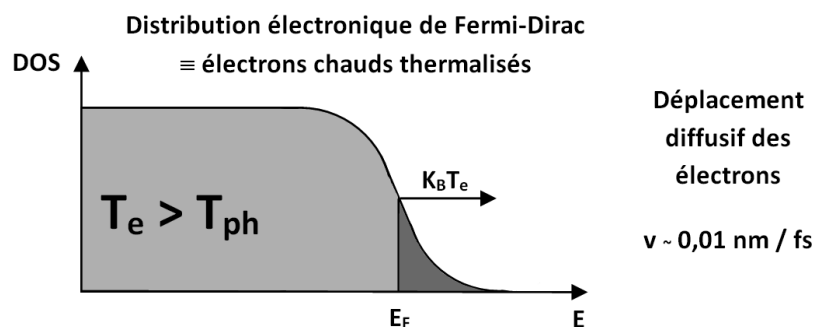


Figure V.6 : Schéma de la densité d'état en fonction de l'énergie des électrons. Lorsque les électrons sont thermalisés entre eux, c'est à dire qu'ils suivent une distribution de Fermi-Dirac, ils se propagent de manière diffusif. La température des électrons ( $T_e$ ) est supérieure à la température des phonons ( $T_{ph}$ ), c'est à dire du réseau.

Un modèle physique simple de décroissance exponentielle du pourcentage d'électrons chauds hors équilibre dans les différents matériaux des capping permet de vérifier que ce pourcentage qui arrive dans le matériau magnétique des échantillons n°3 et n°6 est faible comparé à celui des échantillons n°2 et n°5. Ce modèle ne prend pas en compte les réflexions aux interfaces. Ainsi, plus le nombre d'interfaces est grand, plus ce pourcentage calculé risque d'être surestimé. Ce model repose sur les valeurs du libre parcours moyen inélastique des électrons chauds hors équilibre dans différents matériaux résumé dans le Tableau V.3 ci-dessous.

Tableau V.3 : Récapitulatif des valeurs du libre parcours moyen des électrons balistiques dans différents matériaux constitutifs des échantillons n°2, n°3, n°5 et n°6.

	Pt	Cu	Co <sub>0,1</sub> /Ni <sub>0,6</sub>	Co (CoTb et CoDy)
$\lambda^e$ (nm)	5 <sup>[b]</sup>	150 <sup>[a]</sup>	3,7 <sup>[b,c]</sup>	3 <sup>[c]</sup>

[a] : [107] [b] : [175] [c] : [178]

Pour pouvoir comparer l'échantillon n°2 avec le n°3 je considère qu'il y a 100 % électrons chauds hors équilibre à 54 nm de la surface (voir Figure V.7). Je ne prends pas en compte ce qui se passe dans les premiers 54 nm de matière des échantillons n°2 et n°3 car ils sont identiques.

Pour pouvoir comparer l'échantillon n°5 avec le n°6 je considère qu'il y a 100 % électrons chauds hors équilibre à 58 nm de la surface (voir Figure V.8). Je ne prends pas en compte ce qui se passe dans les premiers 58 nm de matière des échantillons n°5 et n°6 car ils sont identiques.

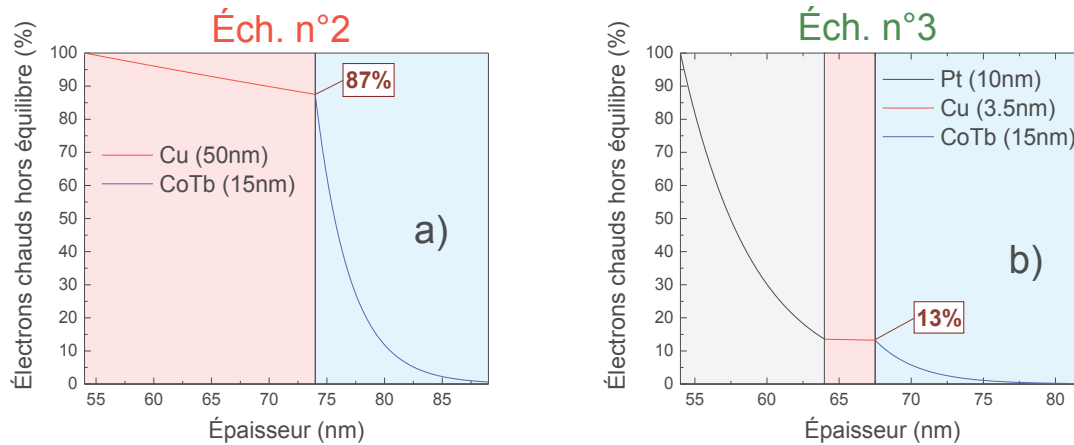


Figure V.7 : Pourcentage d'électrons chauds hors équilibre calculé en fonction de l'épaisseur pour l'échantillon n°2 et n°3 soit les graphiques a) et b) de l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ .

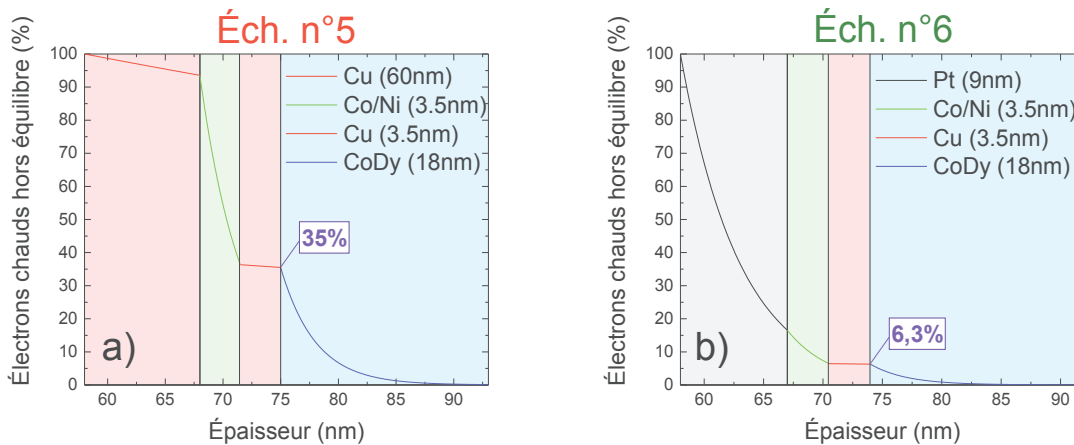


Figure V.8 : Pourcentage d'électrons chauds hors équilibre calculé en fonction de l'épaisseur pour l'échantillon n°5 et n°6 soit les graphiques a) et b) de l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ .

La Figure V.7 montre que pour l'échantillon n°2 il y a 87 % d'électrons chauds hors équilibre qui arrivent dans le film magnétique. La totalité des 87 % des électrons chauds hors équilibre y seront absorbés. Nous constatons que le film magnétique est excité de manière très inhomogène. Pour l'échantillon n°3 il y a 13 % des électrons chauds hors équilibre qui atteignent le film magnétique. La totalité des 13 % des électrons chauds hors équilibre y seront absorbés de manière inhomogène également. Le rapport du pourcentage du nombre d'électrons chauds hors équilibre qui arrivent dans le film magnétique de l'échantillon n°2 sur l'échantillon n°3 est de :  $87 / 13 = 6,7$ . Il y a donc 6,7 fois plus d'électrons chauds hors équilibre qui arrivent jusqu'au matériau magnétique ( $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ ) pour l'échantillon n°2 que n°3. En réalité ce rapport doit être plus grand car le nombre d'interfaces est plus grand pour l'échantillon n°3 que pour le n°2.

La Figure V.8 montre que pour l'échantillon n°5 il y a 35 % d'électrons chauds hors équilibre qui arrivent dans la couche magnétique. La totalité des 35 % des électrons chauds hors équilibre y

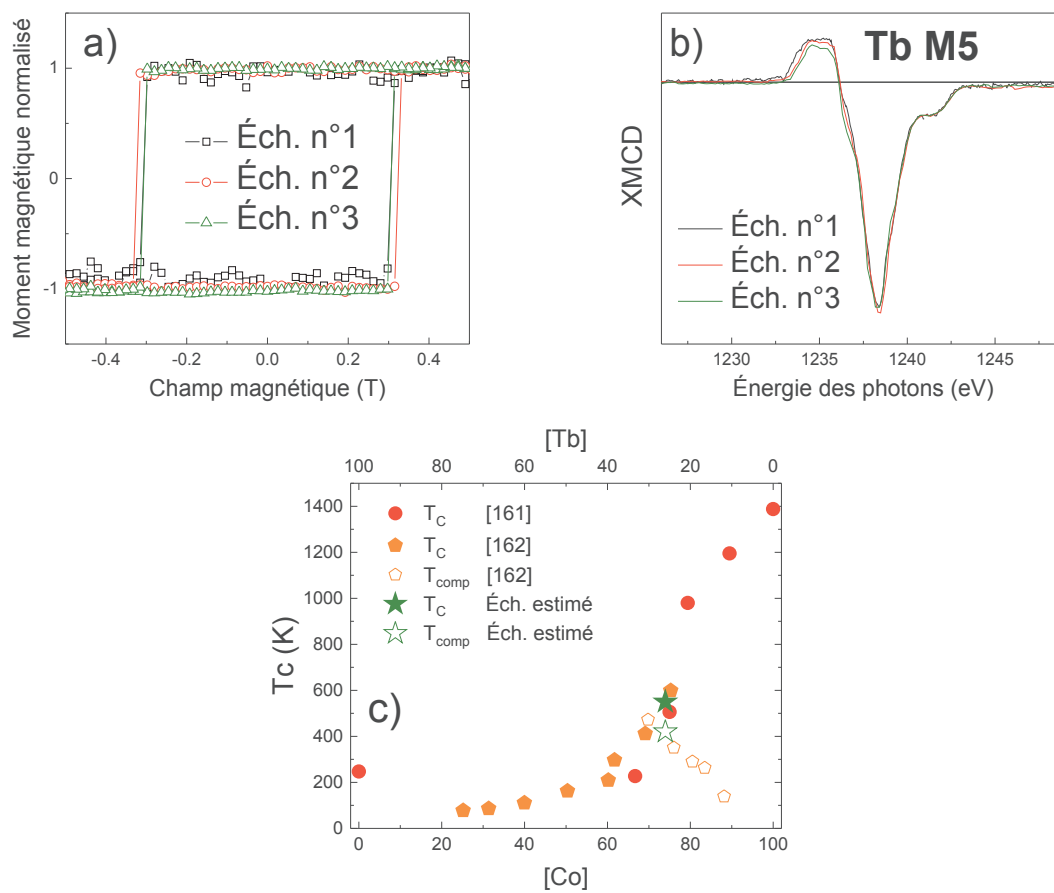
seront absorbés de manière inhomogène. Pour l'échantillon n°6 il y a 6,3 % des électrons chauds hors équilibre qui atteignent le film magnétique. La totalité des 6,3 % des électrons chauds hors équilibre y seront absorbés de manière inhomogène également. Le rapport du pourcentage du nombre d'électrons chauds hors équilibre qui arrivent dans le film magnétique de l'échantillon n°5 sur l'échantillon n°6 est de :  $35 / 6,3 \approx 5,6$ . Il y a donc 5,6 fois plus d'électrons chauds hors équilibre qui arrivent dans le matériau magnétique ( $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ ) pour l'échantillon n°5 que n°6. En réalité ce rapport doit être plus grand car le nombre d'interface est plus grand pour l'échantillon n°6 que pour le n°5. De plus, les valeurs calculées doivent être surestimées car le nombre d'interfaces est grand dans les échantillons n°5 et n°6.

L'ajout de Pt dans les échantillons n°3 et n°6 permet de réduire le nombre d'électrons chauds hors équilibre en les thermalisant et génère des électrons chauds thermalisés. Cependant, le modèle des décroissances exponentielles montre que pour les échantillons n°3 et n°6 il y a encore 13 % et 6,3 % des électrons chauds hors équilibre qui arrivent jusqu'au film magnétique. Même si ces valeurs sont faibles par rapport aux échantillons n°2 et n°5, pouvons-nous négliger leur rôle dans la désaimantation ultrarapide ? Une réponse à cette question est trouvée en analysant les mesures de la désaimantation ultrarapide des différents échantillons (voir partie V.3.2 et V.3.4).

## V.2. Caractérisations magnétiques statiques des alliages $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ et $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$

### V.2.1. Caractérisations magnétiques statiques de l'alliage $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$

L'alliage magnétique  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  a été déposé sur les 3 échantillons différents ( $n^{\circ}1$ ,  $n^{\circ}2$  et  $n^{\circ}3$ ) en même temps et doit donc être identique. Afin de s'en assurer des mesures des cycles d'hystérésis (voir graphique a) de la Figure V.9) et des spectres XMCD (voir graphique b) de la Figure V.9) ont été réalisées pour les 3 échantillons ( $n^{\circ}1$ ,  $n^{\circ}2$  et  $n^{\circ}3$ ) sur la chambre d'expérience ALICE sur la ligne PM3 du synchrotron BESSY II. Les mesures ont été effectuées à 300K. Les 3 échantillons possèdent une anisotropie magnétique hors plan et un taux de transmission des rayons X d'environ 20 % au seuil  $L_3$  du Co et  $M_5$  du Tb. Les cycles d'hystérésis sont très similaires pour les trois échantillons. Leur champ coercitif ( $H_C$ ) est d'environ 0,32 T. Les spectres XMCD des 3 échantillons sont également très similaires. Ces mesures confirment que les propriétés magnétiques de l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  des 3 échantillons ( $n^{\circ}1$ ,  $n^{\circ}2$  et  $n^{\circ}3$ ) sont identiques. Le graphique c) de la Figure V.9 représente la  $T_C$  en fonction de la concentration de l'alliage CoTb. Les points bleus sont extraits de l'article de Duc et al. [161], les points orange pleins et creux sont extraits de l'article de Hansen et al. [162] et les étoiles vertes pleines et creuses sont les estimations de la  $T_C$  et de la  $T_{\text{comp}}$  de l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  qui vaut 550 K et 420 K respectivement.



## V.2.2. Caractérisations magnétiques statiques de l'alliage Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub>

Toutes les propriétés magnétiques statiques de l'alliage Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> sont présentées dans le chapitre IV. Pour résumer, l'aimantation de l'alliage Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> est saturable hors du plan, son cycle d'hystérésis a une forme carrée, sa T<sub>C</sub> est estimée à 760 K et sa T<sub>comp</sub> vaut 219 K. L'alliage magnétique Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> a été déposé sur les 3 échantillons différents (n°4, n°5 et n°6) en même temps et nous pouvons considérer, comme les mesures de l'alliage Co<sub>74</sub>Tb<sub>26</sub> précédentes le montrent, que l'alliage Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> est identique pour les échantillons n°4, n°5 et n°6. Une mesure du cycle d'hystérésis au seuil L<sub>3</sub> du Co pour l'échantillon n°5 est représentée sur la Figure V.10. Deux cycles d'hystérésis sont mesurés : un lié à l'alliage Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> et dont le champ coercitif est de 0,23 T et l'autre lié à la multicouche de Co/Ni et dont le champ coercitif est très faible (quelques Oe). Cela indique que lorsque nous appliquons un champ magnétique extérieur de 0,55 T, comme pendant les expériences pompe-sonde, l'alliage Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> et la multicouche de Co/Ni sont saturés dans la même direction, celle du champ magnétique appliqué. La configuration magnétique du CoDy et du Co/Ni est donc parallèle lors de toutes les mesures pompe-sonde.

Grâce à ce cycle d'hystérésis il est possible de quantifier le signal magnétique (XMCD) provenant de la multicouche par rapport à l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  en divisant la variation de signal XMCD provenant de la multicouche  $\text{Co}/\text{Ni}$  sur celle provenant de l'alliage  $\text{CoDy}$ . Ainsi, environ 4,5 % du signal XMCD total provient de la multicouche  $\text{Co}/\text{Ni}$ . Donc, lors des mesures pompe-sonde au seuil  $L_3$  du  $\text{Co}$  nous mesurerons à la fois le  $\text{Co}$  dans l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  et le  $\text{Co}$  de la multicouche  $\text{Co}/\text{Ni}$  à hauteur de 4,5 % du signal total. Au regard du bruit statistique de nos mesures pompe-sonde nous pouvons considérer que le signal provenant de la multicouche  $\text{Co}/\text{Ni}$  est négligeable.

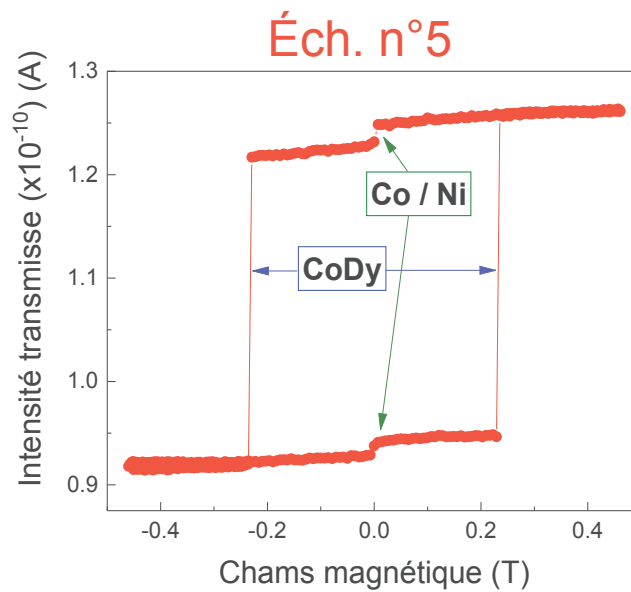


Figure V.10 : Cycle d'hystérésis au seuil  $L_3$  du  $\text{Co}$  de l'échantillon n°5 à 300 K et avec un angle de  $30^\circ$  entre la direction de propagation des rayons X et la normale à la surface.

## V.3. Désaimantation ultrarapide dans l'alliage $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ et $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$

### V.3.1. Désaimantation ultrarapide des électrons 4f du Tb dans l'alliage $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$

Cette partie présente les mesures des désaimantations ultrarapides des électrons 4f du Tb dans les 3 échantillons (n°1, n°2 et n°3) vu précédemment. Les mesures de tr-XMCD sont réalisées grâce à la chambre Femtoslicing de transmission des rayons X. La Figure V.11 présente les mesures tr-XMCD au seuil  $M_5$  du Tb. Les carrés noirs correspondent à l'échantillon n°1 qui est excité directement par les photons IR du laser de pompe. Les carrés noirs pleins et creux correspondent au même alliage magnétique. Les carrés noirs pleins ont été mesurés pendant la même session d'expérience que les échantillons n°2 et n°3. Cette mesure permet de définir le temps 0 comme étant le début de la désaimantation d'un échantillon excité directement par les photons IR de la pompe. Pour cette mesure la fluence laser était de  $6 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  et la température d'équilibre pendant la mesure d'environ 300 K. La statistique de cette mesure n'étant pas très élevée, les données sont bruiteuses. Afin de comparer précisément les dynamiques de désaimantation pour les 3 échantillons (n°1, n°2 et n°3) nous nous appuyons sur la mesure provenant de l'article de López-Flores et al. [71] (les carrés creux) qui possède une bonne statistique ce qui permet d'extraire un temps caractéristique de désaimantation avec une faible barre d'erreurs. Pour l'échantillon n°1 (carrés creux) l'amplitude de désaimantation est d'environ  $70 \pm 5 \%$  et le temps caractéristique vaut  $280 \pm 30 \text{ fs}$  [71]. La température d'équilibre pendant la mesure est d'environ 400 K. Les cercles rouges correspondent à l'échantillon n°2 qui est excité indirectement par les électrons chauds hors équilibre. Pour cette mesure la fluence laser est de  $18 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  et la température d'équilibre est d'environ 350 K. La fluence laser a été multipliée par 3 entre l'échantillon n°1 excité directement et l'échantillon n°2 et n°3 excités indirectement. La mesure, pour l'échantillon n°2, montre : un décalage temporel du début de désaimantation de  $250 \pm 200 \text{ fs}$ , une amplitude de désaimantation de  $52 \pm 8 \%$  et un temps caractéristique de désaimantation de  $350 \pm 100 \text{ fs}$ . Sur cette échelle temporelle de la mesure (environ 6 ps) aucune ré-augmentation de l'aimantation suite à la désaimantation ultrarapide n'est observée. Les triangles verts correspondent à l'échantillon n°3 qui est excité indirectement par des électrons chauds thermalisés. Pour cette mesure la fluence laser est de  $18 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  et la température d'équilibre est d'environ 350 K. Les échantillons n°2 et n°3 sont excités avec la même puissance laser et donc la même fluence. La mesure, pour l'échantillon n°3, montre : un décalage temporel du début de désaimantation de  $300 \pm 200 \text{ fs}$ , une amplitude de désaimantation de  $36 \pm 6 \%$  et un temps caractéristique de désaimantation de  $1,2 \pm 0,4 \text{ ps}$ . Comme pour l'échantillon n°2 aucune ré-augmentation de l'aimantation n'est observée sur cette gamme temporelle. Le Tableau V.4 est un récapitulatif des conditions expérimentales ainsi que des valeurs des amplitudes de désaimantation, des décalages temporels et des temps caractéristiques de désaimantation.

# Tb M<sub>5</sub>

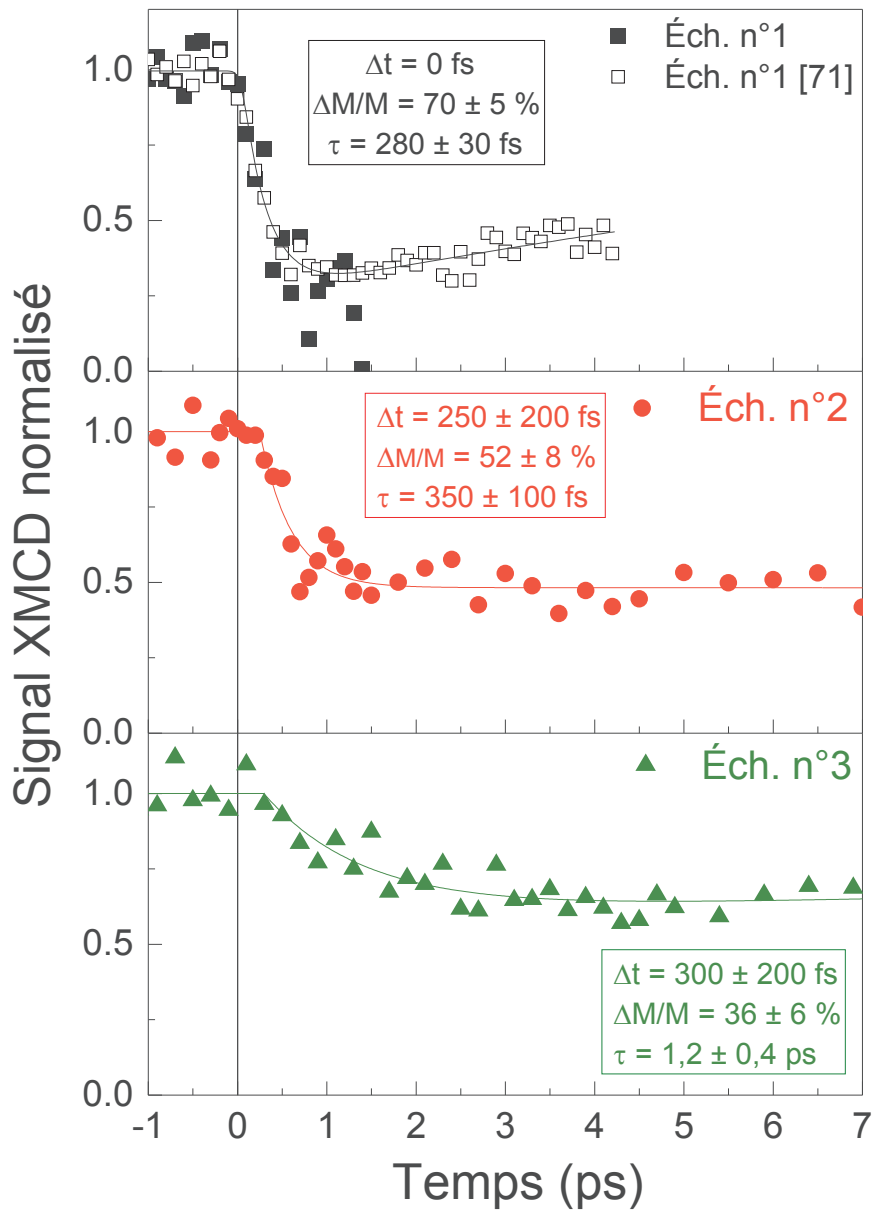


Figure V.11 : tr-XMCD au seuil M<sub>5</sub> du Tb normalisées pour les échantillons n°1 (F=6mJ/cm<sup>2</sup>), n°2 (F=18mJ/cm<sup>2</sup>) et n°3(F=18mJ/cm<sup>2</sup>). Les données expérimentales sont ajustées grâce à une fonction exponentielle décroissante avec ou sans exponentielle de rétablissement de l'aimantation (voir Annexe C).



Tableau V.4 : Récapitulatif des conditions expérimentales et des valeurs significatives de la désaimantation ultrarapide des 3 échantillons  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  (n°1, n°2 et n°3).

Élément	Échantillon $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$	$T_{\text{éq}}$ (K)	Fluence ( $\text{mJ}/\text{cm}^2$ )	Amplitude de désaimantation (%)	Décalage temporel de désaimantation (ps)	Temps caractéristique de désaimantation (ps)
Tb	n°1	~300	6	~80	0	--
Tb	n°1 [71]	~400 *	~6 *	$70 \pm 5$ *	0 *	$0,28 \pm 0,03$ *
Tb	n°2	~350	18	$52 \pm 8$	$0,25 \pm 0,2$	$0,35 \pm 0,1$
Tb	n°3	~350	18	$36 \pm 6$	$0,3 \pm 0,2$	$1,2 \pm 0,4$

### V.3.2. $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ : interprétations et discussions

Dans cette partie je vais interpréter et discuter les résultats obtenus concernant les désaimantations ultrarapides des électrons 4f du Tb dans l'alliage  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ . Je commencerai par l'interprétation des décalages temporels de la désaimantation, puis celle des amplitudes de désaimantation et enfin par celle des temps caractéristiques de désaimantation.

#### V.3.2.1. Les décalages temporels des désaimantations

Les décalages temporels du début de la désaimantation sont liés au temps de propagation de l'excitation dans l'échantillon jusqu'à la couche magnétique. Par définition, un échantillon excité directement par les photons IR de la pompe (échantillon n°1) possède un décalage temporel de la désaimantation nul, c'est à dire de 0 fs. Les mesures expérimentales montrent que les échantillons n°2 et n°3 possèdent des décalages temporels de la désaimantation de  $250 \pm 200$  fs et  $300 \pm 200$  fs respectivement. Les barres d'erreurs de ces mesures sont grandes par rapport aux valeurs des décalages. En s'appuyant sur différents articles [7,107,173,174] il est possible d'estimer le décalage temporel pour les échantillons n°2 et 3.

**Pour l'échantillon n°2 :** d'après l'article de Bergeard et al. [107] un capping de Pt(4nm)/Cu(70nm) induit un décalage temporel du début de désaimantation d'environ 120 fs. Ce décalage temporel est dû au temps de propagation de l'excitation, c'est à dire des électrons chauds hors équilibre, jusqu'au matériau magnétique étudié. La valeur de l'estimation est plus faible que le décalage temporel mesuré de  $250 \pm 200$  fs. Mais au vu des grandes barres d'erreurs sur la mesure expérimentale, l'estimation reste cohérente avec la mesure.

**Pour l'échantillon n°3 :** deux hypothèses sont possibles pour expliquer la valeur du décalage temporel mesuré qui est de  $300 \pm 200$  fs :

- La première hypothèse est que la barrière de Pt pour les électrons chauds hors équilibre est trop mince et que ceux-ci sont suffisamment nombreux à arriver jusqu'au film magnétique pour y induire une désaimantation. D'après Bergeard et al. [107], un capping Pt(4nm)/Cu(50nm) induit un décalage temporel de 85 fs auquel s'ajoute le temps de propagation dans le Pt(10nm), soit 40 fs [174], et dans le Cu(3,5nm), soit environ 5 fs. Le décalage temporel attendu au total est donc de 130 fs pour la première hypothèse. Cette valeur estimée est plus faible que le décalage temporel mesuré. Mais au vu des grandes barres d'erreurs sur la mesure, l'estimation reste cohérente avec la mesure.

- La deuxième hypothèse est que la barrière de Pt pour les électrons chauds hors équilibre est suffisamment épaisse pour que ceux-ci soit trop peu nombreux à arriver au film magnétique pour y induire une désaimantation. Ainsi, ce sont les électrons chauds thermalisés générés dans le Pt(10nm) qui vont induire la désaimantation. L'estimation est dans ce cas :

85 fs (temps de propagation des électrons chauds hors équilibre jusqu'au Pt(10nm)) +  $\sim 200$  fs (temps de thermalisation des électrons chauds dans le Pt [179]) + 35 fs (temps de propagation des électrons chauds thermalisés dans le Cu(3,5nm)) =  $\sim 320$  fs.

La valeur de cette estimation est proche de la mesure expérimentale de  $300 \pm 200$  fs.

Ainsi la valeur du décalage temporel estimé dans la deuxième hypothèse est plus en accord avec la mesure expérimentale. Cependant, les barres d'erreurs du décalage temporel étant grandes il n'est pas possible de conclure de manière définitive en faveur de la première ou de la deuxième hypothèse. Donc l'analyse du décalage temporel ne permet pas de conclure sur la nature de l'excitation du film magnétique de l'échantillon n°3.

### V.3.2.2. Les amplitudes de désaimantations

**Pour l'échantillon n°1 :** la fluence laser est de  $6 \text{ mJ/cm}^2$  et le matériau magnétique est excité directement par les photons IR du laser de pompe. L'amplitude de désaimantation est d'environ 80 %. Le graphique a) de la Figure V.3 montre que toute l'épaisseur (15 nm) du film magnétique de  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  est excitée par les photons IR.

**Pour l'échantillon n°2 :** la fluence laser de la pompe a été multipliée par 3 par rapport à l'échantillon n°1. L'amplitude de désaimantation vaut 52 %. Malgré la multiplication par 3 de la fluence laser l'amplitude de désaimantation de l'échantillon n°2 est plus faible que celle de l'échantillon n°1. Plusieurs origines sont possibles pour comprendre cette diminution de l'amplitude de désaimantation:

-Une première origine est l'absorption d'une partie des électrons chauds hors équilibre dans les couches Pt(4nm)/Cu(70nm). En effet, en considérant le libre parcours moyen inélastique des

électrons chauds hors équilibre dans le Pt et le Cu et que 100 % des électrons chauds hors équilibre sont générés dans la première monocouche atomique du Pt (4nm) alors seulement 30 % des électrons chauds hors équilibre arriveront jusqu'à la dernière monocouche atomique du Cu (70nm).

- Une deuxième origine est la réflexion des électrons sur les différentes interfaces.

-Une troisième origine concerne la direction de propagation des électrons chauds hors équilibre. L'article de Turgut et al. [67] montre que les courants ultrarapides de spin sont directionnels et qu'ils se propagent préférentiellement vers la zone de l'échantillon moins excitée. Malheureusement il n'est pas possible de quantifier cet effet. Mais cela reste une possibilité pouvant expliquer partiellement la diminution d'amplitude de désaimantation.

-Une quatrième origine concerne l'excitation non homogène du film magnétique suivant son épaisseur. Le graphique a) de la Figure V.7 montre que la majeure partie des électrons chauds hors équilibre cèdent une partie de leur énergie dans les 5 premiers nm de la couche magnétique de  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ . En mesurant les rayons X transmis nous sondons l'intégralité de l'épaisseur de la couche magnétique et l'amplitude de désaimantation est donc moyennée. Une répartition non homogène de l'énergie excitatrice peut tendre à diminuer l'amplitude de désaimantation mesurée.

**Pour l'échantillon n°3 :** l'amplitude de désaimantation est de 36 %. Comme pour l'échantillon n°2, plusieurs origines sont possibles pour comprendre cette diminution de l'amplitude de désaimantation:

- La première origine donnée pour l'échantillon n°2, de l'absorption d'une partie des électrons chauds hors équilibre générés, peut être reprise pour l'échantillon n°3.

-La deuxième origine concernant les réflexions aux interfaces donnée pour l'échantillon n°2 peut également être reprise. Il est à noter que le nombre d'interface de l'échantillon n°3 est supérieur à celui de l'échantillon n°2. Cela peut expliquer partiellement ou totalement la différence d'amplitude de désaimantation entre le échantillon n°2 (52 %) et n°3 (36 %).

- La troisième origine concernant la direction de propagation de l'excitation peut être reprise également mais il faut considérer en plus les électrons chauds thermalisés qui peuvent se propager vers le film magnétique mais également vers la surface de l'échantillon. Ce dernier point peut également expliquer, partiellement ou totalement, la différence d'amplitude de désaimantation entre l'échantillon n°2 et n°3.

- La quatrième origine concernant l'excitation non homogène du film magnétique suivant l'épaisseur peut être utilisée pour l'échantillon n°3 en considérant cette fois les électrons chauds thermalisés.

Ainsi nous avons discuté les différentes origines possibles pouvant expliquer la diminution de l'amplitude de désaimantation pour les échantillons n°2 et n°3 comparés à l'échantillon n°1.

### V.3.2.3. Les temps caractéristiques des désaimantations

**Pour l'échantillon n°1 :** la mesure (carrés noirs pleins de la Figure V.11) ne possède pas un nombre de points et une statistique suffisants pour extraire un temps caractéristique de désaimantation précis. Ainsi pour la discussion des temps caractéristiques de désaimantation je vais m'appuyer sur la mesure de López-Flores et al. [71] pour laquelle l'échantillon n°1 a un temps caractéristique de désaimantation de  $280 \pm 30$  fs.

**Pour l'échantillon n°2 :** le temps caractéristique de désaimantation est de  $350 \pm 100$  fs. Les temps caractéristiques de désaimantation de l'échantillon n°1\* et n°2 sont très proches au vu des barres d'erreurs. Il semble tout de même être plus grand pour l'échantillon n°2 excité via des électrons chauds hors équilibre. Selon notre interprétation cette augmentation a 2 origines possibles :

- La première origine est une élongation de l'impulsion excitatrice [107]. En effet, pour l'échantillon n°1 l'impulsion de photons IR excitatrice à une longueur d'environ 60 fs. Pour l'échantillon n°2 comme les électrons chauds hors équilibre ne sont pas tous générés au même endroit dans l'échantillon, l'impulsion excitatrice aura une durée temporelle plus longue. Cette augmentation est quantifiable en s'appuyant sur le graphique b) de la Figure V.3 et en considérant 2 électrons chauds hors équilibre générés par l'impulsion laser dans la couche de Cu (70 nm) qui se propagent à 0,68 nm/fs en direction du film magnétique. Ces deux électrons vont représenter le début et la fin de l'impulsion excitatrice des électrons chauds hors équilibre. Le premier est généré à une profondeur de 35 nm dans l'échantillon à un temps "t" et le deuxième est généré à une profondeur de 5 nm dans l'échantillon à un temps "t + 60 fs". Cela conduit à une durée de l'impulsion d'électrons chauds hors équilibre d'environ :

$$30 \text{ (nm)} / 0,68 \text{ (nm/fs)} + 60 \text{ (fs)} \approx 100 \text{ fs.}$$

Cette estimation de l'élongation de 40 fs de l'impulsion des électrons chauds hors équilibre par rapport à l'impulsion des photons IR est en accord avec la mesure de l'augmentation du temps caractéristique de la désaimantation réalisée dans l'article de Bergeard et al. [107].

- La deuxième origine possible est le temps de propagation de l'excitation dans la couche magnétique. L'excitation transmise par les électrons chauds hors équilibre mettra environ 60 fs à la vitesse de 0,25 nm/fs [174] pour atteindre la dernière monocouche atomique du film de  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  de 15 nm d'épaisseur.

**Pour l'échantillon n°3 :** le temps caractéristique de désaimantation est de  $1,2 \pm 0,4$  ps. Il est donc beaucoup plus important, environ 4 fois, que celui de l'échantillon n°1\* et n°2. Selon notre interprétation cette augmentation a 2 origines possibles :

- La première origine est une élongation de l'impulsion excitatrice. Comme pour l'échantillon n°2, la génération des électrons chauds hors équilibre entraîne une augmentation de la durée de l'impulsion excitatrice de 40 fs. Mais il y a en plus une élongation liée à la thermalisation des

électrons chauds dans le Pt(10nm). Cette élancement est par ailleurs quantifiable en se référant au graphique b) de la Figure V.7 et en considérant 2 électrons chauds thermalisés générés par l'impulsion d'électrons chauds hors équilibre dans la couche de Pt (10 nm) qui se propagent à 0,01 nm/fs dans la direction du film magnétique. Ces deux électrons vont représenter le début et la fin de l'impulsion excitatrice des électrons chauds thermalisés. Le premier est généré à la dernière monocouche atomique du Pt(10nm) à un temps "t" et le deuxième est généré à la première monocouche atomique du Pt(10nm) à un temps "t + 100 fs". Cela conduit à une durée d'impulsion totale des électrons chauds thermalisés de :

$$10 \text{ (nm)} / 0,01 \text{ (nm/fs)} + 100 \text{ fs} = 1 \text{ 100 fs} = 1,1 \text{ ps.}$$

- La deuxième origine est le temps de propagation de l'excitation, des électrons chauds thermalisés, dans la couche magnétique de  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  de 15 nm. En effet, l'excitation transmise par les électrons chauds thermalisés mettra environ 1,5 ps à la vitesse de 0,01 nm/fs pour atteindre la dernière monocouche atomique du film de  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$  de 15 nm d'épaisseur.

Nous pensons que ces 2 origines expliquent l'augmentation du temps caractéristique de désaimantation entre l'échantillon n°2 et le n°3. Ainsi, pour l'échantillon n°3, le temps caractéristique de désaimantation de  $1,2 \pm 0,4$  ps indique que ce sont les électrons chauds thermalisés qui induisent la désaimantation et non pas les électrons chauds hors équilibre. Cette conclusion n'avait pas pu être faite en considérant uniquement les décalages temporels car les barres d'erreurs sont trop importantes (voir V.3.2.1).

En conclusion, les propriétés de transport des différentes natures des excitations semblent suffire pour expliquer les différences dans les mesures de dynamiques ultrarapides de l'aimantation (décalages temporels, amplitudes et temps caractéristiques). Malheureusement, nous n'avons pas eu le temps nécessaire pour mesurer la dynamique ultrarapide au seuil L3 du Co pour les échantillons n°2 et n°3.

### V.3.3. Désaimantation ultrarapide des électrons 3d Co et 4f Dy dans l'alliage CoDy

Dans cette partie nous allons présenter les mesures des désaimantations ultrarapides au seuil Co  $L_3$  et Dy  $M_5$  dans des échantillons n°4, n°5 et n°6 vu précédemment. Ces expériences permettent de comparer les dynamiques induites par des électrons chauds dans le cas des métaux 3d et 4f dans un même alliage. Ces mesures de tr-XMCD ont été réalisées sur la chambre de transmission des rayons X Femtoslicing de la ligne UE56-ZPM du synchrotron BESSY II. La Figure V.12 et la Figure V.13 présentent les mesures au seuil Co  $L_3$  et Dy  $M_5$  pour les 3 échantillons. Les données expérimentales sont ajustées grâce à des fonctions exponentielles décroissantes avec ou sans exponentielles de rétablissement de l'aimantation.

Pour l'échantillon n°4, la fluence laser est de  $7 \text{ mJ/cm}^2$  et la température d'équilibre est estimée à  $320 \text{ K}$ . Le début de désaimantation est défini comme étant 0. L'amplitude de désaimantation vaut  $51 \pm 5 \%$  pour le Co et  $98 \pm 5 \%$  pour le Dy. Le temps caractéristique de désaimantation vaut  $160 \pm 30 \text{ fs}$  pour le Co et  $440 \pm 80 \text{ fs}$  pour le Dy.

Pour l'échantillon n°5, nous avons multiplié par 2 la fluence laser, soit  $14 \text{ mJ/cm}^2$  et  $T_{\text{éq}}$  vaut environ  $370 \text{ K}$ . Le décalage temporel du début de désaimantation est de  $470 \pm 150 \text{ fs}$  pour le Co et de  $450 \pm 250 \text{ fs}$  pour le Dy. L'amplitude de désaimantation est de  $16 \pm 3 \%$  pour le Co et de  $21 \pm 5 \%$  pour le Dy. Le temps caractéristique de désaimantation est de  $330 \pm 180 \text{ fs}$  pour le Co et  $1,95 \pm 0,4 \text{ ps}$  pour le Dy.

Pour l'échantillon n°6, la fluence laser est de  $14 \text{ mJ/cm}^2$  et  $T_{\text{éq}}$  vaut environ  $370 \text{ K}$ . Ainsi, les échantillons n°5 et n°6 ont les mêmes conditions expérimentales de température et de fluence. Le décalage temporel du début de désaimantation est de  $1,1 \pm 0,2 \text{ ps}$  pour le Co et de  $0,9 \pm 0,35 \text{ ps}$  pour le Dy. L'amplitude de désaimantation est de  $9 \pm 3 \%$  pour le Co et de  $19 \pm 4 \%$  pour le Dy. Le temps caractéristique de désaimantation est de  $330 \pm 200 \text{ fs}$  pour le Co et de  $2,25 \pm 0,4 \text{ ps}$  pour le Dy.

Le Tableau V.5 est un récapitulatif des conditions expérimentales ainsi que les valeurs des amplitudes de désaimantation, des décalages temporels et des temps caractéristiques de désaimantation.

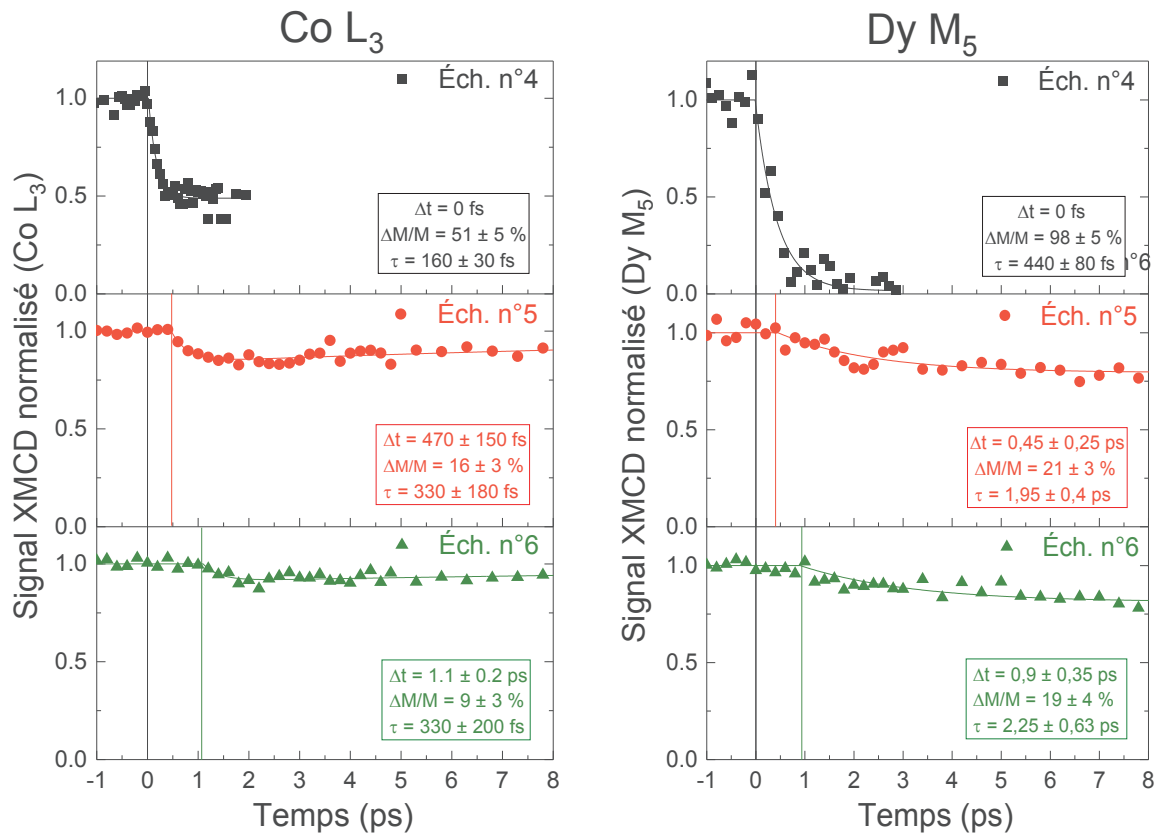


Figure V.12 : tr-XMCD au seuil Co L<sub>3</sub> (à gauche) et Dy M<sub>5</sub> (à droite) pour les échantillons n°4 (F=7mJ/cm<sup>2</sup>), n°5 (F=14mJ/cm<sup>2</sup>) et n°6 (F=14mJ/cm<sup>2</sup>). Les données expérimentales sont ajustées grâce à des fonctions exponentielles décroissantes avec ou sans exponentielles de rétablissement de l'aimantation (voir Annexe C). Le décalage temporel est noté  $\Delta t$ . L'amplitude de désaimantation est notée  $\Delta M/M$ . Le temps caractéristique de désaimantation est noté  $\tau$ .

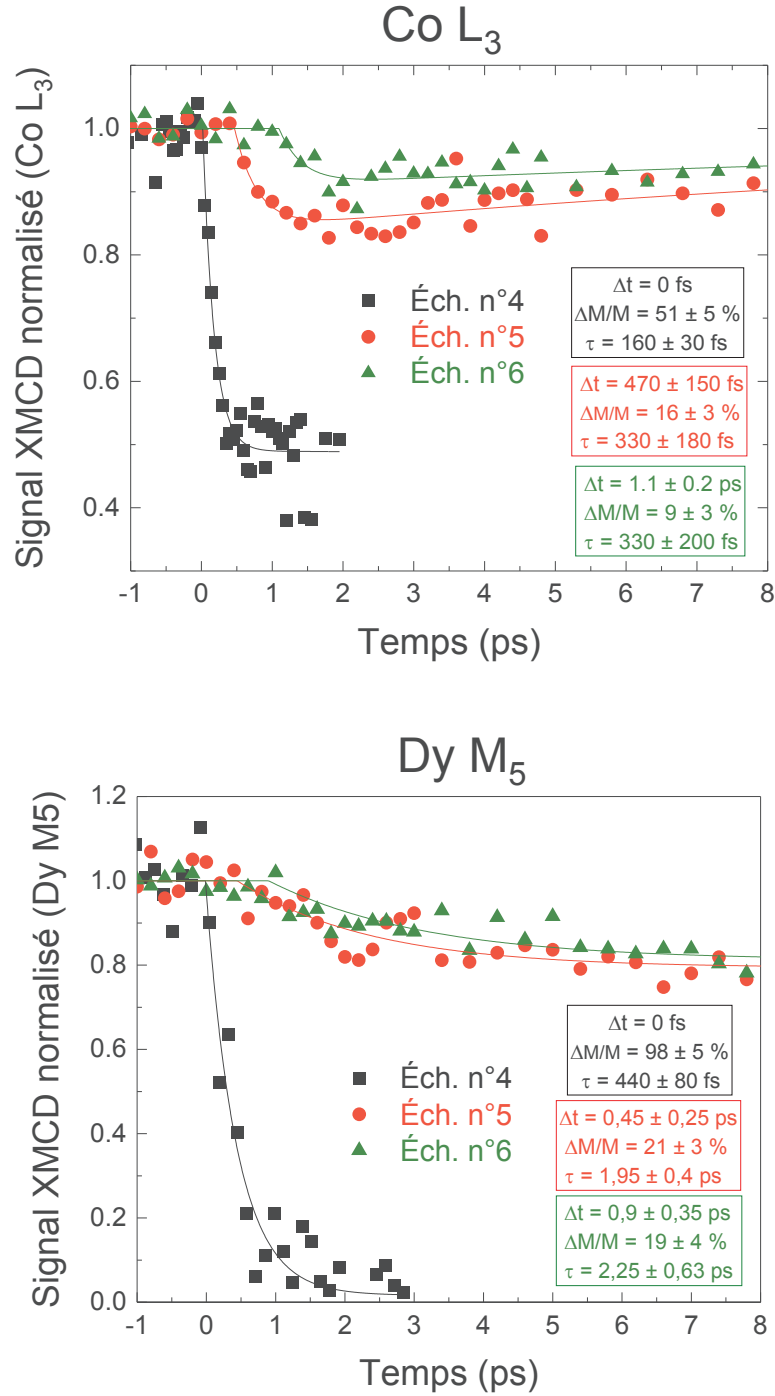


Figure V.13 : tr-XMCD au seuil Co L<sub>3</sub> (en haut) et Dy M<sub>5</sub> (en bas) pour les échantillons n°4 (F=7mJ/cm<sup>2</sup>), n°5 (F=14mJ/cm<sup>2</sup>) et n°6 (F=14mJ/cm<sup>2</sup>). Les données expérimentales sont ajustées grâce à des fonctions exponentielles décroissantes avec ou sans exponentielles de rétablissement de l'aimantation (voir Annexe C). Le décalage temporel est noté  $\Delta t$ . L'amplitude de désaimantation est notée  $\Delta M/M$ . Le temps caractéristique de désaimantation est noté  $\tau$ .



Tableau V.5 : Récapitulatif des conditions expérimentales et des valeurs significatives de la désaimantation ultrarapide des échantillons n°4, n°5 et n°6 au seuil Co L<sub>3</sub> et Dy M<sub>5</sub>.

Échantillon Co <sub>80</sub> Dy <sub>20</sub>	Éléments	T <sub>éq</sub> (K)	Fluence (mJ/cm <sup>2</sup> )	Amplitude de désaimantation (%)	Décalage temporel de désaimantation (ps)	Temps caractéristique de désaimantation (ps)
n°4	Co	~320	7	51 ± 5	0	0,16 ± 0,03
n°4	Dy	~320	7	98 ± 5	0	0,44 ± 0,08
n°5	Co	~370	14	16 ± 3	0,47 ± 0,15	0,33 ± 0,18
n°5	Dy	~370	14	21 ± 3	0,45 ± 0,25	1,95 ± 0,4
n°6	Co	~370	14	9 ± 3	1,1 ± 0,2	0,33 ± 0,2
n°6	Dy	~370	14	19 ± 4	0,9 ± 0,35	2,25 ± 0,6

### V.3.4. Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub> : Interprétations et discussions

Nous allons interpréter et discuter les résultats obtenus concernant les désaimantations ultrarapides des électrons 4f du Dy et 3d du Co dans l'alliage Co<sub>80</sub>Dy<sub>20</sub>. Nous commencerons par l'interprétation des décalages temporels de la désaimantation. Puis celle des amplitudes de désaimantation. Nous finirons par celle des temps caractéristiques de désaimantation. Il est noté que pour les échantillons n°5 et n°6 la multicouche de Co/Ni peut polariser en spin les électrons chauds. Comme une seule configuration magnétique de la couche de CoDy par rapport à la multicouche de Co/Ni (configuration parallèle) a été mesurée nous ne pouvons pas en tenir compte dans les interprétations.

#### V.3.4.1. Les décalages temporels des désaimantations

Les décalages temporels du début de la désaimantation sont liés au temps de propagation de l'excitation dans l'échantillon jusqu'à la couche magnétique. Par définition, un échantillon excité directement par les photons IR de la pompe (échantillon n°4) possède un décalage temporel de la désaimantation nul, c'est à dire de 0 fs.

**Pour l'échantillon n°5 :** nous mesurons un décalage temporel de 470 fs pour le Co et de 450 fs pour le Dy. La mesure du sous réseau de Co permet de déterminer avec une assez bonne précision ce décalage temporel. Le même décalage temporel mesuré pour les deux sous réseaux est environ le même, ce qui est logique car l'excitation arrive en même temps dans l'alliage magnétique. Si nous considérons que ce sont les électrons chauds hors équilibre qui induisent la désaimantation et qu'ils doivent se propager du haut de la couche de Cu de 60 nm jusqu'au film magnétique alors le décalage temporel sera d'environ :

$$60 \text{ (nm)} / 0.68 \text{ (nm/fs)} + 3.5 \text{ (nm)} / 0.25 \text{ (nm/fs)} + 3,5 \text{ (nm)} / 0.68 \text{ (nm/fs)} = 107 \text{ fs.}$$

Le décalage temporel que nous mesurons est trop important par rapport à l'estimation pour que ce soit les électrons chauds hors équilibre qui induisent le début de désaimantation. Cela signifie que la multicouche Co/Ni est plus efficace pour absorber les électrons chauds hors équilibre que ce que prévoit le modèle physique (décroissances exponentielles du pourcentage d'électrons chauds hors équilibre) vu précédemment (Figure V.8). La forte absorption des électrons chauds hors équilibre provient certainement aussi du grand nombre d'interfaces dans la multicouche qui ne sont pas prises en compte dans le modèle. Cela signifie également que ce sont des électrons chauds thermalisés qui induisent la désaimantation ultrarapide. Il est possible d'estimer le décalage temporel en considérant que les électrons chauds hors équilibre se propagent dans le Cu (60 nm) jusqu'à la multicouche Co/Ni (3,5 nm) dans laquelle ils vont se thermaliser. Les électrons chauds thermalisés se propagent ensuite jusque dans le matériau magnétique. En considérant que l'excitation transmise par les électrons chauds thermalisés se propage du milieu de la multicouche Co/Ni jusqu'au matériau magnétique l'estimation du décalage temporel est de :

$$60 \text{ (nm de Cu)} / 0,68 \text{ (nm/fs)} + \sim 200 \text{ (fs)} \text{ (temps de thermalisation des électrons chauds hors équilibre dans la multicouche Co/Ni)} + 1,75 \text{ (nm de Co/Ni)} / 0,01 \text{ (nm/fs)} + 3,5 \text{ (nm de Cu)} / 0,1 \text{ (nm/fs)} = 498 \text{ fs.}$$

Cette estimation correspond bien aux valeurs mesurées des décalages temporels au seuil Co L<sub>3</sub> et Dy M<sub>5</sub> qui est 470 ± 150 fs et 450 ± 250 fs respectivement.

**Pour l'échantillon n°6 :** nous mesurons un décalage temporel de 1,1 ± 0,2 ps pour le Co et de 0,9 ± 0,35 ps pour le Dy. Ces valeurs peuvent être considérées comme identiques au vu des barres d'erreurs. La désaimantation ultrarapide est donc induite par les électrons chauds thermalisés. Le décalage temporel peut être estimé par le calcul en considérant que les électrons chauds hors équilibre sont générés dans le Cu (50 nm) qui se propagent jusqu'à la couche de Pt (9 nm). Ils vont s'y thermaliser avec les électrons du Pt et générer des électrons chauds thermalisés qui se propagent depuis le milieu de la couche de Pt jusque dans le matériau magnétique. Cette estimation donne :

$$50 \text{ (nm de Cu)} / 0.68 \text{ (nm/fs)} + \sim 200 \text{ (fs)} \text{ (temps de thermalisation des électrons chauds hors équilibre dans le Pt)} + 5 \text{ (nm de Pt)} / 0.01 \text{ (nm/fs)} + 3,5 \text{ (nm de Co/Ni)} / 0.01 \text{ (nm/fs)} + 3,5 \text{ (nm de Cu)} / 0.1 \text{ (nm/fs)} = 1,158 \text{ ps.}$$

Cette estimation du décalage est en accord avec les valeurs mesurées.

D'après les décalages temporels nous pouvons conclure que les échantillons n°5 et n°6 sont tous les deux excités par des électrons chauds thermalisés. La multicouche Co/Ni de 3,5 nm d'épaisseur suffit à bloquer tous les électrons chauds hors équilibre. Ceci s'explique au vu du libre parcours moyen faible des électrons et du grand nombre d'interfaces.

### V.3.4.2. Les amplitudes de désaimantations

**Pour l'échantillon n°4 :** la fluence laser est de  $7 \text{ mJ/cm}^2$  et le matériau magnétique est excité directement par les photons IR du laser de pompe. L'amplitude de désaimantation est de 51 % pour le Co et 98 % pour le Dy. Le graphique a) de la Figure V.4 montre que toute l'épaisseur (18 nm) du film magnétique de  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  est excitée par les photons IR.

**Pour l'échantillon n°5 et n°6 :** la fluence laser de la pompe a été multipliée par 2. L'amplitude de désaimantation vaut 16 % pour le Co et 21 % pour le Dy pour l'échantillon n°5 et vaut 9 % pour le Co et 19 % pour le Dy de l'échantillon n°6. Malgré la multiplication par 2 de la fluence laser les amplitudes de désaimantation des échantillons n°5 et n°6 sont plus faibles que celles de l'échantillon n°4. Il y a plusieurs origines à ces diminutions des amplitudes de désaimantation qui sont les mêmes que celles vues dans la partie V.3.2.2 (pour les échantillon n°2 et n°3) à savoir : l'absorption d'une partie des électrons chauds hors équilibre dans le capping Pt(4 nm)/Cu(60 ou 50 nm), les réflexions sur les différentes interfaces des électrons chauds hors équilibre et des électrons chauds thermalisés, la direction de propagation des électrons chauds hors équilibre et des électrons chauds thermalisés et enfin une excitation non homogène de la couche magnétique. Nous pensons que ces différentes origines suffisent à expliquer la diminution de l'amplitude de désaimantation entre l'échantillon n°4 et les échantillons n°5 et n°6.

Nous remarquons que l'amplitude de désaimantation du Dy de l'échantillon n°5 vaut 21 % et que celle de l'échantillon n°6 vaut 19 %. L'amplitude de désaimantation ne varie quasiment pas alors que celle du Co dans l'échantillon n°5 vaut 16 % et seulement 9 % pour l'échantillon n°6. Le fait que l'amplitude du Dy ne change quasiment pas alors que celle du Co change beaucoup en passant de l'échantillon n°5 au n°6 est surprenant si l'on considère que l'amplitude de désaimantation est proportionnelle à l'énergie injectée dans le matériau magnétique. Nous avons songé à plusieurs hypothèses possibles (la considération précédente est fautive, légère perte d'overlap pendant la mesure de l'échantillon n°6, effet de la multicouche Co/Ni...) sans pour autant conclure sur l'une ou l'autre.

### V.3.4.3. Les temps caractéristiques des désaimantations

#### **Désaimantation du Dy $M_z$**

**Pour l'échantillon n°4 :** le temps caractéristique de désaimantation est  $440 \pm 80 \text{ fs}$ . Ce temps caractéristique est assez proche de celui mesuré pour l'échantillon  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  du chapitre IV qui était de  $610 \pm 70 \text{ fs}$ . La différence des temps caractéristiques de désaimantation a certainement comme origine la valeur de  $T_c - T_{\text{éq}}$  qui est différente pour les deux mesures (voir Annexe G).

**Pour l'échantillon n°5 :** le temps caractéristique de désaimantation est  $1,95 \pm 0,4$  ps. Il est beaucoup plus important, environ 4,4 fois, que celui de l'échantillon n°4. Selon notre interprétation cette augmentation a 2 origines :

- La première origine est une élongation de l'impulsion excitatrice. En suivant un raisonnement similaire à celui pour l'échantillon n°3 de la partie V.3.2.3 mais en considérant que c'est la multicouche Co/Ni qui absorbe tous les électrons chauds hors équilibre alors cette élongation de l'impulsion excitatrice est estimée à :

$100$  fs (durée de l'impulsion des électrons chauds hors équilibres) +  $3,5$  (nm de Co/Ni) /  $0,01$  (nm/fs) =  $450$ fs.

Ceci tend à augmenter le temps caractéristique de désaimantation.

- La deuxième origine est le temps de propagation des électrons chauds thermalisés dans la couche magnétique de CoDy. Ceux-ci mettent environ  $1,8$  ps pour se propager dans les  $18$  nm d'épaisseur de l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ . Ce temps de propagation correspond assez bien au temps caractéristique du Dy.

**Pour l'échantillon n°6 :** se désaimante avec un temps caractéristique de  $2,25 \pm 0,6$  ps. Ce temps caractéristique est beaucoup plus important, environ 5 fois, que celui de l'échantillon n°4. Il peut être considéré comme similaire à celui de l'échantillon n°5. Selon notre interprétation cette augmentation a 2 origines :

- La première est l'élongation de la durée de l'impulsion excitatrice. La durée de l'impulsion des électrons chauds thermalisés est estimée à :

$100$  fs (durée de l'impulsion des électrons chauds hors équilibre) +  $9$  (nm de Pt) /  $0,01$  (nm/fs) =  $1$  ps.

-La deuxième origine est le temps de propagation des électrons chauds thermalisés qui mettent environ  $1,8$  ps pour se propager dans toute l'épaisseur du film magnétique CoDy.

### **Désaimantation du Co L<sub>3</sub>**

**Pour l'échantillon n°4 :**le temps caractéristique de désaimantation est de  $160 \pm 30$  fs. Ce temps caractéristique est similaire à celui mesuré pour l'échantillon  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  du chapitre IV qui était de  $190 \pm 60$  fs.

**Pour l'échantillon n°5 :**le temps caractéristique de  $330 \pm 180$  fs. Il est plus important, environ 2 fois, que celui de l'échantillon n°4. Ce résultat est en accord avec les mesures de ces différents articles [69,106-108] concernant les MT. Ce résultat est tout de même surprenant. En effet, si l'on considère que l'augmentation du temps caractéristique de désaimantation du Dy en passant de

l'échantillon n°4 à n°5 ou n°6 et liée à l'augmentation de la durée de l'impulsion excitatrice et à son temps de propagation dans le matériaux magnétique CoDy alors une augmentation similaire à celle du Dy est attendue pour le Co. Or ce n'est pas ce que nous avons mesuré. Comment expliquer ce résultat ? Il est peut être possible d'expliquer ce résultat en considérant les temps caractéristiques de rétablissement de l'aimantation. En effet, les temps caractéristiques de rétablissement de l'aimantation sont de l'ordre de quelques picosecondes pour les MT, voir inférieur à la picoseconde pour des amplitudes de désaimantation faible [28]. Alors qu'ils sont de l'ordre de plusieurs dizaines de picosecondes pour les TR (voir Chapitre IV). Ainsi il est possible que l'aimantation du Co de la couche supérieure du film de CoDy se ré-aimante alors que l'excitation n'est pas encore arrivée au fond du film de CoDy. Cet effet peut limiter l'augmentation du temps caractéristique pour le sous réseau de Co.

**Pour l'échantillon n°6 :** le temps caractéristique de désaimantation est de  $330 \pm 200$  fs. Il est similaire à celui de l'échantillon n°5 et environ 2 fois plus important que celui de l'échantillon n°4. Comme l'excitation est transmise par les électrons chauds thermalisés pour l'échantillon n°5 et n°6, nous pouvons expliquer ce résultat de la même manière que l'échantillon n°5 (voir paragraphe ci-dessus).

Bien évidemment l'explication qui implique le temps caractéristique de rétablissement de l'aimantation pour appréhender la faible augmentation du temps caractéristique de désaimantation du Co par rapport à celle du Dy lorsque le matériau magnétique est excité par des photons ou des électrons chauds thermalisés est juste une proposition. Il existe peut-être d'autres possibilités pouvant expliquer celle-ci.

## V.4. Conclusions et ouvertures

Dans ce chapitre j'ai présenté les mesures de désaimantations ultrarapides pour 3 natures d'excitations différentes (photons, électrons chauds hors équilibre et électrons chauds thermalisés). Celles-ci montrent, pour la première fois, que des désaimantations ultrarapides des TR (Dy et Tb) peuvent être induites par des impulsions d'électrons chauds hors équilibre ou d'électrons chauds thermalisés dans 2 alliages  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  et  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ . On constate que pour une excitation par des photons IR ou par des électrons chauds hors équilibre le temps caractéristique de désaimantation du Tb est quasiment le même. On constate également que pour une excitation par des électrons chauds thermalisés les temps caractéristiques de désaimantation du Dy et du Tb sont multipliés par 4 ou 5 par rapport à une excitation induite par des photons IR ou des électrons chauds hors équilibre. Ces résultats peuvent être expliqués en considérant les propriétés de transport des différentes excitations.

Les mesures au seuil Co L3 dans l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  présentent une augmentation du temps caractéristique de désaimantation d'un facteur 2 lorsque le matériau magnétique est excité par des électrons chauds thermalisés par rapport à des photons IR. Eschenlohr et al. en 2013 [69] et Vodungbo et al. en 2016 [108] constatent la même chose pour les MT. Comme pour les TR, il est possible d'expliquer ces résultats en considérant les propriétés de transport des différentes excitations.

Ainsi, selon notre interprétation, il semblerait que ce n'est pas la nature de l'excitation (photons, électrons chauds hors équilibre, électrons chauds thermalisés) qui influence la dynamique de désaimantation ultrarapide des TR et des MT mais seulement la durée de l'excitation et sa vitesse de propagation. Notons que l'ensemble de mes résultats se limite à une description de la dynamique avec une résolution temporelle de  $\sim 130$  fs.

Il est à noter que les effets cohérents entre les photons IR de la pompe avec le matériau magnétique décrit par Bigot et al. [31] n'existent plus lorsque le matériau magnétique est excité par des électrons chauds. Cependant ces effets cohérents sont faibles et agissent uniquement durant la durée de la pompe IR ( $\sim 60$  fs dans notre cas). Nous n'avons ni la résolution temporelle ni le signal sur bruit nécessaire à l'observation de ces effets et à leur disparition lorsque le matériau magnétique est excité par des électrons chauds.

Pour aller plus loin de cette étude et pour vérifier notre interprétation, un projet a été déposé au X-FEL LCLS de Stanford. Les fortes intensités de rayons X générés permettent de mesurer des films très minces de quelques nm d'épaisseur. Nous souhaitons mesurer l'évolution du temps caractéristique de désaimantation d'une TR excitée par des électrons chauds thermalisés en fonction de l'épaisseur du film magnétique. Une collaboration avec un groupe de théoriciens de l'IPCMS est en cours afin de simuler les impulsions d'électrons chauds hors équilibre générés par l'absorption des photons IR laser dans les différents capping considérés dans mon travail.



# Conclusions générales et perspectives

Au cours de ce travail je me suis intéressé à la désaimantation ultrarapide des MT et des TR dans différents alliages MT-TR en utilisant les techniques expérimentales tr-XMCD et tr-MCDAD sur des TGIR, sources de rayons X polarisés. J'ai tenté dans ce travail d'apporter quelques éléments nouveaux dans la description de la désaimantation ultrarapide des alliages MT-TR en films minces en abordant différents paramètres (sensibilité à la surface, influence de  $T_{\text{comp}}$ , influence de la nature des excitations).

Dans le premier projet (chapitre III), nous avons étudié la désaimantation ultrarapide au seuil  $M_5$  du Gd de la surface des films de CoGd grâce à la technique tr-MCDAD par photoémission. Nous avons mesuré les désaimantations ultrarapides de 2 alliages ( $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  et  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ ) au seuil  $M_5$  du Gd. Ces mesures ont été réalisées en mode de remplissage de l'anneau de stockage "Low-alpha" avec une résolution temporelle de 12 ps. La dynamique de l'alliage  $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$  est de type II, avec le même temps caractéristique long que le Gd pur. La dynamique de l'alliage  $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$  est de type I. Nous avons donc observé une transition de type I - type II au seuil  $M_5$  du Gd en modifiant la concentration dans cet alliage. Nos résultats sont donc en accord avec le modèle  $m^3\text{TM}$  de B. Koopmans considérant un mécanisme de spin-flip.

Pour mieux caractériser la transition type II - type I des alliages CoGd nous souhaitons réaliser des mesures complémentaires sur la chambre Femtoslicing avec une meilleure résolution temporelle et une sensibilité au volume. Nous pourrions alors comparer les désaimantations ultrarapides des mesures sensibles au volume (Femtoslicing) à celles sensibles à la surface (TEMPO). Ces expériences sont programmées en janvier 2018.

Dans le deuxième projet (chapitre IV), nous avons étudié l'influence de  $T_{\text{comp}}$  sur la désaimantation ultrarapide dans des alliages CoDy grâce à la technique tr-XMCD aux seuils  $M_5$  du Dy et  $L_3$  du Co. Nous avons constaté que  $T_{\text{comp}}$  n'influence pas la désaimantation ultrarapide (temps caractéristique et amplitude de désaimantation). Cependant, nous constatons que  $T_{\text{comp}}$  a une influence sur le rapport de désaimantation (D) qui représente l'efficacité du système magnétique à évacuer son moment angulaire. Lorsque la température de l'alliage magnétique est supérieure à  $T_{\text{comp}}$  le Co et le Dy ont le même rapport de désaimantation (D). Lorsque la température de l'alliage magnétique est inférieure à  $T_{\text{comp}}$  le rapport de désaimantation du Dy augmente alors que celui du Co reste constant. D'autres données expérimentales issues de la bibliographie semblent confirmer nos mesures.

Afin de compléter l'étude de l'influence de la  $T_{\text{comp}}$  sur la désaimantation ultrarapide et peut être de généraliser nos résultats sur les alliages MT-TR, nous souhaitons réaliser des mesures similaires sur d'autres alliages. De plus, grâce à la nouvelle chambre expérimentale en cours de



développement sur la ligne de Slicing du synchrotron BESSY II nous pourrions mesurer l'influence de  $T_{\text{comp}}$  sur un même alliage à des températures très proches.

Pour le troisième projet (chapitre V), nous avons étudié la désaimantation ultrarapide dans deux alliages ( $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  et  $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ ) grâce à la technique tr-XMCD aux seuils  $L_3$  du Co et  $M_5$  du Dy et du Tb pour différentes excitations (photons, électrons chauds hors équilibre, électrons chauds thermalisés). Nous avons constaté, pour la première fois, qu'il était possible d'induire une désaimantation ultrarapide des TR par une impulsion d'électrons chauds. Les résultats expérimentaux peuvent être expliqués en considérant les vitesses de propagation des différentes excitations.

Pour compléter l'étude de la désaimantation ultrarapide induite par des électrons chauds et vérifier notre interprétation, nous souhaitons mesurer l'évolution du temps caractéristique de désaimantation d'une TR excitée par des électrons chauds thermalisés en fonction de l'épaisseur du film magnétique.

Le développement de la technique de "Slicing" sur le synchrotron SOLEIL et plus particulièrement sur la ligne TEMPO (voir Annexe F) nous permettrait d'avoir un accès plus régulier afin de réaliser plus de projets. Dans un proche avenir, différentes lignes expérimentales basées sur la génération de hautes harmoniques (HHG) dédiée aux expériences pompe-sonde seront accessibles à l'IPCMS et dans d'autres laboratoires. Ces lignes expérimentales nous permettront de compléter ces projets.





# Annexes

## Annexe A : Règles de sommes et opérateur magnétique dipolaire

Les règles de sommes énoncés par Thole et al. en 1992 [137] et par Carra et al. en 1993 [138] nous permettent de calculer le moment magnétique de spin ( $M_S$ ) et le moment magnétique orbital ( $M_L$ ) à partir des spectres d'absorption des rayons X du seuil L3 et L2 des MT et du seuil M5 et M4 des TR suivant les équations ci-dessous.

**Pour les MT :**

$$M_L = -\frac{2 Q}{3 R_{\text{iso}}} n_h^{3d}$$

$$M_S = -\frac{3 P - 2 Q}{R_{\text{iso}}} n_h^{3d} \left( 1 + \frac{7 \langle T_Z \rangle}{2 \langle S_Z \rangle} \right)^{-1}$$

$n_h^{3d}$  : nombre de trou de la bande 3d,

P : intégrale du signal XMCD du seuil L3,

Q : intégrale du signal XMCD du seuil L3 et L2,

$R_{\text{iso}}$  : intégrale du signal isotrope moins le fond du seuil L3 et L2,

$\langle T_Z \rangle$  : opérateur magnétique dipolaire.

L'origine physique de l'opérateur magnétique dipolaire est l'interaction spin-orbite. D'après les calculs de Teramura et al. en 1996 [180] nous pouvons négliger le terme contenant l'opérateur magnétique dipolaire pour les MT tel que le Fe, le Ni et le Co car celui-ci augmente la valeur du moment magnétique de spin de seulement 5 à 10 %. L'équation du moment magnétique de spin s'écrit donc :

$$M_S = -\frac{3 P - 2 Q}{R_{\text{iso}}} n_h^{3d}$$

### Pour les TR :

$$M_L = \frac{Q}{R_{iso}} n_h^{4f}$$

$$M_S = \frac{5P - 3Q}{2 R_{iso}} n_h^{4f} \left(1 + 3 \frac{\langle T_Z \rangle}{\langle S_Z \rangle}\right)^{-1}$$

$n_h^{4f}$  : nombre de trou de la bande 4f,

P : intégrale du signal XMCD du seuil M5,

Q : intégrale du signal XMCD du seuil M5 et M4,

$R_{iso}$  : intégrale du signal isotrope du seuil M5 et M4,

$\langle T_Z \rangle$  : opérateur magnétique dipolaire.

D'après les calculs de Teramura et al. en 1996 [181] nous ne pouvons pas négliger le terme contenant l'opérateur magnétique dipolaire pour les TR. Le Tableau 1 reporte les valeurs du rapport  $\frac{\langle T_Z \rangle}{\langle S_Z \rangle}$  pour le Gd, le Tb, et le Dy :

Tableau 1: Tableau de valeurs du rapport  $T_Z/S_Z$  et du facteur correctif issu de l'article Teramura et al. de 1996.

	Gd	Tb	Dy
$\langle T_Z \rangle / \langle S_Z \rangle$	-0,003	-0,083	-0,053
$\left(1 + 3 \frac{\langle T_Z \rangle}{\langle S_Z \rangle}\right)^{-1}$	1.009	1.332	1.189

### Exemple pour les MT :

La Figure 1 illustre la procédure utilisée pour extraire les valeurs P, Q et  $R_{iso}$  des données expérimentales. L'intensité XMCD est définie comme la différence d'intensité absorbée entre la polarisation circulaire gauche et droite ou de manière similaire entre un champ magnétique appliqué  $H+$  et  $H-$ . L'intensité isotrope est définie comme la somme de l'intensité absorbée pour une polarisation circulaire gauche et droite, le tout divisé par deux. La courbe du fond de la Figure 1 c) est déterminée suivant l'équation :

$$\text{Fond} = I_{760\text{eV}} + \left(1 + \frac{2}{3} \tanh(0.8 * E_{\text{pic}}^{L3}) + \frac{1}{3} \tanh(0.8 * E_{\text{pic}}^{L2})\right) * I_{830\text{eV}}$$

$I_{760\text{eV}}$  : l'intensité avant le pic L3 qui vaut 0 dans notre cas,

$E_{\text{pic}}^{L3}$  et  $E_{\text{pic}}^{L2}$  : l'énergie correspondant au maximum du pic L3 ou L2,

$I_{830\text{eV}}$  : l'intensité après le pic L2.

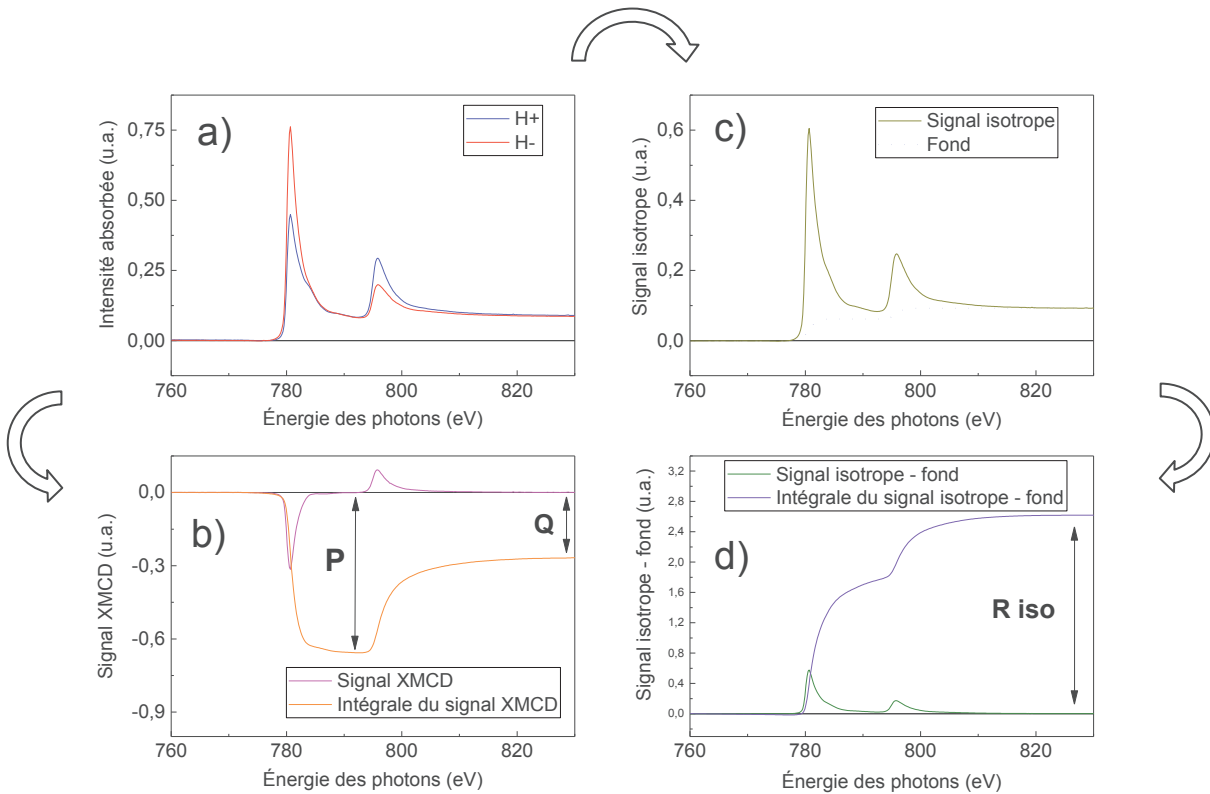


Figure 1: a) Spectre XAS représentant l'intensité absorbée au seuil du Co. b) Signal XMCD et de l'intégrale du signal XMCD. c) Signal isotrope et du fond. d) Signal isotrope moins le fond et l'intégrale du signal isotrope moins le fond.

Pour les TR : la procédure est sensiblement la même mise à part que nous devons considérer les seuils M5 et M4 au lieu des seuils L3 et L2. De plus pour les TR il n'y a pas de fond à soustraire au signal isotrope.

### Nombre de trou :

Pour calculer les valeurs de moment magnétique de spin et orbital nous devons connaître la valeur du nombre de trou de la bande 3d pour les MT et de la bande 4f pour le TR. Pour les TR le nombre de trou de la bande 4f ne change pas en fonction de l'alliage car celle-ci n'intervient pas dans les liaisons chimiques. Le nombre de trou de la bande électronique 4f du Gd, Tb et Dy sont respectivement 7, 6 et 5. La valeur du nombre de trou pour le Co pur varie entre 2,8 et 2,43 selon les références [131,167,182,183]. De plus la valeur du nombre de trou du Co varie en fonction de la concentration du Co dans les alliages Co-TR. Ne disposant pas de la valeur du nombre de trou dans les différents alliages étudiés nous avons considéré que celle-ci vaut 2,8 pour tous les échantillons.

## Annexe B : Signal XMCD (Co L<sub>3</sub> ou TR M<sub>5</sub>) proportionnelle à M<sub>Tot</sub> (Co ou TR)

Pour réaliser cette approximation nous nous appuyons sur 2 articles [25,80]. Les résultats présentés par Bergeard et al. [80] montrent que, dans un alliage Co<sub>74</sub>Tb<sub>26</sub>, le spin et l'orbite du Tb se désaimantent avec le même temps caractéristique et la même amplitude. En considérant qu'il en est de même pour le Dy nous dire que le signal XMCD au seuil M<sub>5</sub> du Dy ou du Tb est proportionnel au moment magnétique total du sous réseau 4f de la TR.

Les résultats de Bergeard et al. [80] montrent également que pour le Co dans l'alliage Co<sub>74</sub>Tb<sub>26</sub>, le spin et l'orbite se désaimantent avec le même temps caractéristique. Cependant l'amplitude de désaimantation n'est pas exactement la même et vaut environ 60 % pour le spin et 70 % pour l'orbite. Dans l'article de Stamm et al. [25], les auteurs montrent que le signal XMCD au seuil L<sub>3</sub> est proportionnel à :

$$XMCD_{L3} \propto S(t) + \frac{3}{2} L(t)$$

Alors que le moment magnétique total du sous réseau de Co est proportionnel à :

$$M_{tot}^{Co} \propto 2 * S(t) + L(t)$$

En s'appuyant sur les résultats de Bergeard et al. [80] concernant l'amplitude de désaimantation du spin et de l'orbite (respectivement 60 % et 70 %) nous pouvons calculer quelle amplitude de désaimantation nous allons mesurer via le signal XMCD L<sub>3</sub> et la comparer à celle du moment magnétique total du Co.

Nous savons que pour t < 0 ps : S(t < 0) = 0,45 ħ/at, L(t < 0) = 0,11 ħ/at.

Et que pour t = 0,5 ps : S(0,5 ps) = 0,18 ħ/at, L(0,5 ps) = 0,033 ħ/at

D'où :

$$\frac{XMCD_{L3}(t < 0) - XMCD_{L3}(0,5 ps)}{XMCD_{L3}(t < 0)} \propto \frac{\left(S(t < 0) + \frac{3}{2} L(t < 0)\right) - \left(S(0,5 ps) + \frac{3}{2} L(0,5 ps)\right)}{S(t < 0) + \frac{3}{2} L(t < 0)} = 62.7 \%$$

$$\frac{M_{tot}^{Co}(t < 0) - M_{tot}^{Co}(0,5 ps)}{M_{tot}^{Co}(t < 0)} \propto \frac{(2 * S(t < 0) + L(t < 0)) - (2 * S(0,5 ps) + L(0,5 ps))}{2 * S(t < 0) + L(t < 0)} = 61 \%$$

L'amplitude de désaimantation mesurée via le signal XMCD au seuil  $L_3$  est de 62,7 % alors que le moment magnétique total du Co diminue de 61 %. La différence est donc très faible et peut être négligée. Nous pouvons donc considérer que le signal XMCD au seuil  $L_3$  du Co est proportionnel au moment magnétique total du sous réseau 3d du Co.

Ainsi, la mesure de la dynamique ultrarapide de l'aimantation au seuil  $L_3$  du Co ou  $M_5$  du Dy et du Tb est proportionnelle à l'aimantation du sous réseau de Co, Dy ou Tb.



# Annexe C : Ajustements des courbes de désaimantations

La fonction mathématique utilisée pour fitter les datas est une fonction exponentielle décroissante (désaimantation) avec relaxation (rétablissement de l'aimantation) convoluée à une gaussienne dont la FWHM correspond à la résolution temporelle de l'expérience. Voici ci-dessous son expression mathématique :

$$\text{XMCD normalisé (t)} = \left[ A_0 - \left[ A_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_D}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_R}\right) \right] \right] \otimes g(t)$$

t : le temps et de manière plus exact le délai temporel entre la pompe et la sonde,

A<sub>0</sub> : amplitude du signal XMCD avant l'excitation laser (cette amplitude est le plus souvent normalisée à 1)

A<sub>1</sub> : amplitude de désaimantation,

A<sub>2</sub> : amplitude de relaxation de l'aimantation,

τ<sub>D</sub> : temps caractéristique de désaimantation,

τ<sub>R</sub> : temps caractéristique de relaxation (rétablissement de l'aimantation),

g(t) : fonction gaussienne représentant la résolution temporelle de l'expérience.

# Annexe D : Anisotropie magnétique de l'alliage $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$

La Figure 2 représente l'évolution du champ coercitif en fonction de l'angle  $\theta$  entre la direction de propagation des rayons X et la normale à la surface. Le champ coercitif diminue lorsque l'angle augmente. Ces mesures semblent indiquer que l'axe de facile aimantation est dans le plan mais que l'aimantation est saturable dans toutes les directions avec un champ magnétique inférieur à 0,4 T. Les cycles d'hystérésis mesurés afin d'obtenir les valeurs des champs coercitifs en fonction de l'angle  $\theta$  étaient tous carrés.

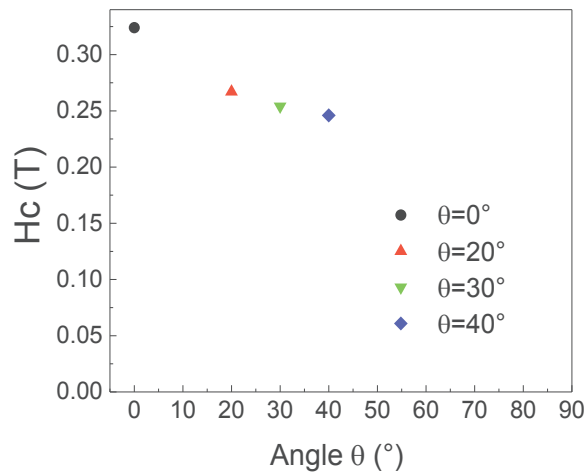


Figure 2 : Champ magnétique coercitif en fonction de l'angle  $\theta$  entre la normale à la surface et la direction de propagation des rayons X à 300 K de l'échantillon n°1  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ .

# Annexe E : Conditions expérimentales du canon à ion et de l'AES

**Les conditions expérimentales des BI sont les suivantes :**

- Tension accélératrice = 1 KV
- Pression d'Argon dans la chambre =  $2,5 \cdot 10^{-5}$  mbar
- Intensité du courant du filament = 7 mA
- Angle entre le faisceau d'ions et la surface de l'échantillon =  $60^\circ$
- Intensité du courant échantillon = 2 à 3  $\mu\text{A}$

**Les conditions expérimentales principales de l'AES sont les suivantes :**

- Tension accélératrice = 5 KV
- Intensité du courant du filament d'émission =  $-5 \mu\text{A}$
- Tension de l'électro multiplicateur = 1550 V
- Résolution énergétique = 2.5 eV
- Sensibilité du détecteur = 300 nA
- Temps d'intégration = 500 ms

# Annexe F : Développement du "Slicing" à SOLEIL

Depuis quelques années le synchrotron SOLEIL développe un projet "Slicing" sur les deux lignes de lumières CRISTAL et TEMPO. Le but du projet est de développer des expériences résolues en temps avec une résolution de l'ordre de la centaine de femtoseconde dans la gamme des rayons X durs pour la ligne CRISTAL et des rayons X mous pour la ligne TEMPO. Je présente ici les premières mesures des photons slicés sur la ligne TEMPO ainsi que leurs caractérisations.

La ligne TEMPO est constituée d'une multitude d'éléments. Les éléments principaux sont représentés sur la Figure 3. Les chicanes sont des électroaimants qui permettent de séparer angulairement les électrons de cœur du faisceau avec ceux ayant interagit avec l'impulsion laser et plus particulièrement ceux qui ont gagnés de l'énergie. En réglant l'intensité du champ magnétique appliqué nous favorisons les électrons ayant gagnés une certaine énergie (entre 0 et 20 MeV) à passer préférentiellement dans le centre de l'onduleur. En positionnant bien le diaphragme nous pouvons minimiser les photons venant du cœur du faisceau et maximiser ceux venant des électrons slicés. Les miroirs focalisant, les différentes fentes et le monochromateur permettent ensuite de sélectionner précisément les photons souhaités (énergie, rapport photons slicés sur photons du cœur...). Afin de détecter les photons slicés nous avons monté sur la chambre expérimentale une MCP (Micro-Channel Plate). Les avantages de ce détecteur sont sa résolution spatiale en deux dimensions, sa résolution temporelle et sa grande sensibilité. Il possède également certains désavantages. Le principal étant qu'il ne peut mesurer qu'un seul photon sur un temps de quelques picosecondes. Cela signifie que si plusieurs photons arrivent sur le détecteur sur un temps plus court que quelques picosecondes alors le détecteur mesurera soit 0 ou 1 photon. Ceci ne nous permet donc pas de mesurer le nombre de photons slicés par pulse. Mais comme le rendement du détecteur dépend linéairement du nombre de photons lui arrivant dessus nous pouvons comparer le nombre de photons slicés au nombre de photons provenant du cœur du faisceau.

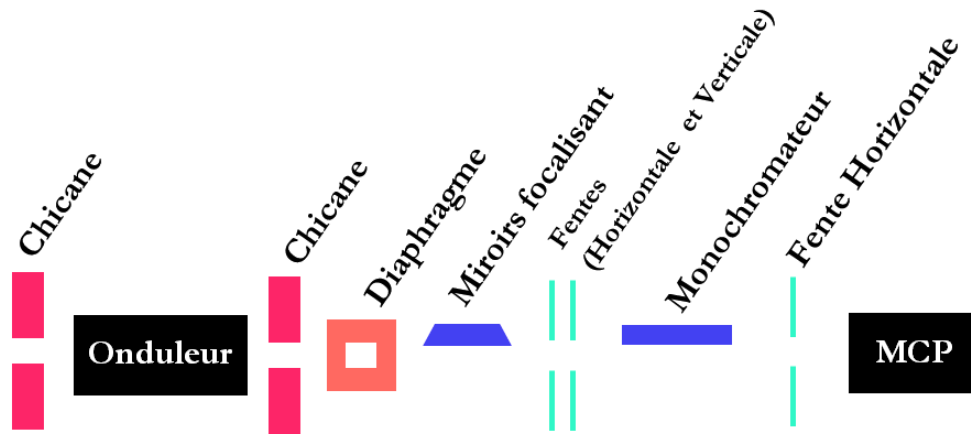


Figure 3 : Schéma des différents éléments constituant la ligne de lumière TEMPO.

Lors de la première semaine d'expérience (en décembre 2016) nous avons mesuré pour la première fois les photons slicés sur la ligne TEMPO. Nous avons ensuite réalisé de nombreuses mesures afin d'optimiser les chicane, le diaphragme, les différentes fentes ainsi que les miroirs focalisant pour une polarisation linéaire et circulaire. Un exemple de mesure est présenté sur la Figure 4. Cette mesure correspond à plus de 11 révolutions des électrons dans l'anneau de stockage ( $\sim 1,1 \mu\text{s}$  par révolution). Cette mesure a été réalisée dans le mode de remplissage hybride de l'anneau de stockage avec un paquet isolé d'une longueur temporelle de 60 ps à mi-hauteur. Une petite partie du paquet isolé interagit avec une impulsion laser IR fs. Nous mesurons, via les photons émit par les électrons du cœur du faisceau, la structure de remplissage de l'anneau de stockage (1 paquet isolé intense et une multitude de paquets moins intenses et regroupés). Nous constatons que le 3<sup>ème</sup> paquet isolé est beaucoup plus intense que les autres. La différence d'intensité provient des photons slicés. Nous constatons également que 6 révolutions après les photons slicés nous mesurons de nouveau un pic plus intense. Ces photons proviennent également du paquet d'électrons slicé, ayant gagnés en énergie. Nous appelons ces photons l'écho. Cela signifie qu'après 6 révolution les électrons slicés repassent à peu près sur la même trajectoire que lors de la première révolution. Cet écho se répète environ 8 fois avec une intensité qui diminue. Ainsi, au bout d'environ 48 révolutions l'intensité de l'écho est négligeable par rapport à celle du cœur du faisceau. Sur cette mesure nous constatons que le ratio entre le nombre de photons slicés et le nombre de photons provenant du cœur du faisceau est d'environ 6 (= 1800/300).

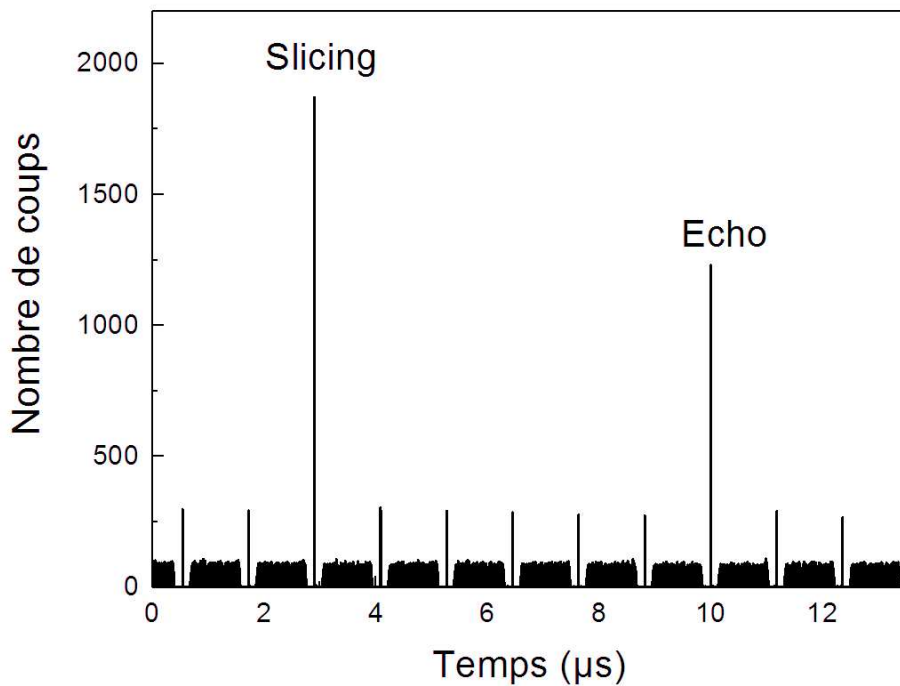


Figure 4 : Nombre de coups en fonction du temps en polarisation linéaire et avec la chicane à 14 MeV. Le temps de révolution des électrons dans l'anneau de stockage est de 1,1  $\mu$ s.

Pour une polarisation linéaire nous avons mesuré au maximum un ratio photons slicés sur photons du cœur de 14 pour une chicane à 10 MeV. Pour une polarisation circulaire nous avons mesuré un ratio de seulement 5. Nous pensons avoir compris, après coup, l'origine du ratio plus faible pour une polarisation circulaire. Cette origine vient certainement des réglages de l'onduleur (gap et phase) qui sont optimisés pour les électrons de cœur et non pas pour les électrons slicés. Les futures expériences début 2018 permettront de confirmer cela. Pour ces futures mesures nous souhaitons également installé une photodiode comme détecteur afin d'être quantitatif. Nous souhaitons également caractériser la résolution temporelle de l'expérience en mesurant la désaimantation ultrarapide d'un matériau dont le temps caractéristique est le plus court possible.

# Annexe G : Évolution du temps de désaimantation des TR en fonction de $T_C - T_{\text{éq}}$

La Figure 5 représente le temps caractéristique de désaimantation des sous réseaux de TR dans divers alliages MT-TR en fonction de la différence entre la température de Curie ( $T_C$ ) et la température de mesure ( $T_{\text{éq}}$ ). Pour tracer cette courbe, j'ai cumulé nos données expérimentales ainsi que celles issues de la bibliographie [71,80,127] concernant les alliages CoTb et CoDy. Ce graphique comprend des alliages dont la concentration en TR varie entre 26 % et 10 %, dont les TR ont une désaimantation de type I et dont l'amplitude de désaimantation ( $\Delta M/M_s$ ) est comprise entre 26 % et 90 %. Nous constatons que le temps caractéristique de désaimantation du Tb et du Dy semble évoluer linéairement en fonction de  $T_C - T_{\text{éq}}$  avec une pente d'environ 2 fs/K.

Comme nous avons déduit cette évolution linéaire du temps caractéristique de désaimantation en fonction de  $T_C - T_{\text{éq}}$  avec des concentrations de TR différentes, avec des amplitudes de désaimantation différentes et avec une  $T_{\text{éq}}$  supérieur ou inférieur à  $T_{\text{comp}}$ , il semble que le temps caractéristique de désaimantation des TR ne dépend pas : de la concentration des TR (entre 26 % et 10 %), de l'amplitude de désaimantation (entre 25% et 90%) et de la température d'équilibre par rapport à la température de compensation.

Nous savons que l'aimantation du sous réseau de TR évolue également en fonction de  $T_C - T_{\text{éq}}$ . Ne pourrait-il pas que le temps caractéristique de désaimantation soit proportionnel à l'aimantation du sous réseau de TR ? Notre étude dans le chapitre IV semble montrer que non car pour deux valeurs d'aimantation différentes, les temps caractéristiques de désaimantation ainsi que les amplitudes de désaimantation sont les mêmes.

Pour aller plus loin dans la compréhension et l'interprétation de ces résultats nous allons déposer un projet sur la chambre Femtoslicing du synchrotron Bessy II. Dans ce projet nous souhaitons mesurer précisément pour un même alliage (CoTb ou CoDy) le temps caractéristique de désaimantation pour plusieurs valeurs de  $T_C - T_{\text{éq}}$ . Si cette observation est confirmée, il sera alors possible de déduire le temps caractéristique de désaimantation du Tb et du Dy en connaissant uniquement la température de Curie de l'alliage ainsi que la température d'équilibre lors de la mesure pompe-sonde. Nous allons également réaliser plusieurs mesures de désaimantations ultrarapides sur des alliages CoGd en janvier 2018 pour un autre projet (voir les ouvertures du chapitre III). Ces mesures pourront être intégrées sur cette courbe afin de voir si le Gd se comporte comme le Dy et le Tb.

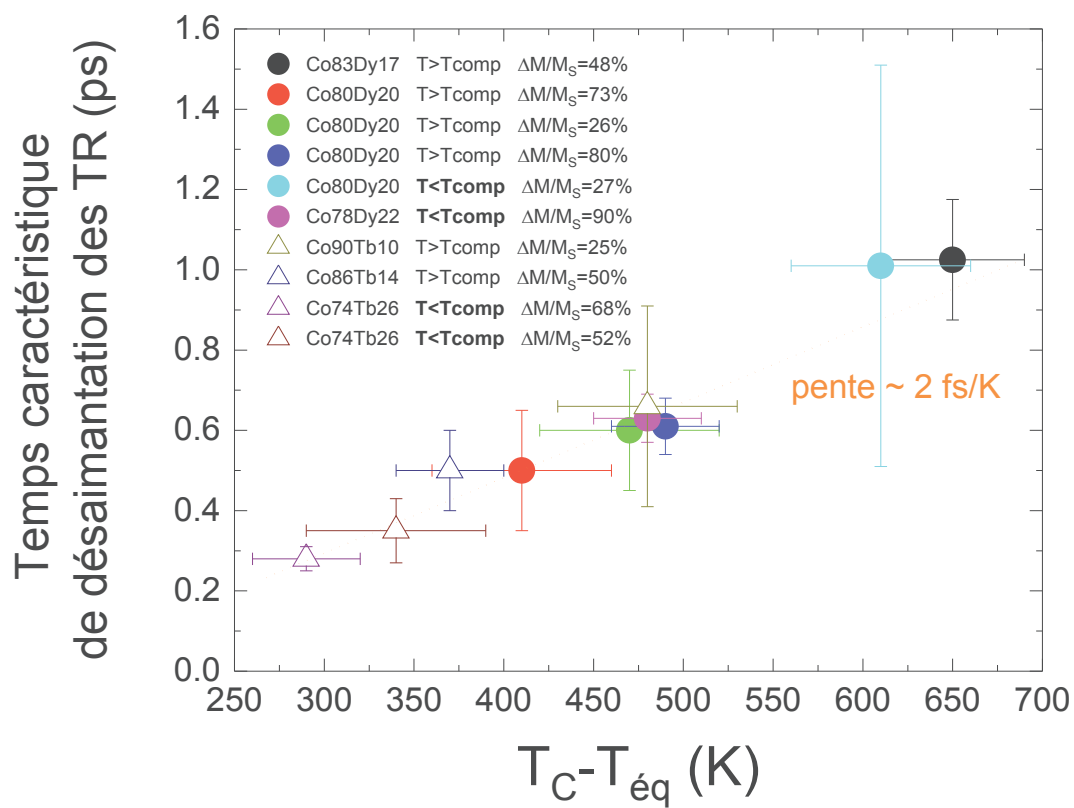


Figure 5 : Ensemble de nos données ainsi que celles de la bibliographie [71,80,127] des temps caractéristiques de désaimantation des TR en fonction de la différence entre la température de Curie des échantillons et leur température d'équilibre ( $T_C - T_{\text{éq}}$ ) durant les mesures pompe-sonde. Une évolution linéaire est observée.



# Annexe H : Évolution de l'aimantation totale des alliages $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$ et $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$

Dans le chapitre IV nous avons mesuré la désaimantation ultrarapide au seuil  $\text{Co L}_3$  et  $\text{Dy M}_5$ . Nous pouvons considérer que nos mesures sont proportionnelles au moment magnétique total du Co et du Dy (voir Annexe B). Comme nous connaissons le moment magnétique du Co et du Dy avant l'excitation laser pour les deux alliages  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  et  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  nous pouvons tracer leurs évolutions en fonction du temps. Nous pouvons aussi déterminer l'aimantation de chaque sous réseau. Pour cela nous multiplions le signal tr-XMCD normalisé de chaque sous réseau par la valeur de son moment magnétique à l'équilibre ainsi que par sa concentration dans l'alliage. La somme de l'aimantation des sous réseaux de Co et de Dy donne l'aimantation totale ( $3d + 4f$ ) de l'alliage. La Figure 6 représente l'aimantation du sous réseau de Co, de Dy et l'aimantation totale pour l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  (à gauche) et  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  (à droite).

Pour l'alliage  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  (à gauche) et d'après la Figure 6, l'aimantation totale de l'alliage vaut  $0,68 \mu_B/\text{at}$  avant l'excitation laser. Environ 410 fs après l'excitation laser, elle diminue de 80 % et vaut  $0,14 \mu_B/\text{at}$ . Environ 1,5 ps après l'excitation laser, elle augmente et revient quasiment à sa valeur d'équilibre.

Pour l'alliage  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  (à droite) et d'après la Figure 6, l'aimantation totale de l'alliage vaut environ  $0,24 \mu_B/\text{at}$  avant l'excitation laser. Environ 270 fs après l'excitation laser, elle augmente et vaut  $0,58 \mu_B/\text{at}$ . Ceci correspond à une multiplication par 2,4 de l'aimantation totale de l'alliage en 270 fs. À ma connaissance, il s'agit de l'augmentation la plus rapide est la plus importante de l'aimantation totale d'un matériau magnétique. Environ 1 ps après l'impulsion laser, l'aimantation totale diminue jusqu'à atteindre  $0 \mu_B/\text{at}$  et semble changer de signe.

Malgré la caractérisation par VSM-SQUID de  $T_{\text{comp}}$ , une erreur de l'estimation de la concentration de ces alliages est possible ( $\pm 1\%$ ) mais ne remet pas en cause ces résultats. Ces résultats demandent par ailleurs à être appuyés par un modèle théorique.

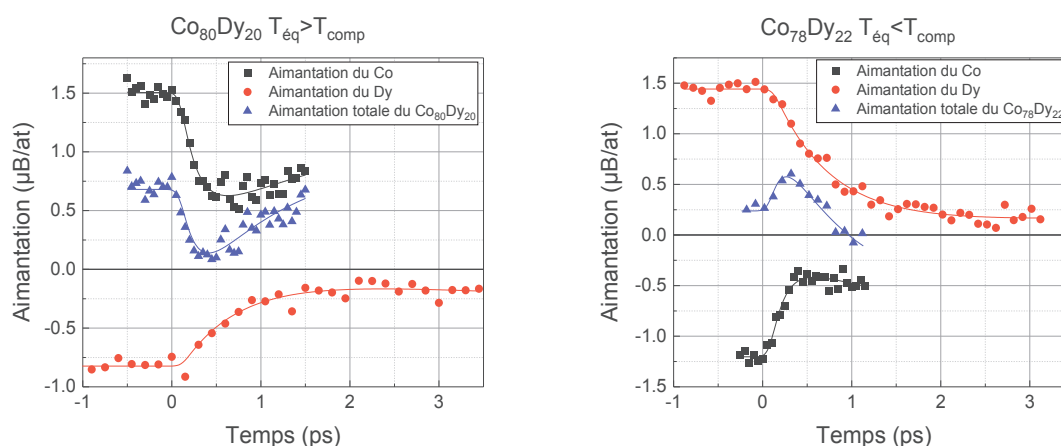


Figure 6 : Dynamique de l'aimantation du sous réseau de Dy (rond rouge), du Co (carré noir) et de l'alliage (triangle bleu) pour les alliages  $\text{Co}_{80}\text{Dy}_{20}$  (à gauche) et  $\text{Co}_{78}\text{Dy}_{22}$  (à droite).

# Acronymes

## Ordre alphabétique :

3TM : 3 Temperatures Model

AES : Auger Electron Spectroscopy

AOS : All Optical Switching

BI : Bombardement Ionique

EA : Easy Axis

FWHM : Full Width at Half Maximum

HA : Hard Axis

$H_C$  : champ magnétique coercitif

IR : Infra-Rouge

m3TM : microscopic 3 Temperature Model

MCDAD : Magnetic Circular Dichroism Angular Distribution

MCP : Micro-Channel Plate

MLDAD : Magnetic Linear Dichroism Angular Distribution

MOKE : Magneto-Optic Kerr Effect

PPMS : Physical Properties Measurement System

$T_C$  : Température de Curie

$T_{comp}$  : Température de compensation

$T_{eq}$  : Température à l'équilibre

TEY : Total Electron Yield

tr- : Time Resolved - (ce terme peut s'ajouter à différentes techniques)

VSM-SQUID : Vibrating Sample Magnetometer Super conducting Quantum Interference Device

XAS : X-ray Absorption Spectroscopy

XMCD : X-ray Magnetic Circular Dichroism

XPS : X-ray Photoemission Spectroscopy

XRMR : X-ray Resonant Magnetic Reflectivity

YAG : Yttrium Aluminium Garnet

# Bibliographie

- [1] <https://france.emc.com/leadership/digital-universe/2014iview/executive-summary.htm>
- [2] <http://www.storagetechnology.com/?p=922>
- [3] J. C. Slonczewski, "*Current-driven excitation of magnetic multilayers*", JMMM **159**, L1-L7 (1996)
- [4] L. Berger, "*Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current*", Phys. Rev. B **51**, 13 (1996)
- [5] A. V. Khvalkovskiy et al, "*Erratum: Basic principles of STT-MRAM cell operation in memory arrays*", J. Phys. D: Appl. Phys. **46**, 139601 (2013)
- [6] A. J. Schellekens et al, "*Ultrafast spin-transfer torque driven by femtosecond pulsed-laser excitation*", Nat. Commun. **5**, 4333 (2014)
- [7] G. M. Choi et al, "*Spin current generated by thermally driven ultrafast demagnetization*", Nat. Commun. **5**, 4334 (2014)
- [8] G. M. Choi et al, "*Thermal spin-transfer torque driven by the spin-dependent Seebeck effect in metallic spin-valves*", Nat. Phys. **11**, 576-581 (2015)
- [9] I. Radu et al, "*Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins*", Nature **472**, 205-209 (2011)
- [10] D. J. Hickey et al, "*Femtosecond X-ray magnetic circular dichroism absorption spectroscopy at an X-ray free electron laser*", Rev. of Sci. Inst. **87**, 033110 (2016)
- [11] S. Wienholdt et al, "*THz Switching of Antiferromagnets and Ferrimagnets*", Phys. Rev. Letters **108**, 247207 (2012)
- [12] E. Beaurepaire et al, "*Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel*", Phys. Rev. Letters **76**, 22 (1996)
- [13] A. Scholl et al, "*Ultrafast Spin Dynamics of Ferromagnetic Thin Films Observed by fs Spin-Resolved Two-Photon Photoemission*", Phys. Rev. Letters **79**, 25 (1997)
- [14] E. Beaurepaire et al, "*Spin dynamics in CoPt<sub>3</sub> alloy films: A magnetic phase transition in the femtosecond time scale*", Phys. Rev. B **58**, 18 (1998)
- [15] T. Kise et al, "*Ultrafast Spin Dynamics and Critical Behavior in Half-Metallic Ferromagnet: Sr<sub>2</sub>FeMoO<sub>6</sub>*", Phys. Rev. Letters **85**, 9 (2000)
- [16] L. Guidoni et al, "*Magneto-optics in the Ultrafast Regime: Thermalization of Spin Populations in Ferromagnetic Films*" Phys. Rev. Letters **89**, 1 (2002)
- [17] H.-S. Rhie et al, "*Femtosecond Electron and Spin Dynamics in Ni/W(110) Films*", Phys. Rev. Letters **90**, 24 (2003)
- [18] E. Beaurepaire et al, "*Coherent terahertz emission from ferromagnetic films excited by femtosecond laser pulses*" Appl. Phys. Letters **84**, 18 (2004)
- [19] J.-Y. Bigot et al, "*Ultrafast magnetization dynamics in ferromagnetic cobalt: The role of the anisotropy*" Chemical Physics **318**, 137-146 (2005)
- [20] M. Lisowski et al, "*Femtosecond Electron and Spin Dynamics in Gd(0001) Studied by Time-Resolved Photoemission and Magneto-optics*", Phys. Rev. Letters **95**, 137402 (2005)

- [21] M. Cinchetti et al, "*Spin-Flip Processes and Ultrafast Magnetization Dynamics in Co: Unifying the Microscopic and Macroscopic View of Femtosecond Magnetism*", Phys. Rev. Letters **97**, 177201 (2006)
- [22] M. Binder et al, "*Magnetization dynamics of the ferrimagnet CoGd near the compensation of magnetization and angular momentum*", Phys. Rev. B **74**, 134404 (2006)
- [23] C. D. Stanciu et al, "*Ultrafast spin dynamics across compensation points in ferrimagnetic GdFeCo : The role of angular momentum compensation*", Phys. Rev. B **73**, 220402(R) (2006)
- [24] C. D. Stanciu et al, "*All-Optical Magnetic Recording with Circularly Polarized Light*", Phys. Rev. Letters **99**, 047601 (2007)
- [25] C. Stamm et al, "*Femtosecond modification of electron localization and transfer of angular momentum in nickel*", Nat. Mater. **6**, 740-743 (2007)
- [26] F. Dalla Longa et al, "*Influence of photon angular momentum on ultrafast demagnetization in nickel*", Phys. Rev. B **75**, 224431 (2007)
- [27] U. Atxitia et al, "*Micromagnetic modeling of laser-induced magnetization dynamics using the Landau-Lifshitz-Bloch equation*", Appl. Phys. Letters **91**, 232507 (2007)
- [28] G. Malinowski et al, "*Control of speed and efficiency of ultrafast demagnetization by direct transfer of spin angular momentum*", Nat. Phys. **4**, 855 (2008)
- [29] E. Carpene et al, "*Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron films*", Phys. Rev. B **78**, 174422 (2008)
- [30] B. Koopmans et al, "*Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization*", Nat. Materials **9**, 259 (2010)
- [31] J.-Y. Bigot et al, "*Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses*", Nat. Physics **5**, 515-520 (2009)
- [32] D. Steiauf et al, "*Elliott-Yafet mechanism and the discussion of femtosecond magnetization dynamics*", Phys. Rev. B **79**, 140401(R) (2009)
- [33] S. Mizukami et al, "*Ultrafast Demagnetization for Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> and Half-metallic Co<sub>2</sub>MnSi Heusler Alloy Films*", Journal of Phys.: Conference Series **200**, 042017 (2010)
- [34] I. Radu et al, "*Laser-Induced Magnetization Dynamics of Lanthanide-Doped Permalloy Thin Films*", Phys. Rev. Letters **102**, 117201 (2009)
- [35] K. Vahaplar et al, "*Ultrafast Path for Optical Magnetization Reversal via a Strongly Nonequilibrium State*", Phys. Rev. Letters **103**, 117201 (2009)
- [36] J. W. Kim et al, "*Ultrafast spin demagnetization by non-thermal electrons of TbFe alloy film*", Appl. Phys. Letters **94**, 192506 (2009)
- [37] A. Kirilyuk et al, "*Ultrafast optical manipulation of magnetic order*", Rev. Modern Phys. **82**, 2731-2761 (2010)
- [38] U. Atxitia et al, "*Evidence for thermal mechanisms in laser-induced femtosecond spin dynamics*", Phys. Rev. B **81**, 174401 (2010)
- [39] C. Boeglin et al, "*Distinguishing the ultrafast dynamics of spin and orbital moments in solids*", Nature **465**, 458-462 (2010)
- [40] M. Battiato et al, "*Superdiffusive Spin Transport as a Mechanism of Ultrafast Demagnetization*", Phys. Rev. Letters **105**, 027203 (2010)

- [41] A. B. Schmidt et al, "*Ultrafast magnon generation in an Fe film on Cu(100)*", Phys. Rev. Letters **105**, 197401 (2010)
- [42] K. C. Kuiper et al, "*Nonlocal ultrafast magnetization dynamics in the high fluence limit*", Journal of Appl. Phys. **109**, 07D316 (2011)
- [43] M. Wietstruk et al, "*Hot-electron driven enhancement of spin-lattice coupling in Gd and Tb 4f ferromagnets observed by femtosecond X-ray magnetic circular dichroism*", Phys. Rev. Letters **106**, 127401 (2011)
- [44] A. Weber et al, "*Ultrafast demagnetization dynamics of thin Fe/W(110) films: Comparison of time- and spin-resolved photoemission with time-resolved magneto-optic experiments*" Phys. Rev. B **84**, 132412 (2011)
- [45] A. Melnikov et al, "*Ultrafast Transport of Laser-Excited Spin-Polarized Carriers in Au/Fe/MgO(001)*", Phys. Rev. Letters **107**, 076601 (2011)
- [46] K. Carva et al, "*Ab Initio Investigation of the Elliott-Yafet Electron-Phonon Mechanism in Laser-Induced Ultrafast Demagnetization*", Phys. Rev. Letters **107**, 207201 (2011)
- [47] J. H. Mentink et al, "*Ultrafast Spin Dynamics in Multisublattice Magnets*", Phys. Rev. Letters **108**, 057202 (2012)
- [48] M. Sultan, "*Ultrafast Magnetization Dynamics of Lanthanide Metals and alloys*", PhD thesis, Université de Berlin (2012)
- [49] D. Rudolf, "*Ultrafast magnetization enhancement in metallic multilayers driven by superdiffusive spin current*", Nat. Commun. **3**, 1037 (2012)
- [50] K. Vahaplar et al, "*All-optical magnetization reversal by circularly polarized laser pulses: Experiment and multiscale modeling*", Phys. Rev. B **85**, 104402 (2012)
- [51] T. A. Ostler et al, "*Ultrafast heating as a sufficient stimulus for magnetization reversal in a ferrimagnet*", Nat. Commun. **3**, 666 (2012)
- [52] T. Roth et al, "*Temperature Dependence of Laser-Induced Demagnetization in Ni: A Key for Identifying the Underlying Mechanism*", Phys. Rev. X **2**, 021006 (2012)
- [53] U. Atxitia et al, "*Landau-Lifshitz-Bloch equation for ferrimagnetic materials*", Phys. Rev. B **86**, 104414 (2012)
- [54] R. Medapalli et al, "*Efficiency of ultrafast laser-induced demagnetization in  $Gd_xFe_{100-x-y}Co_y$  alloys*", Phys. Rev. B **86**, 054442 (2012)
- [55] V. López-Flores et al, "*Time-resolved x-ray magnetic circular dichroism study of ultrafast demagnetization in a CoPd ferromagnetic film excited by circularly polarized laser pulse*", Phys. Rev. B **86**, 014424 (2012)
- [56] M. Battiato et al, "*Theory of laser-induced ultrafast superdiffusive spin transport in layered heterostructures*", Phys. Rev. B **86**, 024404 (2012)
- [57] R. Carley et al, "*Femtosecond Laser Excitation Drives Ferromagnetic Gadolinium out of Magnetic Equilibrium*", Phys. Rev. B **109**, 027401 (2012)
- [58] T. Wang et al, "*Femtosecond Single-Shot Imaging of Nanoscale Ferromagnetic Order in Co/Pd Multilayers Using Resonant X-Ray Holography*", Phys. Rev. Letters **108**, 267403 (2012)
- [59] B. Vodungbo et al, "*Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network*", Nat. Commun. **3**, 999 (2012)
- [60] A. Kirilyuk et al, "*Laser-induced magnetization dynamics and reversal in ferrimagnetic alloys*", Rep. Prog. Phys. **76**, 026501 (2013)

- [61] C. E. Graves et al, "Nanoscale spin reversal by non-local angular momentum transfer following ultrafast laser excitation in ferrimagnetic GdFeCo", *Nat. Materials* **12**, 293-298 (2013)
- [62] A. Mekonnen et al, "Role of the inter-sublattice exchange coupling in short-laser-pulse-induced demagnetization dynamics of GdCo and GdCoFe alloys", *Phys. Rev. B* **87**, 180406(R) (2013)
- [63] A. J. Schellekens et al, "Comparing Ultrafast Demagnetization Rates Between Competing Models for Finite Temperature Magnetism", *Phys. Rev. Letters* **110**, 217204 (2013)
- [64] K. Carva et al, "Ab initio theory of electron-phonon mediated ultrafast spin relaxation of laser excited hot electrons in transition-metal ferromagnets", *Phys. Rev. B* **87**, 184425 (2013)
- [65] S. Wienholdt et al, "Orbital-resolved spin model for thermal magnetization switching in rare-earth-based ferrimagnets", *Phys. Rev. B* **88**, 020406(R) (2013)
- [66] Y. Ren et al, "Correlation Between Ultrafast Demagnetization Process and Gilbert Damping in Amorphous TbFeCo Films", *IEEE Trans. on Magnetics* **49**, 7 (2013)
- [67] E. Turgut et al, "Controlling the Competition between Optically Induced Ultrafast Spin-Flip Scattering and Spin Transport in Magnetic Multilayers", *Phys. Rev. Letters* **110**, 197201 (2013)
- [68] C. Illg et al, "Ultrafast demagnetization after laser irradiation in transition metals: Ab initio calculations of the spin-flip electron-phonon scattering with reduced exchange splitting", *Phys. Rev. B* **88**, 214404 (2013)
- [69] A. Eschenlohr et al, "Ultrafast spin transport as key to femtosecond demagnetization", *Nature Mater.* **12**, 332 (2013)
- [70] R. Medapalli et al, "The role of magnetization compensation point for efficient ultrafast control of magnetization in  $Gd_{24}Fe_{66.5}Co_{9.5}$  alloy", *Eur. Phys. J. B* **86**, 183 (2013)
- [71] V. López-Flores et al, "Role of critical spin fluctuations in ultrafast demagnetization of transition-metal rare-earth alloys", *Phys. Rev. B* **87**, 214412 (2013)
- [72] Y. Gong et al, "Femtosecond Laser Pulse Induced Ultrafast Demagnetization in Fe/GaAs Thin Films", *IEEE Trans. on Magnetics* **49**, 7 (2013)
- [73] G. P. Zhang et al, "Thermal or nonthermal? That is the question for ultrafast spin switching in GdFeCo", *J. Phys.: Condens. Matter* **25**, 366002 (2013)
- [74] A. R. Khorsand et al, "Element-Specific Probing of Ultrafast Spin Dynamics in Multisublattice Magnets with Visible Light", *Phys. Rev. Letters* **110**, 107205 (2013)
- [75] B. Y. Mueller et al, "Feedback Effect during Ultrafast Demagnetization Dynamics in Ferromagnets", *Phys. Rev. Letters* **111**, 167204 (2013)
- [76] J. Barker et al, "Two-magnon bound state causes ultrafast thermally induced magnetisation switching", *Sci. Rep.* **3**, 3262 (2013)
- [77] V. G. Bar'yakhtar et al, "Exchange Relaxation as a Mechanism of the Ultrafast Reorientation of Spins in a Two-Sublattice Ferrimagnet", *JETP Letters* **98**, 5 (2013)
- [78] A. J. Schellekens et al, "Comparing Ultrafast Demagnetization Rates Between Competing Models for Finite Temperature Magnetism", *Phys. Rev. Letters* **110**, 217204 (2013)
- [79] M. Haag et al, "Role of electron-magnon scatterings in ultrafast demagnetization", *Phys. Rev. B* **90**, 014417 (2014)
- [80] N. Berggaard et al, "Ultrafast angular momentum transfer in multisublattice ferrimagnets", *Nat. Commun.* **5**, 3466 (2014)



- [81] A. J. Schellekens et al, " *Ultrafast spin-transfer torque driven by femtosecond pulsed-laser excitation*", Nat. Commun **5**, 4333 (2014)
- [82] S. Mangin et al, " *Engineered materials for all-optical helicity-dependent magnetic switching*", Nat. Materials **13**, 286-292 (2014)
- [83] C.-H. Lambert et al, " *All-optical control of ferromagnetic thin films and nanostructures*", Science **345**, 1337-1340 (2014)
- [84] U. Atxitia et al, " *Controlling the polarity of the transient ferromagneticlike state in ferrimagnets*", Phys. Rev. B **89**, 224421 (2014)
- [85] R. F. L. Evans et al, " *Ultrafast thermally induced magnetic switching in synthetic ferrimagnets*", Appl. Phys. Letters **104**, 082410 (2014)
- [86] V. N. Krivoruchko, " *Magnetization dynamics of a two-sublattice ferrimagnet near the angular momentum compensation point*", Low Temp. Phys. **40**, 1 (2014)
- [87] A. Foghini et al, " *Ultrafast reduction of the total magnetization in iron*", Appl. Phys. Letters **104**, 032402 (2014)
- [88] N. Moisan et al, " *Investigating the role of superdiffusive currents in laser induced demagnetization of ferromagnets with nanoscale magnetic domains*", Sci. Rep. **4**, 4658 (2014)
- [89] A. Eschenlohr et al, " *Role of spin-lattice coupling in the ultrafast demagnetization of  $Gd_{1-x}Tb_x$  alloys*", Phys. rev. B **89**, 214423 (2014)
- [90] S. Günther et al, " *Testing spin-flip scattering as a possible mechanism of ultrafast demagnetization in ordered magnetic alloys*", Phys. Rev. B **90**, 180407 (2014)
- [91] M. Fähnle et al, " *Theory of Ultrafast Demagnetization after Femtosecond Laser Pulses*", Acta Phys. Polonica A **127**, 2 (2015)
- [92] B. Frietsch et al, " *Disparate ultrafast dynamics of itinerant and localized magnetic moments in gadolinium metal* ", Nat. Communications **6**, 8262 (2015)
- [93] D. Hinzke et al, " *Multiscale modeling of ultrafast element-specific magnetization dynamics of ferromagnetic alloys*", Phys. Rev. B **92**, 054412 (2015)
- [94] P. Nieves et al, " *The classical two-sublattice Landau–Lifshitz–Bloch equation for all temperatures*", Low Temp. Phys. **41**, 9 (2015)
- [95] J. Wieczorek et al, " *Separation of ultrafast spin currents and spin-flip scattering in Co/Cu(001) driven by femtosecond laser excitation employing the complex magneto-optical Kerr effect*", Phys. Rev. B **92**, 174410 (2015)
- [96] M. Teichmann et al, " *Transient band structures in the ultrafast demagnetization of ferromagnetic gadolinium and terbium*", Phys. Rev. B **91**, 014425 (2015)
- [97] F. Willems et al, " *Probing ultrafast spin dynamics with high-harmonic magnetic circular dichroism spectroscopy*", Phys. Rev. B **92**, 220405(R) (2015)
- [98] A. Baral et al, " *Magnetic switching dynamics due to ultrafast exchange scattering: A model study*", Phys. Rev. B **91**, 100402(R) (2015)
- [99] O. J. Suarez et al, " *Ultrafast relaxation rates and reversal time in disordered ferrimagnets*", Phys. Rev. B **92**, 144425 (2015)

- [100] W. Töws et al, "*Many-Body Theory of Ultrafast Demagnetization and Angular Momentum Transfer in Ferromagnetic Transition Metals*", Phys. Rev. Letters **115**, 217204 (2015)
- [101] G. P. Zhang et al, "*Magnetic spin moment reduction in photoexcited ferromagnets through exchange interaction quenching: beyond the rigid band approximation*", J. Phys.: condens. Matter **27**, 206003 (2015)
- [102] E. Carpena et al, "*Ultrafast demagnetization of metals: Collapsed exchange versus collective excitations*", Phys. Rev. B **91**, 174414 (2015)
- [103] N. Berggaard et al, "*Irreversible transformation of ferromagnetic ordered stripe domains in single-shot infrared-pump/resonant-x-ray-scattering-probe experiments*", Phys. Rev. B **91**, 054416 (2015)
- [104] V. N. Krivoruchko, "*Longitudinal spin dynamics in ferrimagnets: Multiple spin wave nature of longitudinal spin excitations*", Phys. Rev. B **94**, 054434 (2016)
- [105] G. P. Zhang et al, "*Ultrafast reduction of exchange splitting in ferromagnetic nickel*", J. Phys.: Condens. Matter **28**, 236004 (2016)
- [106] G. Salvatella et al, "*Ultrafast demagnetization by hot electrons : Diffusion or super-diffusion ?*", Structural Dynamics **3**, 055101 (2016)
- [107] N. Berggaard et al, "*Hot-Electron-Induced Ultrafast Demagnetization in Co/Pt Multilayers*", Phys. Rev. Letters **117**, 147203 (2016)
- [108] B. Vodungbo et al, "*Indirect excitation of ultrafast demagnetization*", Sci. Rep. **6**, 18970 (2016)
- [109] V. N. Gridnev, "*Ultrafast heating-induced magnetization switching in ferrimagnets*", J. Phys.: Condens. Matter **28**, 476007 (2016)
- [110] A. M. Kalashnikova et al, "*Exchange scattering as the driving force for ultrafast all-optical and bias-controlled reversal in ferrimagnetic metallic structures*", Phys. Rev. B **93**, 054424 (2016)
- [111] M. Elyasi et al, "*Optically induced spin-dependent diffusive transport in the presence of spin-orbit interaction for all-optical magnetization reversal*", Phys. Rev. B **94**, 024417 (2016)
- [112] E. Terrier, "*Désaimantation induite par impulsions laser femtosecondes dans des nanostructures d'oxydes de fer*", PhD thesis, Université de Strasbourg (2016)
- [113] I. Rettig et al, "*Itinerant and Localized Magnetization Dynamics in Antiferromagnetic Ho*", Phys. Rev. Letters **116**, 257202 (2016)
- [114] B. Frietsch et al, "*Fluence-dependent dynamics of the 5d<sub>5</sub> exchange splitting in Gd metal after femtosecond laser excitation*", JJAP **55**, 07MD02 (2016)
- [115] R. Moreno et al, "*Conditions for thermally induced all-optical switching in ferrimagnetic alloys: Modeling of TbCo*", Phys. Rev. B **96**, 014409 (2017)
- [116] U. Atxitia et al, "*Fundamentals and applications of the Landau–Lifshitz–Bloch equation*", J. Phys.: condens. Matter **50**, 033003 (2017)
- [117] A. Eschenlohr et al, "*Spin currents during ultrafast demagnetization of ferromagnetic bilayers*", J. Phys.: Condens. Matter **29**, 384002 (2017)
- [118] R. B. Wilson et al, "*Ultrafast magnetic switching of GdFeCo with electronic heat currents*", Phys. rev. B **95**, 180409(R) (2017)



- [119] E. Turgut et al, "*Stoner versus Heisenberg: Ultrafast exchange reduction and magnon generation during laser-induced demagnetization*", Phys. Rev. B **94**, 220408(R) (2016)
- [120] K. Bobowski et al, "*Influence of the pump pulse wavelength on the ultrafast demagnetization of Gd(0001) thin films*", J. Phys.: Condens Matter **29**, 234003 (2017)
- [121] O. Morandi et al, "*Ultrafast dynamics in ferrimagnetic materials with a quantum Monte Carlo atomistic model*", Phys. Rev. B **96**, 024441 (2017)
- [122] S. Eich et al, "*Band structure evolution during the ultrafast ferromagnetic-paramagnetic phase transition in cobalt*", Sci. Adv. **3**, e1602094 (2017)
- [123] E. Jal et al, "*Structural dynamics during laser-induced ultrafast demagnetization*", Phys. Rev. B **95**, 184422 (2017)
- [124] J.-Y. Chen et al, "*All-Optical Switching of Magnetic Tunnel Junctions with Single Subpicosecond Laser Pulses*", Phys. Rev. Applied **7**, 021001 (2017)
- [125] S. Gerlach et al, "*Modeling ultrafast all-optical switching in synthetic ferrimagnets*", Phys. Rev. B **95**, 224435 (2017)
- [126] V. Shokeen et al, "*Spin Flips versus Spin Transport in Nonthermal Electrons Excited by Ultrashort Optical Pulses in Transition Metals*", Phys. Rev. Letters **119**, 107203 (2017)
- [127] I. Radu et al, "*Ultrafast and Distinct Spin Dynamics in Magnetic Alloys*", SPIN. **5**, 1550004 (2015)
- [128] T. Fan et al, "*Bright circularly polarized soft X-ray high harmonics for X-ray magnetic circular dichroism*", PNAS **112**, 46 (2015)
- [129] M. Silly et al, "*Pump-probe experiments at the TEMPO beamline using the low- $\alpha$  operation mode of Synchrotron SOLEIL*", JSR **24**, 886-897 (2017)
- [130] J.-Y. Bigot et al, "*Ultrafast magnetization dynamics of nanostructures*", Ann. Phys. **525**, 1-2 (2013)
- [131] J. Stöhr et al, "*Magnetism From fundamentals to nanoscale dynamics*" Springer series in Solid-State Science (2006)
- [132] I. A. Campbell, "*Indirect exchange for rare earths in metals*", J. Phys.F: Metal Phys. **2**, L47-L50 (1972)
- [133] M. S. S. Brooks et al, "*3d-5d band magnetism in rare earth-transition metal intermetallics: total and partial magnetic moments of the RFe<sub>2</sub> (R=Gd-Yb) Laves phase compounds*", J. Phys.: Condens. Matter **3**, 2357-2371 (1991)
- [134] G.-M. Choi et al, "*Spin current generated by thermally driven ultrafast demagnetization*", Nat. Commun. **5**, 4334 (2014)
- [135] J. L. Erskine et al, "*Calculation of the M<sub>23</sub> magneto-optical absorption spectrum of ferromagnetic nickel*", Phys. Rev. B **12**, 11 (1975)
- [136] G. Schütz et al, "*Absorption of Circularly Polarized X Rays in Iron*", Phys. Rev. Letters **58**, 7 (1987)
- [137] B. T. Thole et al, "*X-Ray Circular Dichroism as a Probe of Orbital Magnetization*", Phys. Rev. Letters **68**, 12 (1992)
- [138] P. Carra et al, "*X-Ray Circular Dichroism and Local Magnetic Fields*", Phys. Rev. Letters **70**, 5 (1993)
- [139] F. Sirotti et al, "*Multiphoton k-resolved photoemission from gold surface states with 800-nm femtosecond laser pulses*", Phys. Rev. B **90**, 035401 (2014)
- [140] [www.synchrotron-soleil.fr](http://www.synchrotron-soleil.fr)
- [141] [www.helmholtz-berlin.de](http://www.helmholtz-berlin.de)
- [142] S. Khan et al, "*Femtosecond Undulator Radiation from Sliced Electron Bunches*", Phys. Rev. Letters **97**, 074801 (2006)

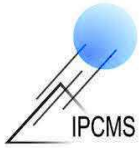
- [143] K. Holldack et al, "*FemtoSpeX: a versatile optical pump–soft X-ray probe facility with 100 fs X-ray pulses of variable polarization*", JSR **21(5)**, 1090-1104 (2014)
- [144] N. Pontius et al, "*The FemtoSpeX facility at BESSY II*", Journal of large-scale research facilities **2**, A46 (2016)
- [145] R. Nakajima et al, "*Electron-yield saturation effects in L-edge x-ray magnetic circular dichroism spectra of Fe, Co, and Ni*", Phys. Rev. B **59**, 9 (1999)
- [146] M. Pilard et al, "*Magnetic properties of coupled ultrathin NiO/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(001) films*", Phys. Rev. B **76**, 214436 (2007)
- [147] [www.synchrotron-soleil.fr/fr/lignes-de-lumiere/deimos](http://www.synchrotron-soleil.fr/fr/lignes-de-lumiere/deimos)
- [148] P. Ohresser et al, "*DEIMOS: A beamline dedicated to dichroism measurements in the 350-2500 eV energy range*", Rev. Sci. Instruments **85**, 013106 (2014)
- [149] [www.helmholtz-berlin.de/pubbin/igama\\_output?modus=einzel&sprache=en&gid=1616&typoid=50740](http://www.helmholtz-berlin.de/pubbin/igama_output?modus=einzel&sprache=en&gid=1616&typoid=50740)
- [150] R. Abrudan et al, "*ALICE-An advanced reflectometer for static and dynamic experiments in magnetism at synchrotron radiation facilities*", Rev. Sci. Instruments **86**, 063902 (2015)
- [151] N. Bergéard, "*Matériaux magnétiques pour l'étude de la dynamique de l'aimantation*", PhD thesis, Université Paris Sud 11, (2010)
- [152] F. Polack et al, "*TEMPO: a New Insertion Device Beamline at SOLEIL for Time Resolved Photoelectron Spectroscopy Experiments on Solids and Interfaces*", AIP Conf. Proceedings **1234**, 185 (2010)
- [153] J.M. Esteva et al, "*Photoabsorption and electron yields of La and Gd in the vicinity of the 3d thresholds*", JESRP **31**, 1 (1983)
- [154] [www.synchrotron-soleil.fr/fr/lignes-de-lumiere/tempo](http://www.synchrotron-soleil.fr/fr/lignes-de-lumiere/tempo)
- [155] N. Bergéard et al, "*Time resolved Photoelectron spectroscopy using synchrotron radiation time structure*", J. Synchrotron Radiat. **18**, 245 (2011)
- [156] P. Auger, "*Etude expérimentale des directions d'émission des photoélectrons*", J. Phys. Radium **8**, 2 (1927)
- [157] [www.helmholtz-berlin.de/pubbin/igama\\_output?modus=einzel&sprache=en&gid=1644&typoid=5074](http://www.helmholtz-berlin.de/pubbin/igama_output?modus=einzel&sprache=en&gid=1644&typoid=5074)
- [158] V.G. Harris et al, "*Structural Origins of Magnetic Anisotropy in Sputtered Amorphous Tb-Fe Films*", Phys. Rev. Letters **69**, 13 (1992)
- [159] A. Mougin, "*Anisotropie magnétique, structure en domaines et renversement d'aimantation : déformations, couplages, champ magnétique et courant électrique comme leviers d'action*", HDR, Université Paris-Sud 11 (2011)
- [160] L. J. Tao et al, "*Magnetic properties of amorphous GdCo films*", AIP Conf. Proc. **18**, 641 (1974)
- [161] N. H. Duc et al, "*Exchange interactions in rare earth-transition metal compounds*", JMMM **124**, 305 (1993)
- [162] P. Hansen et al, "*Magnetic and magneto-optical properties of rare-earth transition-metal alloys containing Gd, Tb, Fe, Co*", J. Appl. Phys. **66**, 756 (1989)
- [163] L. Z. Mezey et al, "*The Surface Free Energies of Solid Chemical Elements: Calculation from Internal Free Enthalpies of Atomization*", Jap. J. Appl. Phys. **21**, 1569-1571 (1982)
- [164] R. Ahuja et al, "*Electronic structure, magnetism, and Fermi surfaces of Gd and Tb*", Phys. Rev. B **50**, 5147 (1994)
- [165] P. Hansen et al, "*Magnetic and magneto-optical properties of rareearth transitionmetal alloys containing Dy, Ho, Fe, Co*", J. Appl. Phys. **69**, 3194 (1991)

- [166] M. Mansuripur, "*Magneto-optical recording in thin amorphous films of rare-earth transition-metal alloys*", *JVSTSF* **6**, 1864-1865 (1988)
- [167] K. Chen et al, "*Temperature-dependent magnetic properties of ferrimagnetic DyCo<sub>3</sub> alloy films*", *Phys. Rev. B* **91**, 024409 (2015)
- [168] K. Chen et al, "*Observation of an atomic exchange bias effect in DyCo<sub>4</sub> film*", *Sci. Rep.* **8**, 18377 (2015)
- [169] A. R. Khorsand et al, "*Optical excitation of thin magnetic layers in multilayer structures*", *Nat. Matter.* **13**, 101 (2014)
- [170] A. Eschenlohr et al, "*Reply : Optical excitation of thin magnetic layers in multilayer structures*", *Nat. Matter.* **13**, 102 (2014)
- [171] [http://henke.lbl.gov/optical\\_constants](http://henke.lbl.gov/optical_constants)
- [172] W. S. M. Werner et al, "*Optical Constants and Inelastic Electron-Scattering Data for 17 Elemental Metals*", *J. Phys. Chem. Ref. Data* **38**, 4 (2009)
- [173] J. Hohlfeld et al, "*Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals*" *Chemical physics* **251**, 237-258 (2000)
- [174] D. Gall, "*Electron mean free path in element metals*", *J. Appl. Phys.* **119**, 085101 (2016)
- [175] E. V. Chulkov et al, "*Electronic Excitations in metals and at metal surfaces*", *Chem. Rev.* **106**, 4160-4206 (2006)
- [176] S. Wakoh et al, "*Calculation of the spin wave energy of iron, cobalt and nickel*", *Journal de Physique Colloques*, **32**, C1-1073 (1971)
- [177] S. O. Kasap, "*Principles of Electronic Materials and Devices*", Second Edition, (© McGraw-Hill, (2002)
- [178] D. K. Dijken et al, "*Laser penetration spike welding: a welding tool enabling novel process and design opportunities*", *Photon Processing in Microelec. Photonics* **4637** (2002)
- [179] C. Lei et al, "*Hot-electron-driven charge transfer processes on O<sub>2</sub>/Pt(111) surface probed by ultrafast extreme-ultraviolet pulses*", *Phys. Rev. B* **66**, 245420 (2002)
- [180] Y. Teramura et al, "*Effect of Coulomb Interaction on the X-Ray Magnetic Circular Dichroism Spin Sum Rule in 3d Transition Elements*", *J. Phys. Soc. Jpn* **65**, 4 (1996)
- [181] Y. Teramura et al, "*Effect of Coulomb Interaction on the X-Ray Magnetic Circular Dichroism Spin Sum Rule in Rare Earths*", *J. Phys. Soc. Jpn* **65**, 9 (1996)
- [182] R. Wu et al, "*Limitation of the Magnetic-Circular-Dichroism Spin Sum Rule for Transition Metals and Importance of the Magnetic Dipole Term*" *Phys. Rev. Letters* **73**, 14 (1994)
- [183] G. Y. Guo et al, "*First-principles calculation of magnetic x-ray dichroism in Fe and Co multilayers*", *Phys. Rev. B* **50**, 6 (1994)
- [184] W. Hübner et al, "*Ultrafast spin dynamics in nickel*", *Phys. Rev. B* **58**, 10 (1998)
- [185] W. Hübner et al, "*Femtosecond spin dynamics probed by linear and nonlinear magneto-optics*", *JMMM* **189**, 101-105 (1998)
- [186] G.P. Zhang et al, "*Laser-Induced Ultrafast Demagnetization in Ferromagnetic Metals*", *Phys. Rev. Letters* **85**, 14 (2000)





Tom FERTÉ



# Dynamique ultrarapide de l'aimantation dans les alliages de métaux de transitions et de terres rares



## Résumé

Mon travail décrit la dynamique de l'aimantation pico et femtoseconde mesurée grâce à la structure temporelle des rayons X. J'ai étudié la désaimantation ultrarapide des métaux de transitions (MT) et des terres rares (TR) dans différents alliages MT-TR sous forme de films minces ( $\sim 20$  nm). Mes études reposent principalement sur les techniques expérimentales sensibles à l'aimantation et résolues en temps : tr-XMCD et tr-MCDAD. Ces deux techniques expérimentales offrent par ailleurs une sélectivité chimique qui permet de mesurer séparément la désaimantation ultrarapide des MT et des TR. Elles reposent sur des montages expérimentaux pompe-sonde que j'ai utilisé dans les synchrotrons SOLEIL et BESSY II.

**Mots clés :** Dynamique ultrarapide de l'aimantation, désaimantation ultrarapide, femtomagnétisme, alliages de métaux de transitions et de terres rares, matière condensée, couches minces

## Résumé en anglais

My PhD work describes the pico and femtosecond magnetization dynamics using the time structure of X-rays. I studied the ultrafast demagnetization of thin films ( $\sim 20$  nm) for various transition metals (TM) - rare earths (RE) alloys. My studies have been performed by using two experimental techniques which are sensitive to the magnetization and which are time resolved: tr-XMCD and tr-MCDAD. These two experimental techniques also show chemical selectivity allowing to distinguish the TM and RE dynamics. They are both based on pump-probe experiments which were used at the SOLEIL and BESSY II synchrotrons.

**Keywords :** Ultrafast magnetization, ultrafast demagnetization, femtomagnetism, transition metals and rare earths alloys, condensed matter, thin layer