

ÉCOLE DOCTORALE Physique Chimie-Physique (ED182)
Institut de Physique et de Chimie des Matériaux de Strasbourg

THÈSE présentée par :
Ahmed MAGHRAOUI

Soutenue le : **8 Avril 2015**

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université de Strasbourg**

Discipline/ Spécialité : Physique

**Génération d'harmoniques d'ordre élevé pour
l'étude de la dynamique des charges et de
l'aimantation de films de cobalt**

THÈSE dirigée par :

Mr. Jean-Yves BIGOT

Directeur de recherche, IPCMS, Strasbourg

RAPPORTEURS :

Mr. Eric CORMIER
Mr. Fabien QUERE

Professeur, CELIA, Bordeaux
Chargé de recherche, IRAMIS, CEA Saclay

EXAMINATEURS:

Mr. Pierre GILLIOT

Directeur de recherche, IPCMS, Strasbourg

INVITÉ

Mme. Marie BARTHELEMY

Ingénieure de recherche, IPCMS, Strasbourg

Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au sein de l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg. Je souhaite remercier Messieurs Marc DRILLON et Stefan HAACKE qui se sont succédés à la direction de l'IPCMS.

Je tiens à remercier mon directeur de thèse, Jean-Yves BIGOT, de m'avoir donné l'opportunité de travailler dans son équipe pendant ses 3 années. Merci encore pour votre confiance, votre patience et votre soutien financier, je vous remercie infiniment. Ce fût une grande chance pour moi de pouvoir apprendre avec vous.

Mes remerciements vont également à MR Eric CORMIER, Mr Fabien QUERE et Mr Pierre GILLIOT pour avoir accepté de rapporter cette thèse

Ces travaux de thèse ont été réalisés au sein du groupe Femtomag de l'IPCMS dont je tiens à remercier les membres pour ces 3 années passées à leur côté. Un immense merci à Marie Barthelemy pour ton encadrement, pour les nombreuses discussions physiques, tes conseils, ton encouragement et de ta gentillesse. Merci Mircea Vomir pour les techniques expérimentales que tu m'as enseignées. Un grand merci à Valérie Halté qui m'a initié aux techniques de spectroscopie magnéto-optique pendant mon stage de master 2, de sa gentillesse et de ses conseils. Merci Michèle Albrecht d'avoir été disponible pour tous mes problèmes électroniques et de ta gentillesse.

Un grand merci à Monica Sanches Piaia avec qui j'ai partagé le labo durant cette thèse, merci aussi pour ton aide et ton encouragement. Merci à Amani, Erwan, Vishal, Sacha Marwan et Nabila .

Merci à tous les membres du département DON avec qui j'ai passé des moments très agréables. Et en particuliers à Gilles Versini pour les techniques du vide qui m'a appris, à Gauthier Dekyndt pour les milliers de pièces mécaniques qu'a fabriquées pour moi afin de résoudre certains problèmes et à Estelle Brunette.

Une pensée à toutes les personnes de l'IPCMS que j'ai eu l'occasion de côtoyer. Une pensée va également à tous mes amis rencontrés à Strasbourg : Assil Bousid, Saber Gueddida, Amani Zagdoud, Ali et Fatma Halal, Haïfa Ben Aziza, Ali et Salsabil Jaafar, Walid et Olfa Baaziz, Mehdi Sehli et Asma Ben Brahim avec qui j'ai passé d'agréables moments.

Je dédie cette thèse à mes parents bien aimés Abderrazek et Anissa, qui ont su me soutenir malgré la distance. Sans leurs encouragements, leur amour et leur aide, je n'aurais jamais pu réaliser tout le travail que j'ai dû fournir. Je la dédie également à mes frères Nabil, Mohamed et Salah. Je dédie également cette thèse à ma belle-famille pour tout son amour et son soutien.

Enfin, un énorme merci à ma femme Ferdaous, que je ne remercierai sans doute jamais assez, ou en tout cas pas assez bien. Merci d'avoir accepté mes rentrées nocturnes du labo, tous les moments où je suis juste chiant. Merci d'être là quand je doute, d'avoir toujours autant donné, jusqu'au jour de la soutenance. Merci aussi de m'avoir donné Emna, une fille aussi merveilleuse qui a rempli notre vie de joie. Merci d'être juste toi et de me rendre heureux. Je t'aime.

Table des matières

Introduction	1
1 Introduction et généralités sur la dynamique d'aimantation et sur diverses configurations expérimentales pour l'étude de la dynamique des spins	
1.1. Dynamique des charges et de l'aimantation induite par une impulsion laser	5
1.1.1. Dynamique des charges	5
1.1.2. Dynamique des spins (modèle à trois températures)	8
1.2. Précession de l'aimantation	9
1.2.1. Moments magnétiques	9
1.2.2. Energie d'un système ferromagnétique	11
1.2.3. Equation de Landau-Lifshitz-Gilbert (Equation de LLG)	13
1.3. Techniques expérimentales	16
1.4. Effets magnéto-optiques	20
2 Source laser femtoseconde amplifiée et post-compression des impulsions à quelques cycles optiques	
2.1. Génération et amplification des impulsions femtosecondes	25
2.1.1. Oscillateur femtoseconde	25
2.1.2. Technique d'amplification à dérive de fréquence	26
2.1.2.1. Principe d'amplification à dérive de fréquence	27
2.1.2.2. Etireur et compresseur d'impulsions femtoseconde	27
2.1.3. Amplification des impulsions à dérive de fréquence	29
2.1.3.1. Amplificateur régénératif	30
2.1.3.2. Booster : Amplificateur deux passages	31
2.1.3.1. Amplificateur Multi-passage	35
2.1.4. Autres problèmes liés à l'amplification à dérive de fréquence	42
2.2. Génération d'impulsions de quelques cycles optiques	44
2.2.1. Mode de propagation dans une fibre creuse	44
2.2.2. Effet Kerr	46
2.2.2.1. Elargissement spectral par auto-modulation de phase	48
2.2.2.2. Effets de Dispersion	49
2.2.2.3. Auto-raïdissement	50
2.2.2.4. Auto-focalisation	51
2.2.2.5. Ionisation	51
2.2.3. Compression des impulsions par des miroirs dispersifs	51
2.2.4. Génération d'impulsions de quelques cycles optiques	52
2.2.4.1. Dispositif expérimental	52
2.2.4.2. Résultats expérimentaux	53

3 Génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz

3.1. Aspects microscopiques de la génération d'harmoniques	59
3.1.1. Modèle semi-classique : modèle à trois étapes.....	59
3.1.1.1. Ionisation tunnel.....	60
3.1.1.2. Accélération de l'électron libre dans le champ laser	62
3.1.1.3. Recombinaison radiative de l'électron et de l'ion parent	63
3.1.2. Modèle quantique : modèle de Lewenstein.....	66
3.2. Aspects macroscopiques de la génération d'harmoniques : (accord de phase)	71
3.2.1. Accord de phase dans un milieu dilué	72
3.2.2. Influence des effets de dispersion atomique et électronique.....	75
3.2.3. Condition d'accord de phase généralisée	76
3.3. Optimisation de la génération d'harmonique	79
3.3.1. Influence du milieu générateur	79
3.3.2. Influence de l'éclairement laser	79
3.3.3. Influence de la durée d'impulsion	80
3.4. Présentation de la ligne harmonique.....	81
3.4.1. Optimisation expérimentale de la source harmonique.....	83
3.4.1.1. Génération dans l'argon.....	84
3.4.1.1. Génération dans le néon.....	86

4 Concepts théoriques associés aux notions de dynamique de cohérence et de spin et résultats expérimentaux préliminaires de dynamique d'aimantation dans le cobalt observée dans les domaines spectraux du visible et RX

4.1. A propos de l'origine du processus de désaimantation	89
4.1.1. Interaction spin-orbite : effets cohérents et magnéto-électriques dynamiques.....	89
4.1.2. Thermalisation des spins : le modèle de Stoner et le modèle de TDDFT	93
4.1.3. Processus « spins-flip » et lien avec la précession d'aimantation du modèle de LLG....	95
4.1.4. Stratégie : étude de la désaimantation et de la précession des spins dans des films de cobalt dopés avec des atomes de terre-rare.....	97
4.2. Etude des films de cobalt dans le proche infra-rouge : expériences Kerr MO à 800 nm	97
4.2.1. Echantillons de cobalt dopés avec des terres rares et montage pompe-sonde Kerr/Faraday magnéto-optique	98
4.2.2. Résultats de dynamique d'aimantation	100
4.2.3. Modèle de précession avec non conservation du module d'aimantation	105
4.3. Etude des films de cobalt au seuil M : expériences Kerr magnéto-optiques à 60 eV	110

Conclusions et perspectives 112

Bibliographie..... 114

Introduction

En 1996 à Strasbourg, l'équipe de J.-Y. BIGOT a montré qu'il est possible de modifier l'aimantation d'un matériau ferromagnétique (film de nickel) à une échelle de temps sub-picoseconde, en utilisant des impulsions laser femtosecondes [1].

Ces travaux ont ouvert la voie à un nouveau domaine de recherche en magnétisme, appelé Femtomagnétisme, qui a pour but d'étudier la dynamique ultra-rapide des spins dans la matière aimantée. Les applications potentielles concernent notamment dans le domaine de stockage de l'information et la photonique de spins dans des structures nanométriques.

Les expériences initiales ainsi qu'ultérieurement de nombreuses autres reposaient sur des techniques de mesures magnéto-optiques (effets Kerr et Faraday) réalisées avec des impulsions laser femtosecondes dans le visible ou dans le proche infra-rouge [1-3]. Très vite, dès 1998, d'autres techniques, telles que la génération de deuxième harmonique [4] ou la photoémission de spins résolue en temps [5], sont venues confirmer l'existence de processus dynamiques ultra-rapides dans lesquels les spins sont impliqués. Des modèles phénoménologiques ou analytiques ont tenté d'expliquer ces phénomènes en mettant en avant différents mécanismes microscopiques comme par exemple l'interaction spin-orbite [6], l'interaction d'échange, l'interaction électron-phonons et spin-phonon [7] ou encore l'interaction des magnons avec leur environnement [8]. Le succès des études menées dans ce nouveau domaine de recherche motivent actuellement les groupes de recherche dans diverses directions principales visant à tirer parti des spécificités des configurations expérimentales: résolution temporelle ultime (picoseconde, femtoseconde, voire attoseconde), résolution spatiale sub-micrométrique ou nanométrique (microscopie Kerr magnéto-optique confocale ou sub-longueur d'onde par exemple), longueur d'onde des sources laser ou leur taux de répétition (source infra-rouge, TéraHertz, Rayons X, génération d'ondes acoustiques). Les types de matériaux étudiés sont également très variés comme les métaux ferromagnétiques, les métaux ou grenats ferrimagnétiques, les semi-conducteurs dopés magnétiquement, les nanoparticules super-paramagnétiques.

Singulièrement, dans ce contexte très riche, ce sont développées des expériences dans lesquelles l'énergie des photons du faisceau sonde se situe dans le domaine des rayons X. Cela présente l'avantage de pouvoir sonder la dynamique des spins des espèces chimiques qui sont responsables du magnétisme. C'est le cas en particulier des expériences de dichroïsme magnétique circulaire résolu en temps, réalisées avec la ligne femto-slicing de la source synchrotron à BESSY, qui a permis de mettre en évidence le temps de transfert entre les moments angulaire orbital et de spins au seuil L du cobalt dans des films ferromagnétique de CoPd [9]. Ces expériences nécessitent un environnement instrumental très sophistiqué (source synchrotron et manipulation du faisceau d'électrons avec une source laser intense). Les progrès technologique dans le domaine des lasers a rendu possible

de développer des sources de lumière plus accessibles couvrant la partie de l'extrême ultraviolet et des rayons X mous (10 à 100 eV). Ces sources reposent sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG pour High Harmonic Generation) à partir d'un système laser basé sur la technique d'amplification à dérive de fréquence (CPA) et la génération des rayons X dans un gaz rare [10-12]. Ces sources sont appelées source "table-top".

L'objectif de cette thèse était de développer une telle source HHG, de la caractériser et de réaliser des expériences préliminaires démontrant la possibilité de mesurer la dynamique des charges et des spins dans des films de cobalt (Co) et des films de cobalt dopés terres rares tel que le terbium (Tb).

Le premier chapitre est consacré aux processus dynamiques associés à la variation d'aimantation induite par voie optique (impulsion laser femtoseconde). Dans une première partie, je décrirai les processus physiques impliqués dans la dynamique des charges et des spins. J'y détaillerai également les deux modèles phénoménologiques à deux et à trois températures. Une deuxième partie est consacrée à l'étude de la dynamique de précession et l'influence d'anisotropie sur cette dynamique. Ensuite, les différentes configurations expérimentales utilisées pour l'étude de la dynamique d'aimantation sont décrites. La dernière partie est dédiée à la description des effets magnéto-optiques Kerr.

Le deuxième chapitre est dédié à la description et la caractérisation de la source laser Alpha $5\text{ kHz}, 30\text{ fs}, \sim 3\text{ mJ}$ basée sur l'amplification à dérive de fréquence, utilisée pour les expériences de cette thèse. Dans la première partie de ce chapitre, j'y introduirai les techniques de génération et d'amplification d'impulsions lasers femtosecondes, ainsi que les caractéristiques de la chaîne laser. La deuxième partie de ce chapitre est consacrée à la post-compression des impulsions issues de la chaîne Alpha 5 kHz à quelques cycles optiques. J'y détaillerai les différents processus non-linéaires impliqués et je finirai par la description du dispositif expérimental, ainsi que les résultats obtenus.

Le chapitre 3 est consacré à la description du processus de génération d'harmoniques élevées et de la source XUV développée dans cette thèse. Dans une première partie, nous détaillerons le modèle microscopique semi-classique proposé par Corkum pour la compréhension du processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé : le modèle à trois étapes. Ensuite, nous décrirons un modèle purement quantique proposé par Lewenstein, permettant de donner un cadre plus rigoureux à la modélisation du processus. Dans une deuxième partie, nous étudierons l'optimisation du rayonnement harmonique macroscopique. Nous rappellerons l'importance des effets macroscopiques (accord de phase, absorption ...) dans la construction du champ harmonique à partir du rayonnement du dipôle. Nous verrons quels sont de ce fait les différents paramètres sur lesquels se joue l'optimisation de l'efficacité de génération. Dans une dernière partie, nous présenterons la ligne harmonique mise en œuvre et les résultats obtenus.

Dans le dernier chapitre, nous commencerons par décrire les processus physiques qui sont au cœur des effets dynamiques que nous avons étudiés. Nous proposerons une démarche pour tenter d'élucider l'une des questions fondamentales du Femtomagnétisme : l'origine de la désaimantation. Nous décrirons ensuite des expériences magnéto-optiques Kerr résolues en temps à 800 nm, réalisées avec des films de Cobalt dopés avec des terres rares, qui ont permis de confronter certains modèles. Notamment le lien entre désaimantation et précession est discuté en regard de nos résultats. Nous ferons ensuite le lien entre les expériences réalisées dans le proche infra-rouge et celles en cours dans le domaine des RX.

Enfin, dans la conclusion générale, nous exposerons une synthèse des résultats obtenus pendant cette thèse.

Chapitre 1

Introduction et généralités sur la dynamique d'aimantation et sur diverses configurations expérimentales pour l'étude de la dynamique des spins.

Sommaire

1.1. Dynamique des charges et de l'aimantation induite par une impulsion laser.....	5
1.1.1. Dynamique des charges.....	5
1.1.2. Dynamique des spins (modèle à trois températures)	8
1.2. Précession de l'aimantation.....	9
1.2.1. Moments magnétiques.....	9
1.2.2. Energie d'un système ferromagnétique	11
1.2.3. Equation de Landau-Lifshitz-Gilbert (Equation de LLG).....	13
1.3. Techniques expérimentales	16
1.4. Effets magnéto-optiques.....	20

Introduction

Ce chapitre est consacré aux processus dynamiques associés à la variation d'aimantation induite par voie optique (impulsion laser femtoseconde). Dans une première partie, je décrirai les processus physiques impliqués dans la dynamique des charges et des spins. J'y détaillerai également les deux modèles phénoménologiques à deux et à trois températures. Une deuxième partie consacrée à l'étude de la dynamique de précession et l'influence d'anisotropie sur cette dynamique. Ensuite, les différentes configurations expérimentales utilisées pour l'étude de la dynamique d'aimantation sont décrites. La dernière partie est dédiée à la description des effets magnéto-optiques Kerr.

1.1. Dynamique des charges et de l'aimantation induite par une impulsion laser

1.1.1. Dynamique des charges

L'interaction d'une impulsion laser ultrabrève avec les matériaux métalliques est en général considérée comme un processus se produisant en plusieurs étapes [13-15], qui s'échelonnent entre quelques femtosecondes et plusieurs dizaines de picosecondes.

Dans une première étape, les photons sont absorbés quasi instantanément par le métal et leur énergie est transférée aux électrons, induisant ainsi une polarisation, cohérente avec le champ électrique de l'impulsion laser. D'un point de vue microscopique on peut considérer que l'on excite un mode collectif correspondant aux populations électroniques que l'on peut décrire par la dynamique d'un plasma électrons-trous où dominent les interactions à plusieurs corps tels que l'écrantage Coulombien et l'interaction d'échange. Durant les dix premières femtosecondes qui suivent cette mise hors d'équilibre du système électronique, la polarisation électronique résultante oscille en phase avec la source d'excitation. Ensuite, les électrons gardent leur énergie cinétique mais perdent leur mémoire de phase via des processus de collision élastique qui conduisent à une redistribution des électrons dans l'espace des moments, processus au cours duquel le plasma est amorti en se désintégrant en quasiparticules (électrons et trous habillés). C'est au cours de ce processus que l'on peut considérer que les plasmons se relaxent et qu'intervient l'amortissement de Landau.

De manière quasi simultanée les processus de perte d'énergie par collisions inélastiques, toujours d'origine Coulombienne, se produisent. Cette relaxation d'énergie électronique, au cours de laquelle la distribution électronique initialement athermale (Figure 1.1(a)) créée pendant l'excitation laser, tend vers une distribution de Fermi-Dirac chaude pouvant atteindre une température électronique T_e de plusieurs milliers de degrés Kelvin selon la densité d'énergie de la source d'excitation. Cette étape est appelée thermalisation électronique et est en général décrite par un temps caractéristique τ_{th} de quelques centaines de femtosecondes (Figure 1.1(b)) qui dépend des conditions d'excitation. En effet, en se redistribuant dans les bandes d'énergie du métal, les électrons doivent aussi respecter le principe d'exclusion de Pauli qui conduit à des temps différents selon que l'écart énergétique des électrons par rapport au niveau de Fermi est plus ou moins important. Notons qu'une impulsion ultrabrève étant caractérisée par une densité spectrale très large, en raison de la relation de Fourier temps-fréquence, le temps de thermalisation peut dépendre aussi des caractéristiques de la source laser (fréquence porteuse et durée).

Après la thermalisation, les électrons chauds commencent à céder leur énergie au réseau cristallin via les collisions électron-phonon ($e - ph$). Les électrons se refroidissent, d'où une diminution de T_e et une augmentation correspondante de la température du réseau T_l . Quelques picosecondes après, un équilibre thermodynamique est atteint entre les deux réservoirs de chaleur électronique et de réseau ($T_e = T_l$). Comme nous le décrivons dans le

paragraphe suivant ce temps de relaxation dépend beaucoup de la puissance laser en raison de la chaleur spécifique électronique qui est fonction de T_e . La dernière étape du processus de relaxation d'énergie est l'évacuation de la chaleur vers l'environnement par diffusion de la chaleur, soit vers les régions non-excitées de l'échantillon métallique considéré, soit vers le substrat sur lequel est déposé le matériau. Le temps caractéristique de ces processus dépend de la conductivité thermique des matériaux considérés et va de quelques centaines de picosecondes à quelques nanoscondes (Figure 1.1(c)). En plus de ces processus, il peut y avoir d'autres mécanismes de relaxation spécifique à chaque métal, tels que le transport balistique des électrons [16], les effets de diffusion de surface dans le cas des nanoparticules [17-19].

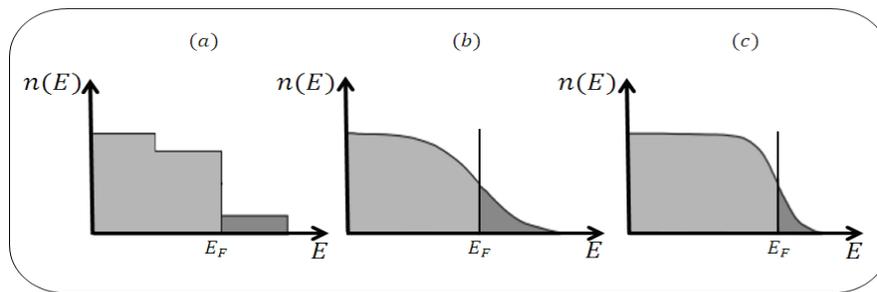


Figure 1.1 : Schéma de la densité énergétique au cours de la dynamique des électrons dans un métal après excitation optique ultrabrève.

- **Modèle à deux températures**

Le modèle phénoménologique à deux température proposé par Anisimov et al en 1974 [20], est un modèle qui décrit la dynamique des charges après leur thermalisation. En effet, dans ce modèle, le métal est considéré comme un système où les électrons et le réseau constituent deux bains distincts, chacun étant en équilibre thermique, dont les températures sont différentes ($T_e \neq T_l$).

L'échange d'énergie entre les deux réservoirs est donné par le système d'équations différentielles couplées :

$$C_e(T_e) \frac{dT_e}{dt} = -G_{el}(T_e - T_l) + P(t) \quad (1.1)$$

$$C_l(T_l) \frac{dT_l}{dt} = -G_{el}(T_l - T_e) \quad (1.2)$$

Où C_e et C_l représentent respectivement la chaleur spécifique des électrons et du réseau. G_{el} est la constante de couplage électron-réseau [21,22]; les valeurs typiques pour les métaux sont $10^{16} - 10^{17} \text{Wm}^{-3}\text{K}^{-1}$. La mesure de la dynamique de relaxation des électrons (via une mesure de transmission ou de réflectivité différentielles) permet d'ajuster ce paramètre G_{el} et d'obtenir ainsi des informations sur la force de couplage entre électrons et phonons (e-ph) [23]. $P(t)$ est la densité d'énergie du faisceau laser absorbée par le métal, elle intervient seulement dans (1.1) car l'énergie est initialement déposée dans le système d'électron (figure 1.2).

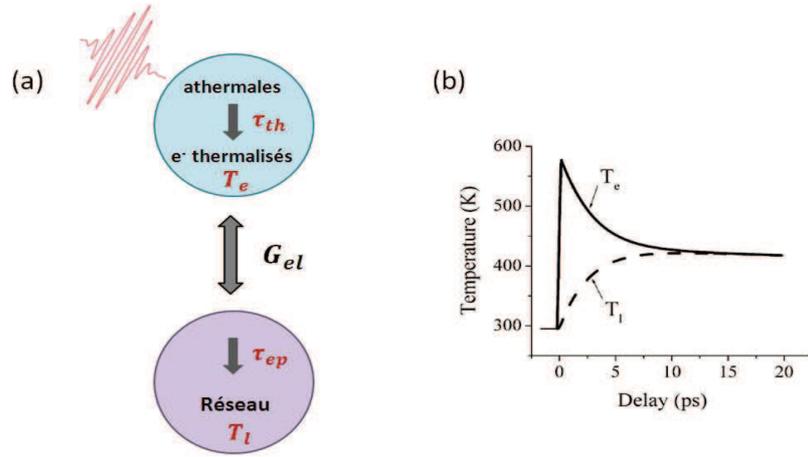


Figure 1.2 : Modèle à deux températures : (a) schéma de l'interaction lumière-matière. (b) Evolution temporelle de la température des électrons et du réseau après excitation par une impulsion laser, (b) extraite de [24].

Le modèle à deux températures permet bien de décrire la dynamique des charges sans tenir compte de la contribution athermale. Une approche plus détaillée dans les travaux de Groeneveld et Stan en 1992, tient compte des populations électroniques non thermalisées (ou athermales) [15,25]. Pour introduire cette contribution athermale dans la dynamique, la distribution électronique est séparée en deux contributions, une non-thermalisée caractérisée par la densité d'énergie athermale des électrons par unité de volume n , et T_e température des électrons. Dans ce cas, un système de trois équations différentielles couplées est nécessaire [26] :

$$\frac{dn}{dt} = -[\alpha + \beta]n(t) + P(t) \quad (1.3)$$

$$C_e(T_e) \frac{dT_e}{dt} = -G_{el}(T_e - T_l) + P(t) + \alpha n(t) \quad (1.4)$$

$$C_l(T_l) \frac{dT_l}{dt} = -G_{el}(T_l - T_e) + \beta n(t) \quad (1.5)$$

Avec α et β caractérisant respectivement la relaxation d'énergie vers les électrons thermalisés et le réseau.

Les équations précédentes déterminent assez bien la relaxation d'énergie pendant une dizaine de picosecondes. Pour les temps plus longs, lorsque la diffusion de chaleur à l'environnement est importante, il faut ajouter des termes de diffusion comme par exemple dans le cas du modèle à deux bains:

$$C_e(T_e) \frac{dT_e}{dt} = -G_{el}(T_e - T_l) + P(t) - \nabla k_e \nabla T_e \quad (1.6)$$

$$C_l(T_l) \frac{dT_l}{dt} = -G_{el}(T_l - T_e) - \nabla k_l \nabla T_l \quad (1.7)$$

Avec k_e et k_l désignent la conductivité thermique des électrons et du réseau, respectivement.

1.1.2. Dynamique des spins (modèle à trois températures)

Le modèle à trois températures a été proposé par notre équipe en 1996 afin d'interpréter la dynamique d'aimantation observée dans un film de Nickel [1]. Il s'est avéré nécessaire pour expliquer comment la variation temporelle de l'aimantation se produit avant celle du réseau et diffère de celle des charges (effet électroniques sans inclure le spin). Ce modèle à trois températures est une extension du modèle à deux températures, où ils incluent un troisième bain, celui correspondant aux spins.

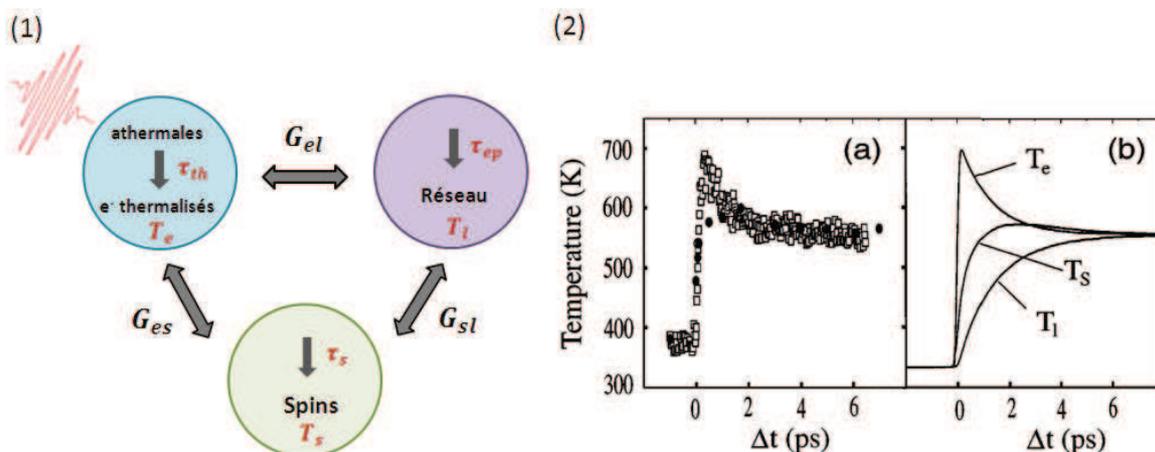


Figure 1.3 : (1) Modèle phénoménologique à trois températures : schéma présentant les interactions entre les différents réservoirs. 2-(a) représente l'évolution de la température électronique et de spin obtenues à partir de mesures expérimentales magnéto-optiques résolue en temps sur un film de Nickel, 2-(b) présente le calcul des températures de spin, électroniques et du réseau à l'aide du modèle à trois températures. Figure extraite de [1].

Le processus d'équilibre entre les différents réservoirs (spins, électrons, réseau) suite à l'excitation par une impulsion laser femtoseconde est schématisé dans la figure 1.3. Selon le modèle à trois températures, l'évolution temporelle de ces bains peut être décrite par trois équations couplées:

$$C_e(T_e) \frac{dT_e}{dt} = -G_{el}(T_e - T_l) - G_{es}(T_e - T_s) + P(t) \quad (1.8)$$

$$C_l(T_l) \frac{dT_l}{dt} = -G_{el}(T_l - T_e) - G_{sl}(T_l - T_s) \quad (1.9)$$

$$C_s(T_s) \frac{dT_s}{dt} = -G_{es}(T_s - T_e) - G_{sl}(T_l - T_s) \quad (1.10)$$

C_s est la chaleur spécifique des spins, T_s est la température des spins, G_{es} représente la constante d'interaction électron-spin et G_{sl} est la constante d'interaction spin-réseau.

Ce modèle permet de prendre en compte les effets de dynamique des spins d'une manière indépendante de celle des charges via la chaleur spécifique C_s . Cela est important notamment dans un régime de forte perturbation laser où la température de spins peut s'approcher de la température de Curie T_c où il est bien connu que la chaleur spécifique des spins augmente considérablement (divergence à T_c dans le modèle de Curie-Weiss).

Nous ne détaillons pas ici les nombreuses autres approches de dynamique des spins couplées aux charges qui ont été développées au cours des quinze dernières années et qui prennent en compte par exemple la dynamique des magnons [8] ou bien les fluctuations d'aimantation dans des nano-structures. Par ailleurs les théories plus récentes ont bien mis en avant l'effet du couplage spin-orbite [27,28] ainsi que plus récemment des effets spécifiques liés aux anisotropies des matériaux magnétiques [24]. Les effets cohérents faisant intervenir soit le couplage spins-photons via l'interaction spin-orbite [7] soit le couplage entre sous réseaux magnétiques dans le cas du renversement optique de l'aimantation dans les systèmes ferrimagnétiques [29].

1.2. Précession de l'aimantation

A une échelle de temps plus longue la dynamique de l'aimantation, associée à une réduction du module du vecteur aimantation, peut être suivie par un changement de la direction de ce vecteur, cette réorientation peut s'accompagner d'un mouvement précessionnel. Pour expliquer l'apparition d'une telle précession, nous discutons d'abord le mouvement d'un spin unique soumis à un champ magnétique externe.

1.2.1. Moments magnétiques

Dans un atome, l'électron est caractérisé par deux moments angulaires : un moment angulaire orbital \vec{L} et un moment angulaire de spin \vec{S} . Leurs moments magnétiques correspondant sont respectivement :

$$\vec{\mu}_L = -\gamma_L \vec{L} \quad (1.11)$$

$$\vec{\mu}_S = -\gamma_S \vec{S} \quad (1.12)$$

γ_L et γ_S sont les facteurs gyromagnétiques orbital et de spin, avec $\gamma_{L,S} = g_{L,S} \mu_B / \hbar$ où $g_{L,S}$ sont les facteurs de Landé, \hbar est la constante de Planck et μ_B est le magnéton de Bohr.

Dans le cas du couplage spin-orbite, le moment angulaire total est donné par : $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$, le moment correspondant est $\vec{\mu}_J = -\gamma_J \vec{J}$. Le facteur de Landé est déterminé de la même manière. Dans le cas où ($L = 0; J = S$), le facteur de Landé vaut 2 et lorsque ($S = 0; J = L$), le facteur de Landé est égal à 1 [30,31].

Lorsqu'un champ magnétique externe \vec{H} , agit sur le moment magnétique, il exerce un couple:

$$\vec{\Gamma} = \frac{d\vec{J}}{dt} = \vec{\mu}_J \times \vec{H} \quad (1.13)$$

L'évolution temporelle du moment magnétique de l'électron s'écrit comme suit :

$$\frac{d\vec{\mu}_J}{dt} = -\gamma_J \mu_0 (\vec{\mu}_J \times \vec{H}) \quad (1.14)$$

Cette équation décrit le mouvement précessionnel du moment magnétique autour d'un champ magnétique externe (Figure 1.4) caractérisé par la fréquence f :

$$f = \frac{1}{2\pi} \frac{e\mu_0 H}{m} = \text{const.} * H \quad (1.15)$$

f est la fréquence de Larmor. La constante de l'équation ci-dessus égale à $3.52 \cdot 10^4 \text{ Hz}/(\text{A}/\text{m})$ dans le SI d'unités. Pour un champ magnétique appliqué égale à 1 Oe , la période d'une précession vaut 357 ns . Plus le champ est fort, plus la fréquence de précession est importante (période de précession plus faible).

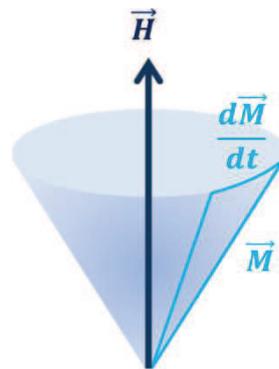


Figure 1.4 : Mouvement précessionnel de l'aimantation autour du champ effectif.

Dans les matériaux ferromagnétiques, les spins sont fortement couplés via l'interaction d'échange. Cela permet d'introduire un moment magnétique qui est la moyenne de tous les moments magnétiques $\vec{\mu}_j$ appelée aimantation : $\vec{M} = \sum_j \vec{\mu}_j / V$, avec V le volume de la région étudiée. Ce moment global est aussi appelé macrospin, pour des raisons évidentes.

L'évolution temporelle de l'aimantation s'écrit :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma\mu_0(\vec{M} \times \vec{H}_{eff}) \quad (1.16)$$

Où \vec{H}_{eff} est le champ magnétique effectif, $H_{eff} = H_{ech} + H_{anis} + H_{demag} + H_{ext}$, qui comporte différents termes désignant respectivement, le champ d'échange, le champ d'anisotropie magnétique, le champ démagnétisant et le champ externe. \vec{H}_{eff} est donné par la dérivée de l'énergie totale du système ferromagnétique.

Cette équation décrit le mouvement de précession de l'aimantation \vec{M} autour du champ effectif \vec{H}_{eff} , avec $|\vec{M}| = const.$ Les champs d'échange et d'anisotropie étant très importants dans la matière condensée ferromagnétique, les fréquences de précession sont considérablement augmentées (périodes typiques de quelques dizaines de picosecondes à quelques nanosecondes selon les matériaux considérés). Détaillons ces termes qui, dans le cadre de notre travail de thèse sont les plus importants.

1.2.2. Energie d'un système ferromagnétique

L'énergie totale d'un matériau ferromagnétique présente plusieurs contributions : l'énergie d'échange (E_{ech}), l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline (E_{anis}), l'énergie d'anisotropie de forme (E_{demag}) et l'énergie Zeeman (E_{Zeeman}).

- Energie d'échange

Pour une température inférieure à la température de Curie, les moments magnétiques d'un système ferromagnétique présentent un comportement collectif induit par les interactions d'échange (interactions coulombiennes) des atomes voisins qui conduisent à un arrangement parallèle des moments magnétiques.

L'énergie d'échange d'un système de N spins est définie comme suit :

$$E_{ech} = -2J_{ij} \sum_{i,j}^N (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j) \quad (1.17)$$

Où J_{ij} est l'intégrale d'échange, $J_{ij} > 0$ pour les matériaux ferromagnétiques.

- Anisotropie magnéto-cristalline

Dans un matériau ferromagnétique, les moments magnétiques tendent à s'aligner selon une direction privilégiée par rapport à la symétrie du réseau cristallin. Cela est dû au fait que les moments magnétiques interagissent avec le réseau cristallin via les interactions spin-orbite. Cette direction est nommée direction de facile aimantation. Au-delà de cette direction, l'énergie du système tend à augmenter à travers une énergie appelée énergie magnéto-cristalline.

Dans le cas du cobalt qui présente une symétrie hexagonale, l'axe de facile aimantation est l'axe 6 (système invariant dans une rotation de $\pi/3$), Figure 1.5. L'énergie magnéto-cristalline est donnée par :

$$E_{anis} = K_1(T_1) \sin^2 \theta + K_2(T_2) \sin^4 \theta \quad (1.18)$$

Où K_1 et K_2 désignent les constantes d'anisotropies du premier ordre et du deuxième ordre respectivement et θ désigne l'angle entre l'axe de symétrie et l'aimantation.

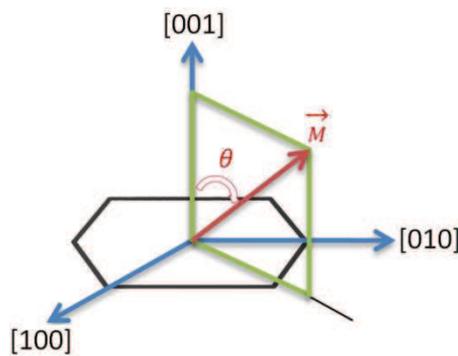


Figure 1.5 : schéma d'un système de symétrie hexagonale. L'axe [001] présente un axe de facile aimantation et θ est l'angle entre cet axe et le vecteur aimantation.

- Energie Zeeman

L'énergie déterminée par les interactions entre l'aimantation M et un champ magnétique externe, aussi nommée énergie Zeeman, correspond à un terme de couplage dipolaire magnétique:

$$E_{Zeeman} = -\mu_0 \int_V \vec{M} \cdot \vec{H}_{ext} dV \quad (1.19)$$

Afin de minimiser cette énergie chaque moment magnétique du système s'aligne parallèlement au champ magnétique externe \vec{H}_{ext} .

- Anisotropie de forme

L'apparition de pôles magnétiques à la surface d'un système ferromagnétique, présentant une aimantation non homogène, donne lieu à un champ démagnétisant H_{demag} . Il faut alors considérer des facteurs de formes qui ont tendances à s'opposer à l'aimantation naturelle du milieu considéré. Dans le cas des couches minces, l'expression de l'énergie de H_{demag} s'écrit :

$$E_{demag} = \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 \sin^2(\theta) \quad (1.20)$$

M_s est l'aimantation à saturation et θ est l'angle entre la direction de l'aimantation et le plan du film.

1.2.3. Equation de Landau-Lifshitz-Gilbert (Equation de LLG)

Pour prendre en compte l'amortissement du mouvement de précession d'aimantation, Landau et Lifshitz ont proposé de prendre en compte l'effet d'une force de rappel s'exerçant sur le vecteur aimantation dans la direction de l'axe de rotation. L'évolution temporelle et spatiale de l'aimantation sous l'effet d'un champ magnétique effectif local est décrite par l'équation (LL) proposée en 1935 [32] :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma\mu_0(\vec{M} \times \vec{H}_{eff}) - \frac{\lambda}{M_s^2} [\vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H}_{eff})] \quad (1.21)$$

Où λ désigne la magnitude de l'amortissement de LL et M_s est l'aimantation à saturation. Le premier terme de l'équation correspond, comme déjà décrit ci-dessus, au couple exercé par \vec{H}_{eff} sur l'aimantation et le mouvement de précession de \vec{M} autour de \vec{H}_{eff} . Le deuxième terme correspond au terme d'amortissement ajouté par LL, un terme correctif qui tient compte de la dissipation de l'énergie vers le réseau. L'équation de LL n'est valable que dans le cas de faible amortissement.

En 1955, Gilbert a introduit une autre description phénoménologique de la relaxation de l'aimantation similaire à celle proposée par Landau-Lifshitz, en modifiant le terme d'amortissement [33], l'équation de LLG s'écrit :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma\mu_0(\vec{M} \times \vec{H}_{eff}) - \frac{\alpha}{M_s} \left(\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} \right) \quad (1.22)$$

Où $\alpha = \frac{\lambda}{\gamma M_s}$ est le coefficient d'amortissement de Gilbert ($\alpha > 0$), ici le terme $(\vec{M} \times \vec{H}_{eff})$ est remplacé par $(\frac{d\vec{M}}{dt})$.

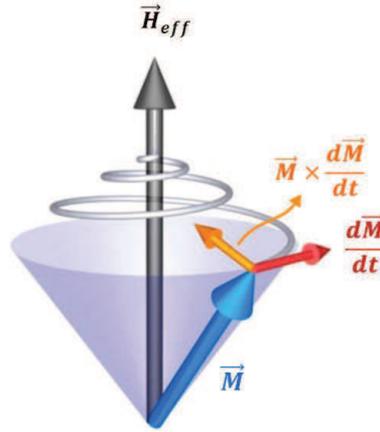


Figure 1.6 : Précession de l'aimantation autour du champ effectif avec ($\alpha > 0$).

Comme pour le modèle de *LL*, le module de l'aimantation est toujours considéré dans *LLG* comme une constante au cours du temps. Cette approche n'est plus valable dans le cas où la précession est induite par une impulsion laser car l'amplitude de l'aimantation évolue au cours du temps (l'aimantation dépend de la température). Une nouvelle approche est alors nécessaire qui tient compte des variations temporelles de l'amplitude de l'aimantation. Bigot et al. [24] ont proposé un modèle phénoménologique basé sur les équations de Bloch [34] et le modèle à deux températures. La variation de l'amplitude de l'aimantation vérifie :

$$|\vec{M}(T_e(t))| = M_s \sqrt{1 - \left(\frac{T_e(t)}{T_c}\right)^2} \quad T_e \leq T_c \quad (1.23)$$

$$|\vec{M}(T_e)| = 0 \quad T_e > T_c \quad (1.24)$$

Où T_e , T_c désignent respectivement la température électronique et la température de Curie.

- Influence de l'anisotropie magnéto-cristalline sur la précession de l'aimantation

La variation de l'aimantation \vec{M} au cours du temps induit une variation du champ effectif \vec{H}_{eff} . En 2005, Bigot et al. ont étudié la dynamique d'aimantation induite par une impulsion laser femtoseconde sur deux films ferromagnétiques de Cobalt. Le premier échantillon a une épaisseur de 16 nm , déposé sur un substrat de Al_2O_3 et présente un axe d'anisotropie magnéto-cristalline perpendiculaire au plan du film, alors que le deuxième a une épaisseur de 50 nm , déposé sur un substrat de MgO et présente un axe d'anisotropie magnéto-cristalline dans le plan du film.

Les auteurs ont montré que la précession de l'aimantation (à l'échelle picoseconde) est due à une variation ultrarapide de l'anisotropie magnéto-cristalline. Cette variation est due à l'augmentation de la température électronique via l'interaction spin-orbite. La dépendance en température de la constante d'anisotropie magnéto-cristalline en fonction de la température peut s'écrire [35] :

$$K_1(T_1) = K_1(0) \left[\frac{|\vec{M}(T_1)|}{M_s} \right]^{10} \quad (1.25)$$

La figure 1.7 montre une comparaison entre les dynamiques aux temps longs pour les deux échantillons. Dans le cas du Co/MgO (axe facile dans le plan de l'échantillon), on voit que la période de précession est plus courte (24 ps), cela est dû au fait que le champ d'anisotropie est très important.

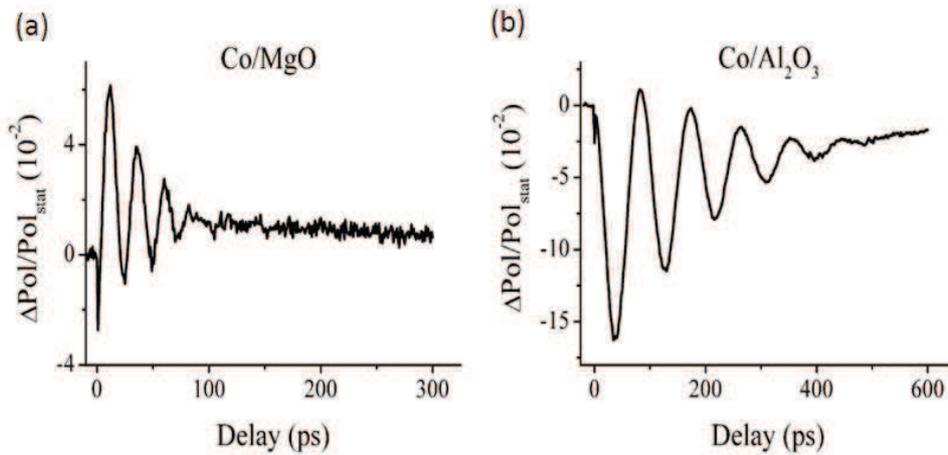


Figure 1.7 : Comparaison de la dynamique de précession de deux films de Co avec des orientations d'anisotropie magnéto-cristalline différente. Figure extraite de [24].

1.3. Techniques expérimentales

Dans cette partie, nous présentons différentes configurations expérimentales permettant l'étude de la dynamique d'aimantation ultrarapide.

❖ Techniques Magnéto-optiques (dans le Visible)

L'Effet Kerr Magnéto-Optique Résolu en Temps (TR-MOKE) est une technique très performante pour l'étude de la dynamique d'aimantation dans les métaux. En 1996 et pour la première fois, notre groupe a montré qu'il est possible de modifier l'aimantation d'un matériau ferromagnétique (film de nickel) en utilisant une impulsion laser femtoseconde ($60 fs$) en configuration pompe-sonde magnéto-optique [1]. Les auteurs ont montré que l'aimantation du film de nickel ($22 nm$) atteint une valeur minimale à un temps caractéristique inférieur à $1 ps$. Les variations de la composante polaire de l'aimantation en fonction du retard entre pompe et sonde sont présentées sur la figure 1.8.

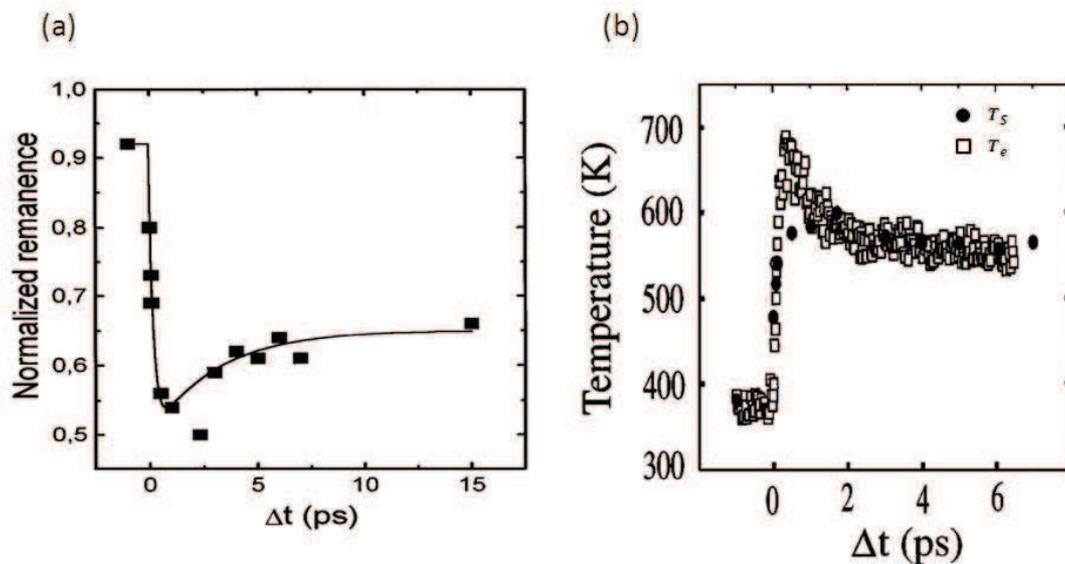


Figure 1.8 : Variation de la composante polaire de l'aimantation d'un film de nickel (22nm) en fonction du retard pompe-sonde, (a). Evolution temporelle de la température électronique T_e et celles des spins T_s , (b). Figure extraite de [1].

Pour décrire les résultats observés, les auteurs ont présenté un modèle phénoménologique à trois températures (décrit dans la section 1.1.2). Ils ont en déduit une différence entre les deux dynamiques associées aux charges et aux spins pendant les 2 ps qui suivent l'excitation de l'échantillon par l'impulsion laser. En utilisant la même technique, les auteurs ont démontré un peu plus tard que l'on peut complètement désaimanter un film de $CoPt_3$ possédant une anisotropie perpendiculaire [36]. Cela permet de penser qu'il est possible de manipuler le renversement d'aimantation d'une manière optique, un concept qui peut s'avérer utile pour l'enregistrement magnétique ultra-rapide.

❖ Techniques de génération de seconde harmonique

La génération de seconde harmonique *SHG* est une autre technique qui a été utilisée pour l'étude la dynamique d'aimantation à l'échelle femtoseconde [4]. Dans ces expériences, en plus de mesurer les modifications induites par la pompe sur la sonde, ils détectent aussi la variation de l'intensité du signal de seconde harmonique par la sonde.

Afin de décrire la dynamique des charges et de spins, ils ont utilisé les termes pairs et impairs de la susceptibilité à l'ordre deux.

La figure montre la dynamique des charges et de spins pour trois densités d'excitation dans un film de Nickel. Hohlfeld et al. ont observé une désaimantation ultrarapide, 280 fs après l'excitation par la pompe (Figure 1.9a). Dans une deuxième partie, ils ont mesuré un retard temporel ~ 50 fs dans la réponse des électrons par rapport à celle des spins. Ce retard a été attribué à une différence de durée de vie entre les porteurs de spins majoritaires et minoritaires.

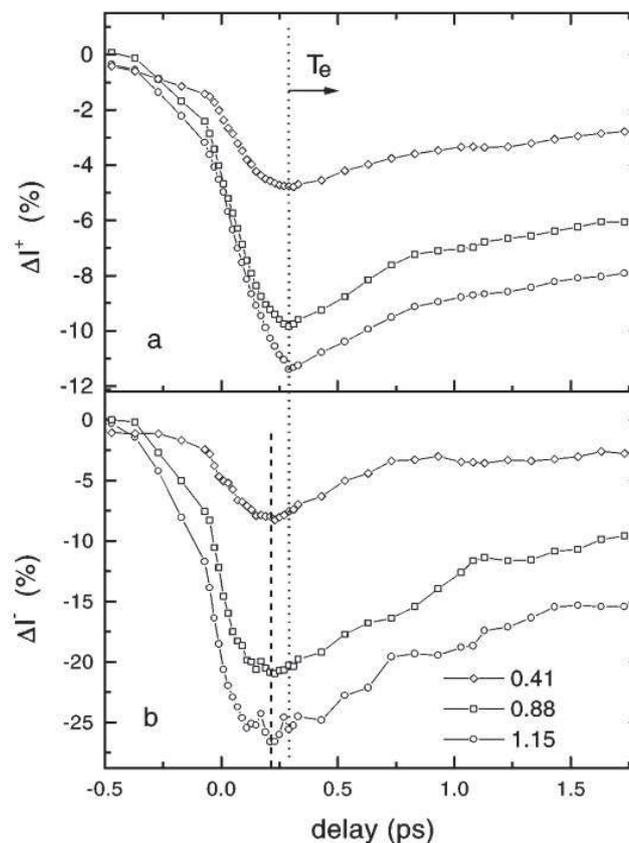


Figure 1.9 : Variations différentielles de la somme (a) et de la différence (b) de la *SHG* dans un film de Ni pour trois densités d'excitation différentes. Figure extraite de [4].

❖ Technique de photo-émission

La photoémission résolue en spin est une technique bien connue en régime statique, pour étudier les propriétés électroniques et magnétiques des matériaux ferromagnétiques [37]. En configuration pompe-sonde, elle permet d'étudier la dynamique des charges et de nombreux travaux ont été effectués dans ce domaine. Cette technique a été utilisée aussi par Scholl et al. pour étudier la dynamique des spins dans les matériaux ferromagnétiques [5]. Dans ces expériences, les auteurs ont utilisé une impulsion pompe (3 eV) pour exciter l'échantillon (film de Ni), ensuite une impulsion sonde, retardé par rapport à la pompe, doublée en fréquence (6 eV) pour induire l'émission d'un électron polarisé en spin. La polarisation en spin des photoélectrons est dans ce cas mesurée à l'aide d'un détecteur de Mott (Figure 1.10(a)).

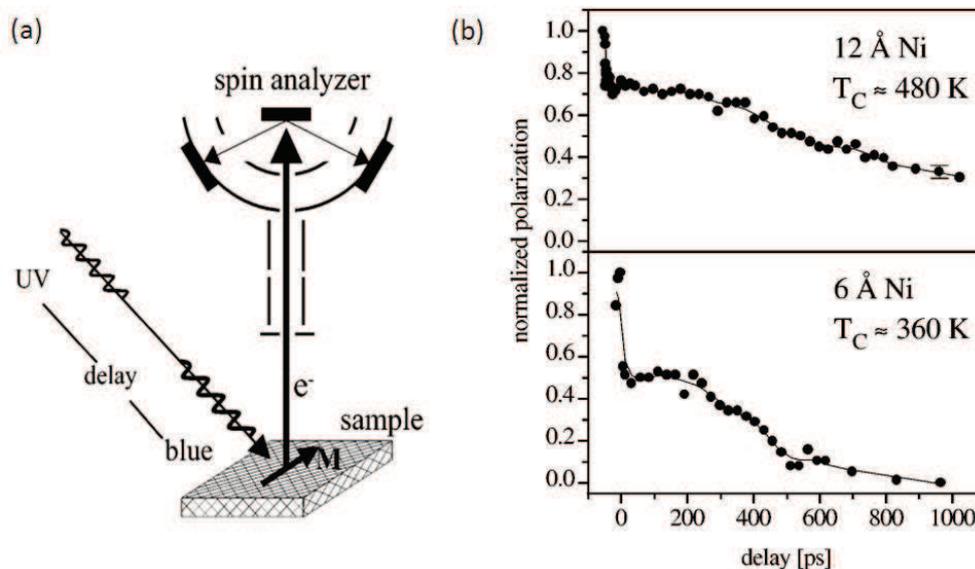


Figure 1.10 : (a)- Montage expérimental d'une expérience de photo-émission résolue en spin. (b)- Variation de la polarisation des électrons photo-émis en fonction du retard entre pompe et sonde pour deux films de Ni d'épaisseur différentes.

Scholl et al. ont étudié le comportement de l'aimantation au temps court et au temps longs. La figure 1.10(b) montre une désaimantation sub-picoseconde, ce comportement est cohérent avec les résultats de 1996 [1]. Les auteurs ont attribué ce comportement aux modes d'excitation de Stoner [38].

❖ Technique magnéto-acoustique

La magnéto-acoustique présente aussi une technique pour l'étude de la dynamique d'aimantation des matériaux ferromagnétique [39]. Les auteurs ont étudié la dynamique d'aimantation d'un film de nickel excité par une onde acoustique générée par une impulsion laser femtoseconde, à température ambiante. En effet, l'expérience consiste à générer une onde acoustique longitudinale dans la face avant du film de Ni par une impulsion pompe (150 fs , 397 nm). La dynamique ultrarapide de l'aimantation est détectée par les deux faces de l'échantillon en utilisant deux impulsions sonde (120 fs , 794 nm). Ils ont montré que la propagation de l'onde acoustique vers la face arrière du film de Ni modifie l'énergie magnéto-élastique, due à la déformation importante du réseau. Cela induit un mouvement de précession qui peut être contrôlé par un accord entre le temps d'aller-retour de l'impulsion acoustique et la période de précession.

❖ Technique TeraHertz

Cette technique prend son origine des équations de Maxwell. En effet, la désaimantation d'un film ferromagnétique en une échelle de temps sub-picoseconde induit l'émission d'une impulsion électromagnétique terahertz. Des expériences effectuées sur le nickel, où l'émission THz (ps) est cross-corrélé avec l'impulsion laser fs dans un cristal électro-optique $ZnTe$ ont permis de montrer l'existence de cette émission THz [40].

❖ Technique Magnéto-optique (dans l'infrarouge moyen)

La particularité de ces expériences est l'étude de la réponse magnéto-optique des matériaux ferromagnétique, tel que le nickel, sur une large gamme spectrale ($3 - 10\ \mu m$) [41]. Les résultats ont mis en évidence un temps de thermalisation estimé à 70 fs au voisinage d'une excitation à $6.5\ \mu m$, ce temps est environ 5 fois plus rapide qu'aux autres longueurs d'ondes.

❖ Technique XMCD par femto-slicing

Une autre technique intéressante pour l'étude de la dynamique d'aimantation et la XMCD (Dichroïsme Circulaire Magnétique des rayons X) par femto-slicing. Un des atouts principaux du XMCD est sa sélectivité chimique, puisque les seuils d'absorption ont des énergies caractéristiques pour chaque élément. Ces expériences présentent l'avantage de pouvoir sonder la dynamique des spins des espèces chimiques qui sont responsables du magnétisme. Les expériences réalisées par C. Boeglin et al. sur la ligne synchrotron à BESSY ont permis de mettre en évidence le temps de transfert entre les moments angulaires orbitales et de spins au seuil L du cobalt dans des films ferromagnétiques de CoPd [9].

1.4. Effets magnéto-optiques

La magnéto-optique constitue l'ensemble des phénomènes qui résultent lors de l'interaction d'une onde électromagnétique avec la matière en présence d'un champ magnétique. En 1946, Michael Faraday a découvert que lors de la transmission dans un matériau transparent d'une lumière polarisée linéairement et d'incidence normale, le plan de polarisation de cette lumière subit une rotation d'un certain angle en présence d'un champ magnétique parallèle à la direction de propagation [42]. Trente ans plus tard (1877), John Kerr, a découvert que la polarisation de la lumière pouvait également être modifiée lors de la réflexion sur un matériau magnétique [43].

- Effet Kerr Magnéto-Optique (MOKE)

L'étude de la réflexion d'une onde électromagnétique polarisée linéairement sur un échantillon soumis à un champ magnétique constitue l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE). La réflexion peut être observée à travers plusieurs effets, notamment : * la rotation de la direction de polarisation de la lumière, * l'introduction de l'ellipticité du faisceau réfléchi et * un changement dans l'intensité du faisceau réfléchi. On distingue trois types de configurations, selon l'orientation de l'aimantation M par rapport au plan d'incidence et de réflexion (figure 1.7) :

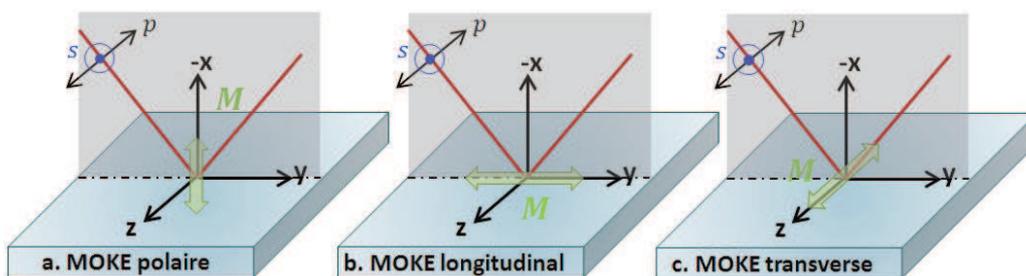


Figure 1.11 : les différentes configurations expérimentales de l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE) : a. polaire, b. longitudinal et c. transverse.

- L'effet magnéto-optique **polaire** : l'aimantation est perpendiculaire à la surface de l'échantillon et contenue dans le plan d'incidence de la lumière (figure 1.11a).
- L'effet magnéto-optique **longitudinal** : l'aimantation est dans le plan de l'échantillon et parallèle au plan d'incidence de la lumière (figure 1.11b).
- L'effet magnéto-optique **transverse** : l'aimantation est dans le plan de l'échantillon et perpendiculaire au plan d'incidence de la lumière (figure 1.11c).

Les deux premiers effets (polaire et longitudinal) se manifestent par une rotation et une ellipticité de la polarisation de la lumière incidente après réflexion sur le milieu. Alors que, dans la géométrie Kerr transverse (MOKE transverse), on n'observe ni rotation ni d'ellipticité de polarisation de la lumière après réflexion. L'effet Kerr transverse engendre une variation

de l'intensité réfléchi pour une polarisation incidente p . Pour une polarisation incidente s aucun effet n'est observé.

Description phénoménologique des effets Kerr magnéto-optiques

Macroscopiquement, les propriétés optiques d'un milieu sont déterminées par un tenseur diélectrique ε . Dans le cas d'un milieu isotrope, le tenseur diélectrique ε s'écrit :

$$[\varepsilon] = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} \quad (1.26)$$

L'apparition d'une aimantation M pour ce matériau brise certaines symétries, le milieu devient donc anisotrope. Cela se traduit par l'apparition de termes non-diagonaux dans le tenseur ε . Pour une direction arbitraire de M , le tenseur diélectrique ε devient :

$$[\varepsilon] = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & -\varepsilon_{xz} \\ -\varepsilon_{xy} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{xz} & -\varepsilon_{yz} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} = \varepsilon_{xx} \begin{pmatrix} 1 & i\tilde{Q}m_x & -i\tilde{Q}m_y \\ -i\tilde{Q}m_x & 1 & i\tilde{Q}m_z \\ i\tilde{Q}m_y & -i\tilde{Q}m_z & 1 \end{pmatrix} \quad (1.27)$$

Où les termes ε_{ij} sont complexes et satisfont la relation d'Onsager¹. Ce qui signifie que les termes diagonaux sont pairs avec l'aimantation M et les termes hors diagonaux sont impairs avec M , $m_i = M_i/M_s$, $i = x, y, z$ et M_s est l'aimantation à saturation. $\tilde{\varepsilon}_{xx} = \varepsilon'_{xx} + i\varepsilon''_{xx}$ est la fonction diélectrique et $\tilde{Q} = -i\frac{\tilde{\varepsilon}_{xy}}{\tilde{\varepsilon}_{xx}} = q' + iq''$ est la constante magnéto-optique.

La réflectivité d'un champ électrique incident par matériau magnétique peut être exprimé par le formalisme de Jones avec la matrice de réflexion suivante :

$$\begin{pmatrix} E_p^{(r)} \\ E_s^{(r)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_p^{(i)} \\ E_s^{(i)} \end{pmatrix} \quad (1.28)$$

Les indices s et p indiquent respectivement la polarisation de la lumière perpendiculaire et parallèle au plan d'incidence. r_{ij} sont les coefficients de Fresnel définies comme le rapport entre le champ électrique incident j et réfléchi i . ils s'écrivent sous la forme suivante [44-47] :

$$r_{pp} = \frac{n_1 \cos \alpha_0 - n_0 \cos \alpha_1}{n_1 \cos \alpha_0 + n_0 \cos \alpha_1} - i \frac{2n_0 n_1 \cos \alpha_0 \sin \alpha_1 m_z Q}{n_1 \cos \alpha_0 + n_0 \cos \alpha_1} \quad (1.29)$$

$$r_{sp} = \frac{i n_0 n_1 \cos \alpha_0 (m_y \sin \alpha_1 + m_x \sin \alpha_1) Q}{(n_1 \cos \alpha_0 + n_0 \cos \alpha_1)(n_0 \cos \alpha_0 + n_1 \cos \alpha_1) \cos \alpha_1} \quad (1.30)$$

¹ $\varepsilon_{ij}(M) = \varepsilon_{ij}(-M)$

$$r_{ss} = \frac{n_0 \cos \alpha_0 - n_1 \cos \alpha_1}{n_0 \cos \alpha_0 + n_1 \cos \alpha_1} \quad (1.31)$$

$$r_{ps} = \frac{i n_0 n_1 \cos \alpha_0 (m_y \sin \alpha_1 - m_x \sin \alpha_1) Q}{(n_1 \cos \alpha_0 + n_0 \cos \alpha_1)(n_0 \cos \alpha_0 + n_1 \cos \alpha_1) \cos \alpha_1} \quad (1.32)$$

Où α_0 et α_1 désignent respectivement l'angle d'incidence et l'angle de réfraction dans le milieu magnétique, n_0 et n_1 désignent l'indice de réfraction du milieu non magnétique et du milieu magnétique, respectivement.

Une écriture simplifiée de ces dernières équations peut être déduite dans le cas où l'aimantation est suivant une direction arbitraire [44,47], en développant les coefficients de Fresnel, en utilisant la loi de Descartes et en négligeant la contribution transversale.

Dans le cas où l'aimantation est suivant une direction arbitraire, la rotation Kerr θ_K , pour une incidence oblique, peut être exprimée comme suit :

$$\theta_K^p = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} = \frac{\cos \alpha_0 (m_x + m_y \tan \alpha_1)}{\cos(\alpha_0 + \alpha_1)} \cdot \frac{i n_0 n_1 Q}{(n_1^2 - n_2^2)} \quad (1.33)$$

$$\theta_K^s = \frac{r_{ps}}{r_{ss}} = \frac{\cos \alpha_0 (m_x - m_y \tan \alpha_1)}{\cos(\alpha_0 - \alpha_1)} \cdot \frac{i n_0 n_1 Q}{(n_1^2 - n_2^2)} \quad (1.34)$$

Contrairement au cas polaire et longitudinal, où l'aimantation induit une modification de la polarisation, dans la configuration transversale la réponse magnéto-optique se traduit par une variation de l'intensité réfléchie d'une lumière polarisée p . Dans ce cas, seulement le coefficient r_{pp} est pris en compte :

$$r_{pp}^{\uparrow\downarrow} = \frac{n_1 \cos \alpha_0 - n_0 \cos \alpha_1}{n_1 \cos \alpha_0 + n_0 \cos \alpha_1} \pm i \frac{2 n_0 n_1 \cos \alpha_0 \sin \alpha_1 m_z Q}{n_1 \cos \alpha_0 + n_0 \cos \alpha_1} \quad (1.35)$$

L'équation (1.35) présente une contribution non magnétique et une contribution qui dépend de la composante transverse de l'aimantation m_z . La contribution magnétique est extraite par la différence normalisée de l'intensité I de la lumière réfléchie pour deux directions de l'aimantation, représentée par \uparrow et \downarrow . Le renversement de l'aimantation est effectué par un champ magnétique externe appliqué selon l'axe z . L'amplitude du signal MOKE transverse est déterminée par le paramètre d'asymétrie magnétique A :

$$A = \frac{I_{\uparrow} - I_{\downarrow}}{I_{\uparrow} + I_{\downarrow}} = \frac{|r_{pp}^{\uparrow}|^2 - |r_{pp}^{\downarrow}|^2}{|r_{pp}^{\uparrow}|^2 + |r_{pp}^{\downarrow}|^2} \quad (1.36)$$

Du point de vu expérimental, la configuration MOKE transverse ne nécessite aucune technique d'analyse en polarisation, seulement une lumière polarisée p et dans le plan d'incidence. Cette configuration présente l'avantage d'être simple à installer dans l'extrême ultra-violet [48]. Dans cette gamme spectrale une analyse en polarisation nécessite des optiques bien sophistiquées.

Description microscopique des effets Kerr magnéto-optiques

Microscopiquement, l'effet Kerr magnéto-optique est expliqué par l'action du couplage spin-orbite et de l'interaction d'échange et la prise en compte des règles de sélections des transitions dipolaires électriques $\{\Delta l = \pm 1 \text{ et } \Delta m_l = \pm 1\}$. Dans les métaux de transition, la règle $\Delta l = \pm 1$ impose que seules les transitions entre les niveaux p et d sont permises et $\Delta m_l = +1$ et $\Delta m_l = -1$ correspondent aux transitions avec absorption d'un photon polarisé circulaire gauche et droite, respectivement.

Prenons comme exemple une transition entre un niveau dégénéré deux fois $d_{xz,yz}$ ($l = 2, m_l = \pm 1$) et un niveau P_z ($l = 1, m_l = 0$), schématisé sur la figure 1.12, [49]. L'écart entre les niveaux d'énergie d des spins majoritaires (*spin up*) et minoritaires (*spin down*) correspond à l'effet de l'interaction d'échange Δ_{ex} , alors que l'effet du couplage spin-orbite se manifeste par une levée de dégénérescence des orbitales du niveau d pour chaque population de spin en deux niveaux. Le niveau d'énergie des spins up $m_l = +1$ est supérieur à celui des spins down. Dans le cas où l'interaction d'échange est absente, seul le couplage spin-orbite est pris en compte, les transitions avec absorption d'un photon polarisé circulaire gauche et droite sont équivalentes et aucune différence d'absorption n'est observée. Il est évident donc que seule la combinaison entre l'interaction d'échange et couplage spin-orbite donne origine à l'effet Kerr magnéto-optique.

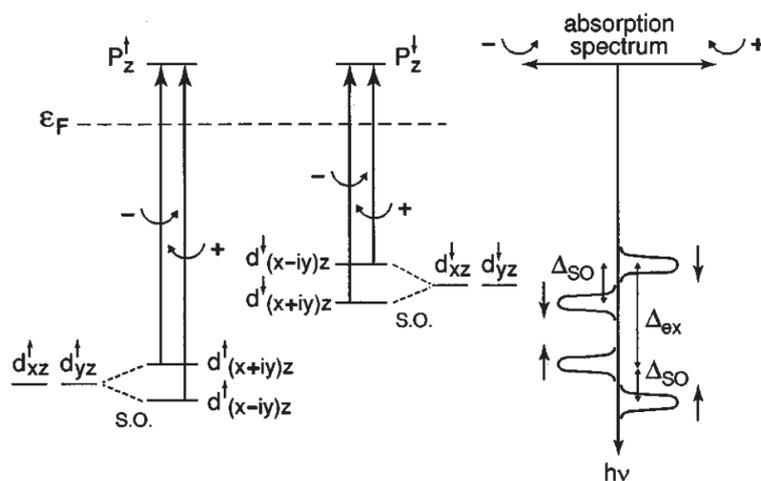


Figure 1.12 : Schéma des niveaux d'énergie d'un solide ferromagnétique montrant les transitions dipolaires électriques pour une lumière polarisée circulairement droite et gauche. Le spectre d'absorption en fonction de l'énergie des photons $\hbar\nu$ est indiqué à droite [49].

Chapitre 2

Source laser femtoseconde amplifiée et post-compression des impulsions à quelques cycles optiques

Sommaire

2.1. Génération et amplification des impulsions femtosecondes.....	25
2.1.1. Oscillateur femtoseconde.....	25
2.1.2. Technique d'amplification à dérive de fréquence.....	26
2.1.2.1. Principe d'amplification à dérive de fréquence.....	27
2.1.2.2. Etireur et compresseur d'impulsions femtoseconde.....	28
2.1.3. Amplification des impulsions à dérive de fréquence.....	29
2.1.3.1. Amplificateur régénératif.....	30
2.1.3.2. Booster : Amplificateur deux passages.....	31
2.1.3.3. Amplificateur Multi-passage.....	35
2.1.4. Autres problèmes liés à l'amplification à dérive de fréquence.....	42
2.2. Génération d'impulsions de quelques cycles optiques.....	44
2.2.1. Mode de propagation dans une fibre creuse.....	44
2.2.2. Effet Kerr.....	46
2.2.2.1. Elargissement spectral par auto-modulation de phase.....	48
2.2.2.2. Effets de Dispersion.....	49
2.2.2.3. Auto-raïdissement.....	50
2.2.2.4. Auto-focalisation.....	51
2.2.2.5. Ionisation.....	51
2.2.3. Compression des impulsions par des miroirs dispersifs.....	51
2.2.4. Génération d'impulsions de quelques cycles optiques.....	52
2.2.4.1. Dispositif expérimental.....	52
2.2.4.2. Résultats expérimentaux.....	53

Introduction

Ce chapitre est consacré à la description et la caractérisation de la source laser Alpha 5 kHz, basée sur l'amplification à dérive de fréquence, utilisée pour les expériences de cette thèse. Dans la première partie de ce chapitre, j'y introduis les techniques de génération et d'amplification d'impulsions lasers femtosecondes, ainsi que les caractéristiques de la chaîne laser. La deuxième partie de ce chapitre est consacrée à la post-compression des impulsions issues de la chaîne Alpha 5 kHz à quelques cycles optiques. J'y détaillerai les différents

processus non-linéaires impliqués et je finirai par la description du dispositif expérimental, ainsi que les résultats obtenus.

2.1. Génération et amplification des impulsions femtosecondes

2.1.1. Oscillateur femtoseconde

Un oscillateur femtoseconde, schématisé sur la figure 2.1, est une cavité laser au sein de laquelle est placé un milieu amplificateur. Dans notre cas, le milieu à gain est un cristal de saphir dopé par des ions titane Ti^{3+} taillé à l'angle de Brewster, dont la bande d'émission est très large allant de 600 nm à plus de $1\mu\text{m}$ [50]. Avec une telle largeur spectrale plusieurs modes longitudinaux peuvent osciller dans la cavité d'une façon indépendante. Une des conditions nécessaires pour la génération des impulsions ultra-brèves est la mise en phase de tous ces modes dans la cavité, ce qui est appelé "blocage des modes" (mode-locking) [51]. Pour les oscillateurs à cristaux de Ti:Sa, le blocage des modes est réalisé par l'effet Kerr optique. En effet, l'indice de réfraction du milieu amplificateur dépend de l'intensité du faisceau qui le traverse. Dans le cas d'un faisceau gaussien, l'intensité est plus importante au centre du faisceau qu'à ces bords. Cette répartition entraîne une modification radiale de l'indice optique du Ti:Sa, il se comporte donc comme une lentille convergente pour le faisceau pulsé appelé aussi "lentille Kerr" qui induit une auto-focalisation du faisceau. La deuxième condition pour l'obtention des impulsions ultracourtes est la présence d'un élément qui permet de compenser les dispersions introduites par le milieu amplificateur et les optiques constituant la cavité.

Un oscillateur délivre typiquement un faisceau laser dont l'énergie par impulsion est de l'ordre de quelques nanojoules, vu qu'il fonctionne à très haute cadence, de l'ordre du mégahertz. Une telle énergie est suffisante pour certaines applications, mais dans de nombreux cas il est indispensable de les amplifier pour obtenir une gamme d'énergie plus importante permettant d'explorer de nouveaux régimes d'interaction.

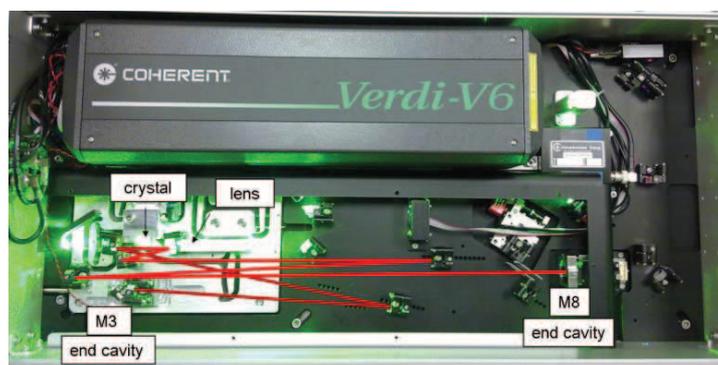


Figure 2.1 : Oscillateur femtoseconde.

Nous utilisons un oscillateur commercial Femtolaser de type Rainbow pompé par un Verdi (80 MHz, 5.45W, 532 nm). Il délivre des impulsions d'énergie égale à 6.25 nJ (500 mW) à une cadence de 80 MHz, divisée en deux sorties par une séparatrice de 50 %. Il a la particularité de délivrer un spectre très large permettant de comprimer une des deux sorties à 6fs, l'autre est utilisée comme Seed pour les étages d'amplification (section 2.1.2). La figure 2.2 illustre les caractéristiques de sortie de l'oscillateur avec un spectre des impulsions de largeur à mi-hauteur (FWHM) égale à 129 nm, correspondant à une durée TF de 4.6 fs et une trace d'autocorrélation de la sortie comprimée à 6fs environ. Une telle largeur spectrale ne peut être obtenue qu'avec un cristal très fortement dopé (> 95% d'absorption) et de l'automodulation de phase dans une cavité contenant des miroirs à dispersion contrôlée. Ce spectre peut atteindre une octave grâce à des lames wedges placées dans la cavité qui contrôlent la durée d'impulsion au niveau du cristal. En effet, le Rainbow dispose d'une boucle rapide de stabilisation CEP mesurée par DFG (Difference Frequency Generation) et contrôlé par modulation d'intensité de pompe qui n'est pas exploitée dans le cadre de cette thèse [52]. Son utilisation quotidienne sans stabilisation en phase, nécessite tout de même un nettoyage complet et un réalignement hebdomadaire car avec une telle puissance de pompe, le cristal a tendance à se piquer.

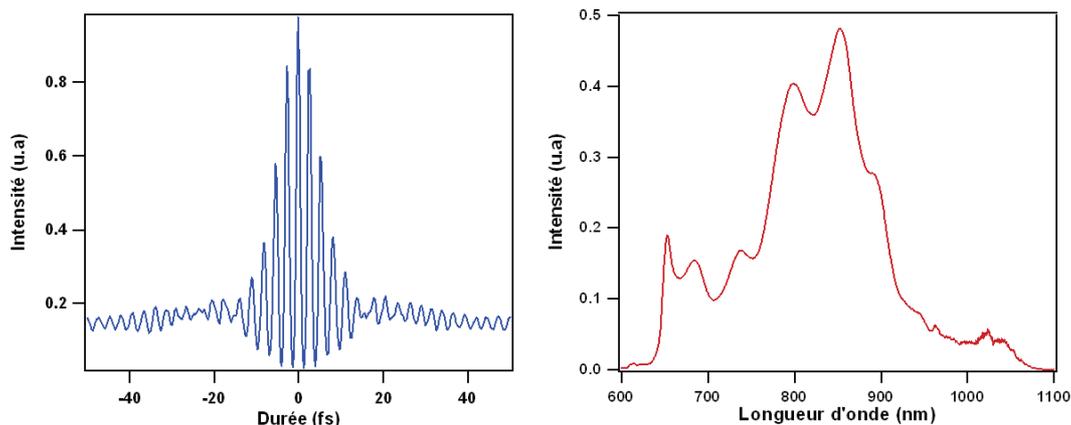


Figure 2.2 : Trace d'autocorrélation et spectre en sortie de l'oscillateur. La durée d'impulsion est de 6 fs et le spectre présente une largeur à mi-hauteur de 129 nm, correspondant à une limite de Fourier de 4.6 fs.

2.1.2. Technique d'amplification à dérive de fréquence

Les impulsions issues d'un oscillateur ont une durée de quelques femtosecondes pour des énergies de l'ordre du nanojoules (nJ). L'amplification de ces impulsions pour des énergies supérieures de l'ordre du millijoules (mJ) conduirait à l'apparition des effets non-linéaires tels que l'auto-focalisation qui peut engendrer l'endommagement des matériaux ou des

optiques utilisées. Un indicateur de l'apparition de tels effets est l'intégrale B définie comme suit :

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} \int_L n_2 \cdot I(z) dz \quad (2.1)$$

où λ est la longueur d'onde, L est la longueur du milieu à gain, n_2 est l'indice non linéaire et $I(z)$ est l'intensité du faisceau le long de l'axe de propagation. Pour éviter de tels effets non linéaires, la valeur de l'intégrale B doit être gardée inférieure à 1 radian [53]. Une solution pour contourner cet inconvénient consiste à utiliser la technique d'amplification à dérive de fréquence CPA (Chirped Pulse Amplification), proposée par Strickland et Mourou en 1985 [10].

2.1.2.1. Principe de l'amplification à dérive de fréquence

Le principe de l'amplification CPA est illustré en figure 2.3. Il est basé sur l'étirement temporel l'impulsion en sortie de l'oscillateur, typiquement le facteur d'étirement est de 10^4 - 10^5 , en induisant un retard relatif entre les différentes composantes spectrales de l'impulsion grâce à une ligne à dispersion positive. Ensuite l'impulsion est amplifiée dans un milieu amplificateur ayant une large bande spectrale d'émission. L'allongement temporel de l'impulsion femtoseconde permet d'atteindre dans les amplificateurs des fluences d'amplification proche de la saturation et en dessous du seuil de dommage du milieu à gain et des optiques. Après l'amplification, l'impulsion est envoyée dans un compresseur afin de retrouver une durée proche de sa durée initiale par le processus inverse de l'étirement.

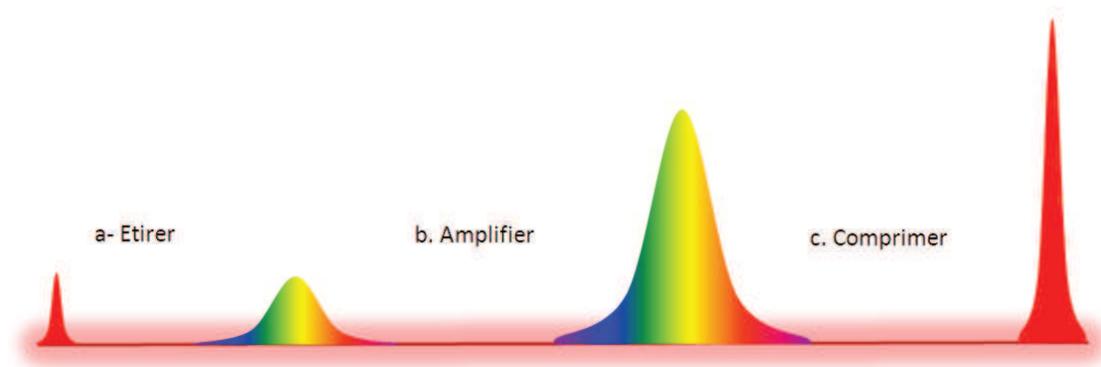


Figure 2.3 : Principe de l'amplification à dérive de fréquence.

2.1.2.2. Etireur et compresseur d'impulsions femtosecondes

L'étireur et le compresseur sont deux systèmes optiques dispersifs permettant respectivement l'étirement temporel avant amplification puis la recompression des impulsions laser dans les chaînes CPA. Ils sont composés d'optiques dispersives, qui

permettent de créer un retard relatif entre les différentes composantes spectrales de l'impulsion laser.

- Étireur

Un étireur permet d'introduire une dispersion de vitesse de groupe positive ce qui signifie que les grandes longueurs d'onde parcourent dans l'étireur un chemin optique plus court que les basses longueurs d'onde. Ce retard entre les différentes composantes spectrales se traduit par un allongement de la durée d'impulsion. L'étireur que nous utilisons est de type triplet d'Öffner constitué d'un réseau holographique et de miroirs concave et convexe formant l'afocal de l'étireur, figure 2.4. L'avantage de ce type d'étireur est l'utilisation que d'optiques en réflexion et dans l'axe de façon à introduire le minimum d'aberrations sur le front d'onde après dispersion et donc sur la phase spectrale [54].

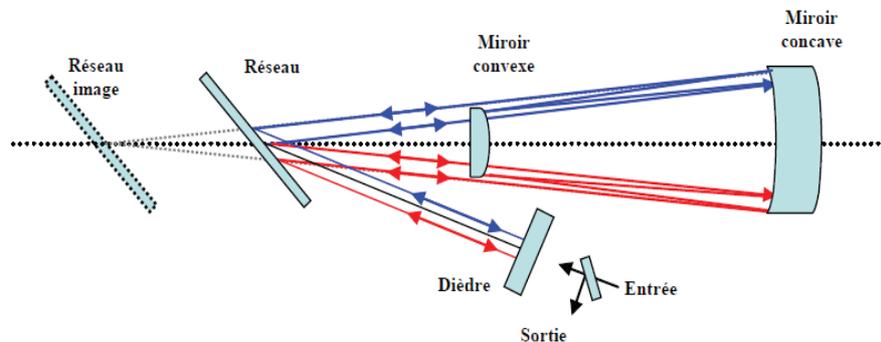


Figure 2.4 : Etireur de type triplet d'Öffner.

Les impulsions sont étirées aux environs de 200 ps de façon à réduire la densité de puissance (GW/cm^2) lors de l'amplification et ainsi éviter l'endommagement des optiques, notamment les cristaux de Ti:Sa. Un taux d'étirement élevé évite également la génération d'effets non linéaires à la traversée de certains matériaux dispersifs (Ti:Sa, lentilles, ...). Ces effets dégradent la qualité spatiale et temporelle des faisceaux. Cet étireur présente aussi la particularité d'être compatible CEP (Carrier Envelope Phase), vu qu'il présente l'avantage d'être thermiquement et acoustiquement isolé du milieu extérieur grâce à son double capotage.

Les caractéristiques de cet étireur sont présentées dans le tableau 2.1 :

Taux de répétition	80 MHz
Efficacité	~30 %
Puissance	> 60 mW
Taux d'étirement	~ 4.7 ps/nm
Durée étirée	~200 ps

Tableau 2.1 : caractéristique de l'étireur triplet d'Öffner.

- Compresseur

La dernière étape des chaînes CPA est la compression des impulsions par passage dans un compresseur schématisé sur la figure 2.5. Notre compresseur est constitué de deux réseaux de diffraction parallèles de haute réflectivité afin de limiter l'absorption de l'énergie qui peut induire une distorsion de la forme temporelle et spatiale de l'impulsion. En effet, un compresseur permet de créer une dispersion de vitesse de groupe négative, opposée à celle de l'étireur, permettant de compenser les diverses dispersions causées par les différents éléments traversés par l'impulsion tels que l'étireur, les optiques et le milieu amplificateur.

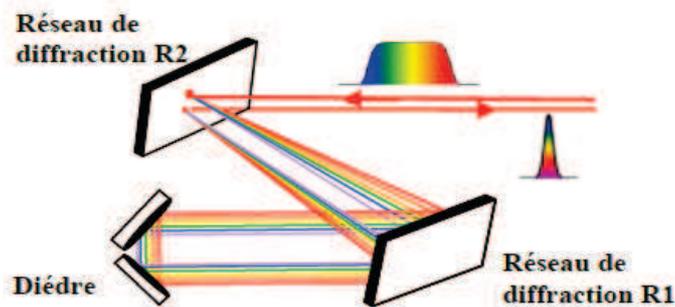


Figure 2.5 : Compresseur à réseaux double passage.

Les caractéristiques du compresseur sont présentées dans le tableau ci-dessous :

Taux de répétition	5 kHz
Efficacité	~70 %
Puissance maximale de Sortie	> 50 W
Energie maximale de Sortie	> 5 mJ
Durée d'impulsion	25 – 30 fs

Tableau 2.2 : les caractéristiques du compresseur.

2.1.3. Amplification des impulsions à dérive de fréquence

L'amplification des impulsions étirées est réalisée par passage à travers plusieurs étages d'amplification. Le nombre d'étage d'amplification est déterminé selon la gamme d'énergie qu'on veut atteindre en sortie de chaîne. Généralement, il existe deux types d'amplificateurs : *un amplificateur à fort gain (amplificateur régénératif) qui permet l'augmentation de l'énergie d'un facteur supérieur à 10^5 , de quelques nanojoules au millijoule et *un amplificateur de puissance (amplificateur multi-passage) qui présente des gains faibles mais qui augmente d'une façon considérable l'énergie des impulsions. Nous décrivons dans la suite de chaque amplificateur.

2.1.3.1. Amplificateur régénératif

Un amplificateur régénératif "REGEN" schématisé sur la figure 2.6 est une cavité laser fermée dans laquelle l'impulsion est injectée par rotation de polarisation, puis extraite au maximum d'énergie à l'aide d'une cellule de Pockels associée à un polariseur qui constitue une porte optique de durée nanoseconde, contrôlée par une impulsion de haute tension. Un amplificateur régénératif est appelé préamplificateur à fort gain, il fournit le plus souvent des gains supérieurs à 10^5 .

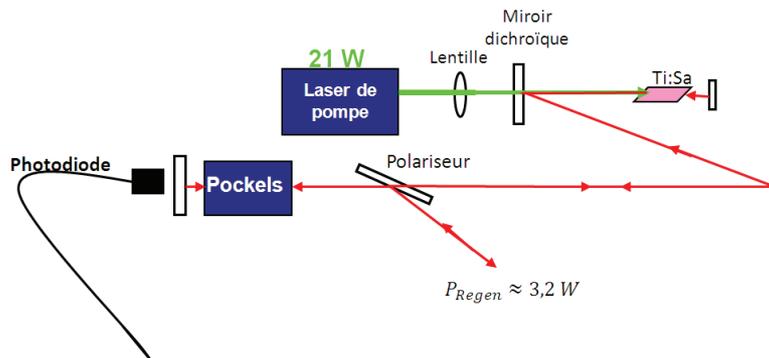


Figure 2.6 : Amplificateur régénératif : pompé par 21 W @ 532 nm et présente une puissance de sortie égale à 3.2 W

Le principe de fonctionnement d'un amplificateur régénératif "REGEN" est divisé sur plusieurs étapes: une première étape appelée phase de stockage d'énergie dans le milieu amplificateur, qui correspond à la phase pendant laquelle le pompage optique excite les atomes du milieu amplificateur pour atteindre l'inversion de population. Dans notre cas le pompage est assuré par des lasers de pompes de type *Nd:YAG* de durée nanoseconde doublé en fréquence (532 nm) pour tous les étages d'amplifications. En effet, pendant la phase de stockage d'énergie, la cellule de Pockels joue le rôle d'une lame quart d'onde pour un seul passage. Suite à un aller-retour effectué entre le miroir de fond de cavité et le polariseur, la polarisation de l'impulsion va tourner de 90° et passe à une polarisation horizontale vu que chaque impulsion d'entrée est polarisée verticalement. Etant polarisée horizontalement, l'impulsion est complètement transmise par le polariseur et effectue ainsi un aller-retour complet de la cavité en repassant une autre fois par la cellule de Pockels, qui tourne de nouveau sa polarisation en verticale. L'impulsion est donc éjectée de la cavité par réflexion sur le polariseur d'entrée. Les impulsions injectées dans l'amplificateur pendant la phase de stockage d'énergie sont directement éjectées après un aller-retour. A la fin de la phase de stockage d'énergie l'injection se produit en piégeant la dernière impulsion injectée dans la cavité lors de la phase précédente. En effet, au moment de transition entre les deux phases la cellule de Pockels synchronisée à l'oscillateur bascule de $\lambda/4$ à $\lambda/2$ en un temps inférieur à un aller-retour dans la cavité. Une fois l'impulsion piégée dans la cavité, elle effectue plusieurs aller-retour de cavité en traversant le cristal jusqu'à l'extraction totale de

l'énergie stockée dans le cristal, cette phase est appelée phase d'amplification de l'impulsion. Après l'amplification, l'éjection de l'impulsion de la cavité se produit grâce à la cellule de Pockels qui applique une deuxième tension et bascule de nouveau à $\lambda/4$.

- Caractéristiques de l'amplificateur régénératif utilisé

L'amplificateur régénératif (REGEN) de la chaîne laser que nous utilisons fonctionne à une cadence de 5 kHz grâce à une cellule de Pockels qui sélectionne une impulsion toutes les 200 μs . Il est pompé à 21 W par une partie d'un laser de pompe ETNA (5 kHz, 60 W, 532 nm). Cet amplificateur permet de passer d'une énergie de quelques nJ à 0.64 mJ (3.2 W) par impulsion en extrayant au maximum de gain. La courbe d'extraction du REGEN présentée sur la figure 2.7 est détectée par une photodiode rapide installée derrière le miroir de fond de cavité. La différence entre le délai D1 correspondant à l'injection du Seed dans la cavité et D2 le délai d'extraction au maximum de gain correspond au temps total passé par le Seed dans la cavité. Comme on observe un délai de 6 ns entre deux impulsions successives, (temps pour un tour de cavité), on en déduit que l'impulsion effectue 20 allers-retours pour atteindre le maximum de gain.

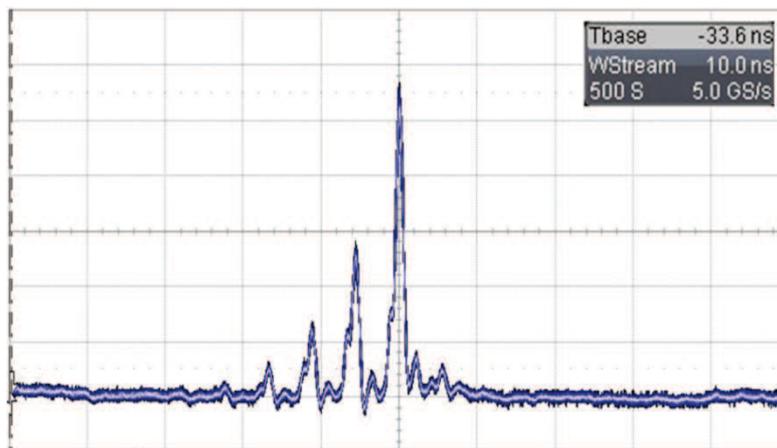


Figure 2.7 : Courbe d'extraction de l'amplificateur régénératif. L'écart temporelle entre deux impulsions successives est de 6 ns et représente un tour de cavité.

2.1.3.2. Booster : amplificateur deux passages

L'amplificateur régénératif est suivi d'un Booster, pompé par le deuxième bras (39W) du laser de pompe Etna, où le Seed effectue deux passages dans un cristal de *Ti:Sa*, figure 2.8. Cet étage permet de passer de 0.64 mJ à 1.2 mJ (3.2 W à 6 W) correspondant à un gain de 1.875. L'ensemble (REGEN + Booster) constitue un sous-ensemble nommé Front-End.

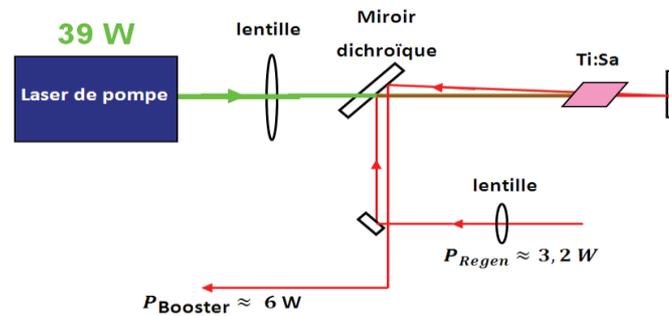


Figure 2.8 : Schéma du Booster (amplificateur deux passages) : pompé par 39 W @ 532 nm et présente une puissance de sortie égale à 6 W.

Le faisceau de sortie du Front-End présente un mode spatial quasi-gaussien (TEM_{00}). On peut le caractériser à l'aide du facteur de qualité M^2 . Il est évalué à l'aide d'une lentille et d'un mesureur de profil d'intensité placé sur une platine de translation. La figure 2.9 montre l'évolution du waist du faisceau de part et d'autre du plan focal de la lentille. Le facteur M^2 du faisceau est proche de 1 sur les deux axes transverses, déterminé à partir d'un ajustement par l'équation (2.2) :

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda M^2}{\pi\omega_0^2}\right)^2} \quad (2.2)$$

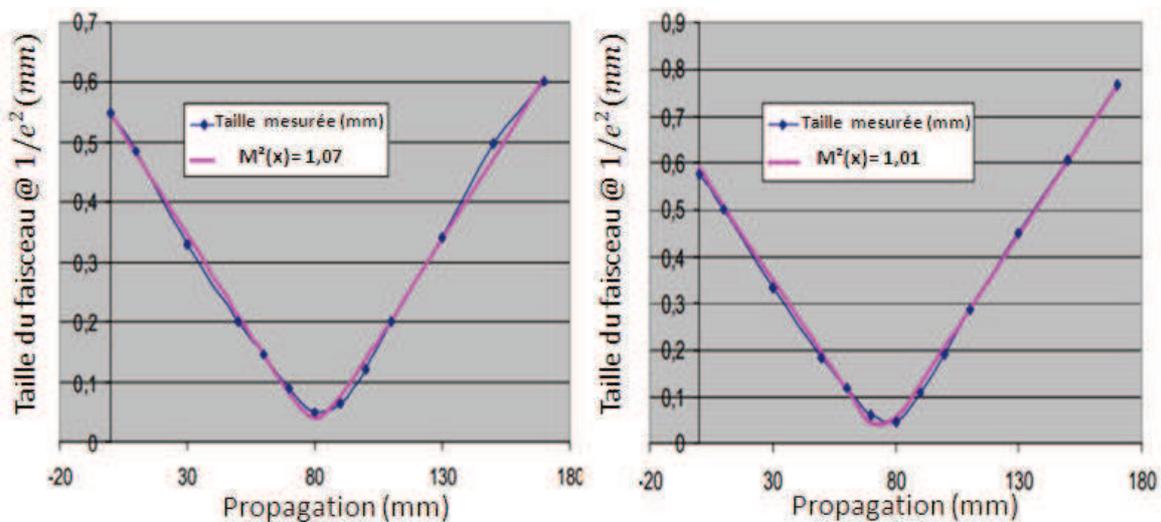


Figure 2.9 : Mesure du facteur M^2 en sortie du Front-End. Le facteur M^2 est mesuré à l'aide d'une lentille et un mesureur de profil Spiricon.

La sortie de l'ensemble (REGEN + Booster) présente un spectre de largeur à mi-hauteur de 31 nm, illustré sur la figure 2.10. Cette largeur n'est pas suffisante pour atteindre des durées sub-30 fs

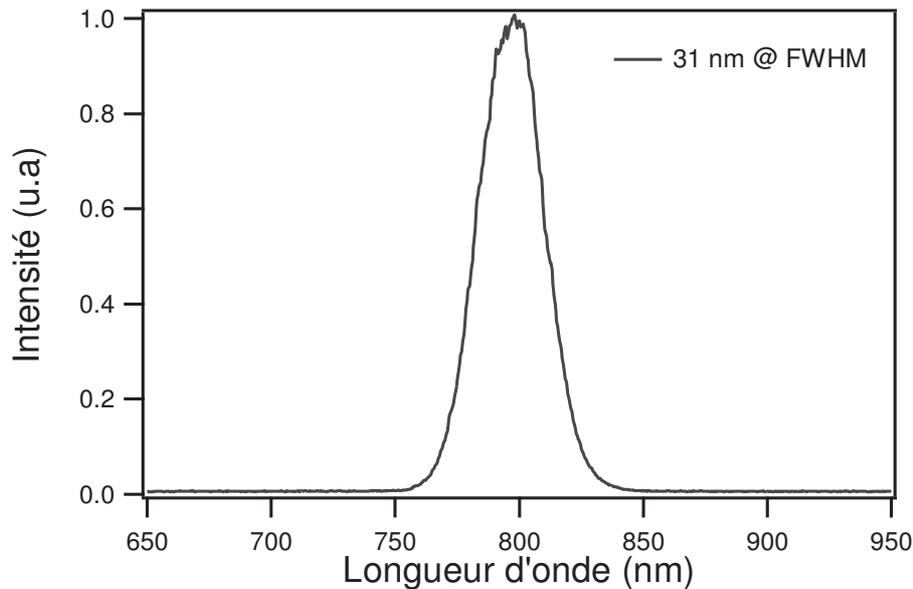


Figure 2.10 : Spectre mesuré en sortie du Front-End, présentant 31 nm @ FWHM.

L'amplification des impulsions à dérive de fréquence dans un cristal de Ti:Sa, induit un rétrécissement spectral et un décalage des longueurs d'onde du spectre amplifié vers les grandes longueurs d'onde est observé. Le rétrécissement spectral est dû au fait que le profil de gain du milieu amplificateur n'est pas le même sur toutes les longueurs d'ondes, alors que le décalage spectral est dû au fait que l'impulsion est étirée temporellement, les grandes longueurs sont les premières à être amplifiées et à saturer le gain à la traversée du cristal, au détriment des courtes longueurs d'onde. Une solution pour contourner ces deux effets est d'utiliser un modulateur acousto-optique programmable AOPDF (DazzlerTM), figure 2.11, qui permet de moduler le spectre en amplitude et en phase afin d'obtenir des impulsions plus courtes en sortie du compresseur.



Figure 2.11 : DazzlerTM : modulateur acousto-optique programmable (AOPDF) qui permet une modulation en amplitude et en phase du spectre.

Dans notre cas, il est installé directement en sortie de l'étireur de manière à pré-compenser la réduction et le décalage spectral lié à l'amplification.

La mise en forme en amplitude consiste à introduire un trou dans le spectre de l'impulsion au milieu de la zone de fort gain du cristal, typiquement vers 800 nm pour le $Ti:Sa$. La figure 2.12 représente deux spectres obtenus en sortie du Front-End, avec et sans trou spectral par le DazzlerTM. On voit que cette pré-compensation permet d'obtenir un spectre plus large (42 nm au lieu de 31 nm sans mise en forme en amplitude @ $FWHM$).

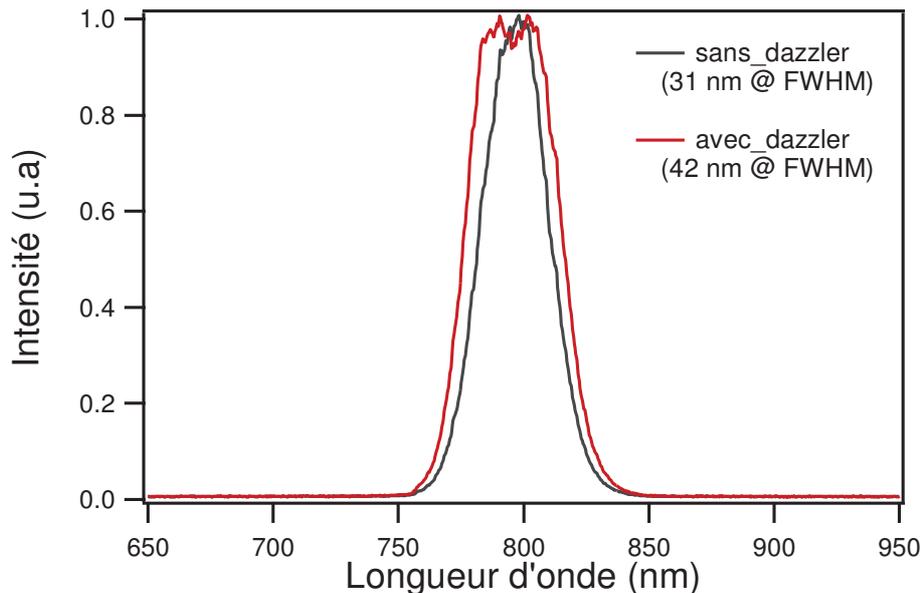


Figure 2.12 : Elargissement Spectral à l'aide d'un DazzlerTM. Le spectre obtenu en utilisant un DazzlerTM présentant une largeur de 42 nm @ FWHM , tandis que sans DazzlerTM la largeur spectrale est seulement de 31 nm @ FWHM .

Ce dispositif peut être aussi utilisé pour pré-compenser les termes de phase (ordre 1 à 4) résiduel en sortie du compresseur [55].

- Caractéristiques du Front-End

Taux de répétition	5 kHz
Puissance de sortie	6 W
Largeur spectral @ FWHM	42 nm
Profil spatial	TEM_{00}
Stabilité (pulse à pulse)	< 1.3% sur 4 heures

Tableau 2.3 : Caractéristique de l'ensemble REGEN + Booster (Front-End).

2.1.3.3. Amplificateur multi-passage

Un amplificateur multi-passage schématisé sur la figure 2.13 est composé de plusieurs miroirs de repli et d'un milieu amplificateur, toujours un cristal de *Ti:Sa* est utilisé, formant une géométrie en papillon appelée encore "Bow-tie". Le principe de l'amplification multi-passage est le suivant : une impulsion pompe vient exciter le milieu amplificateur en réalisant une inversion de population. L'énergie ainsi stockée dans le cristal de *Ti:Sa* est transférée à l'impulsion laser à amplifier lors d'une succession de passages à travers le cristal par multiplexage angulaire. Le nombre de passage dans ce type d'amplificateur est assez faible, généralement 3 à 5 passages car la fluence de saturation du milieu est atteinte très rapidement.

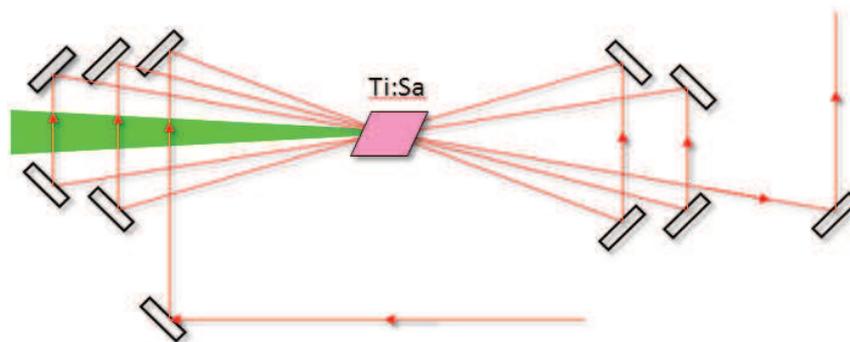


Figure 2.13 : architecture d'un amplificateur multi-passage.

Il existe deux régimes de fonctionnement d'un amplificateur multi-passage. Selon la fluence J de l'impulsion à amplifier, on peut déterminer le régime d'amplification :

Le régime de faible signal lorsque la fluence de l'impulsion à amplifier est très inférieure à la fluence de saturation du milieu ($J \ll J_{\text{sat}}$). Dans ce cas, l'inversion de population du milieu à gain n'est pas perturbée par le passage de l'impulsion. Donc le gain par passage est constant et dépend uniquement de l'énergie stockée dans le cristal. Plus le nombre de passage est élevé plus le gain est important.

Le régime de fort signal lorsque la fluence de l'impulsion à amplifier est comparable à la fluence de saturation du milieu ($J \geq J_{\text{sat}}$). Dans ce cas un nombre fini de passage à travers le cristal (généralement 3 – 5 passages) suffisent pour extraire la quasi-totalité de l'énergie stockée.

Dans la suite, nous nous concentrons sur le régime de fort signal. Le modèle couramment utilisé pour décrire l'amplification multi-passage est celui de Frantz-Nodvik développé en 1963 [56].

- Le modèle de Frantz-Nodvik

Le modèle de Frantz-Nodvik permet de décrire l'évolution de l'éclairement d'une impulsion laser monochromatique de pulsation ω_0 après un passage dans un milieu amplificateur.

Ce modèle est basé sur deux approximations. Tout d'abord, on suppose que la durée de l'impulsion est suffisamment longue devant le temps de cohérence T_2 du milieu ($T_2 = 3$ fs pour le *Ti:Sa*). En second lieu, le pompage du milieu amplificateur est réalisé entièrement avant l'amplification et le temps de vie de fluorescence est suffisamment long devant la durée de l'impulsion à amplifier T_1 , appelé aussi temps de relaxation de l'énergie et vaut $3\mu s$ pour le *Ti:Sa* à température ambiante [57].

A partir des équations de débit (rate equations) on peut déterminer la variation de l'intensité de l'impulsion ainsi que l'inversion de population N . Ces équations s'écrivent sous la forme suivante [58] :

$$\frac{\partial I}{\partial t} + \frac{1}{c} \frac{\partial I}{\partial z} = \sigma_e(w) c N I \quad (2.3)$$

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -\frac{\sigma_e(w)}{h\nu} c N I \quad (2.4)$$

$\sigma_e(w)$ représente la section efficace d'émission stimulée de la transition et elle s'écrit sous la forme suivante :

$$\sigma_e(w) = \frac{\sigma_a}{1 + T_2^2 (w - w_a)^2} \quad (2.5)$$

Où σ_a est la valeur de la section efficace à la fréquence de résonance w_a , T_2 est le temps de cohérence du *Ti:Sa*.

Pour passer des équations de débit à la formule de Frantz-Nodvik, il faut passer par un long calcul dont le détail est présenté dans l'article original de Frantz et Nodvik [56]. Pour un système à 4 niveaux tel que le *Ti:Sa* la formule de Frantz-Nodvik s'écrit :

$$I(z, t) = \frac{I_0(t - \frac{z}{c})}{1 - [1 - \exp(-\sigma_a \int_0^z N(z') dz')] \times \exp(-(\frac{\sigma_a}{h\nu_a}) \int_0^t I_0(t') dt')} \quad (2.6)$$

A partir de cette formule, on peut déterminer l'éclairement $I(z, t)$ en tout point z et tout instant t du milieu amplificateur en fonction du profil d'éclairement $I_0(t)$ en entrée du milieu et de ces paramètres σ_a et de $N(z)$.

Si on considère que le pompage du milieu amplificateur est uniforme sur toute la longueur du cristal L , l'inversion de population s'écrit $N(z) = N_0$. L'équation de Frantz-Nodvik en sortie du cristal ($z = L$) s'écrit :

$$I_{out}(t) = I_0(t) \times \left[1 - (1 - G_0^{-1}) \exp\left(-\frac{J_0(t)}{J_{sat}}\right) \right]^{-1} \quad (2.7)$$

Où :

- $G_0 = \exp(\sigma_a N_0 L) = \exp\left(\frac{J_{sto}}{J_{sat}}\right)$ est appelé gain petit signal.
- $J_0(t) = \int_0^t I_0(t') dt'$ est la fluence instantanée. Elle correspond au nombre de photons par unité de surface contenus dans l'impulsion jusqu'au temps t . Lorsque t est infini, $J_0(\infty)$ est la fluence de l'impulsion (en $J \cdot cm^{-2}$).
- J_{sat} est la fluence de saturation du milieu est vaut $0.8 J \cdot cm^{-2}$ pour le Ti:Sa.

* J_{sto} représente l'énergie stockée dans le milieu amplificateur. Elle correspond au nombre d'ions excités par unité de surface et susceptibles de fournir une énergie $\hbar\omega$ à l'impulsion à amplifier.

$$J_{sto} = A \times J_p \times \eta_q \times \eta_c \quad (2.8)$$

Où :

- A est le facteur d'absorption du laser de pompe par le cristal.
- $J_p = \frac{E}{\pi R^2}$ (en $J \cdot cm^{-2}$) est la fluence du laser de pompe.
- $\eta_q = \frac{\lambda_{pompe}}{\lambda_{stimulé}}$ appelé défaut quantique.
- η_c appelé rendement de couplage et vaut 1 à une température $\leq 120 K$, [57].

La formule (2.7) décrit l'évolution de l'éclairement de l'impulsion après un passage à travers le milieu amplificateur. Cette formule peut être généralisée à un amplificateur multi-passages, si le gain petit signal $G_0^{(p)}$ et le profil d'intensité $I_{out}^p(t)$ sont connus pour le passage (p). Le profil d'éclairement $I_{out}^{(p+1)}$ pour le passage ($p+1$) est calculé avec (2.7) et le gain résiduel après le passage p s'écrit :

$$G_0^{(p+1)} = \exp \left[\frac{J_{sat} \ln(G_0^{(p)}) - (J_{out}^{(p+1)}(\infty) - J_{out}^{(p)}(\infty))}{J_{sat}} \right] \quad (2.9)$$

Le terme $J_{sat} \ln(G_0^{(p)})$ correspond à l'énergie stockée dans le milieu avant le passage (p) de l'impulsion. Le terme $(J_{out}^{(p+1)}(\infty) - J_{out}^{(p)}(\infty))$ correspond à l'énergie extraite du milieu au passage ($p+1$). Avec J_{out}^p est la fluence de sortie du milieu amplificateur, elle est donnée par :

$$J_{out}^p = J_{sat} \times \text{Ln} \left[G_0 \left(e^{\frac{J_{in}^p}{J_{sat}}} - 1 \right) + 1 \right] \quad (2.10)$$

Dans notre cas, il s'agit de l'amplification des impulsions à dérive de fréquence dont le spectre est large. Il est donc nécessaire d'adapter la formule de Frantz-Nodvik, vu que lors de l'amplification d'impulsion étirée, toute déformation du profil temporel se trouve sur le profil spectral et inversement [59]. L'équation (2.7) se réécrit alors dans le cas des impulsions fortement étirées :

$$I_{out}(t) = I_0(t) \times \left[1 - (1 - G_0^{-1}(w)) \exp \left(-\frac{J_0(t)}{J_{sat}(w)} \right) \right]^{-1} \quad (2.11)$$

Les termes de la formule (2.11) sont les mêmes que dans (2.7), sauf que ici le gain petit signal et la fluence de saturation du milieu dépendent de la fréquence.

- Caractéristique de l'amplificateur multi-passages utilisé

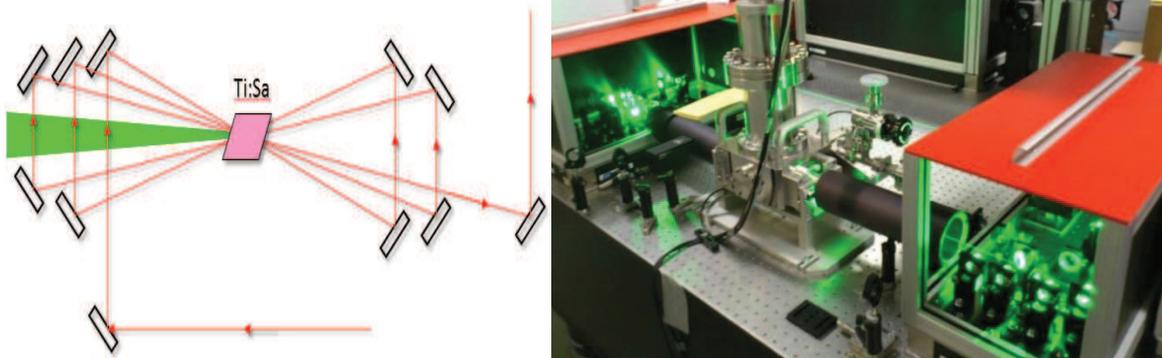


Figure 2.14 : Amplificateur multi-passage.

Afin d'augmenter l'énergie des impulsions en sortie du Front-End, nous utilisons un amplificateur multi-passages. Ce dernier est schématisé dans la figure 2.14, il s'agit d'un amplificateur cinq passages en géométrie "bow-tie" pompé par un laser de pompe ETNA HP (5 kHz, 90W, 532 nm). Pour minimiser les effets de lentille thermique [57], le cristal est placé dans une enceinte ultravide refroidie cryogéniquement jusqu'à 31 °K, figure 2.15.

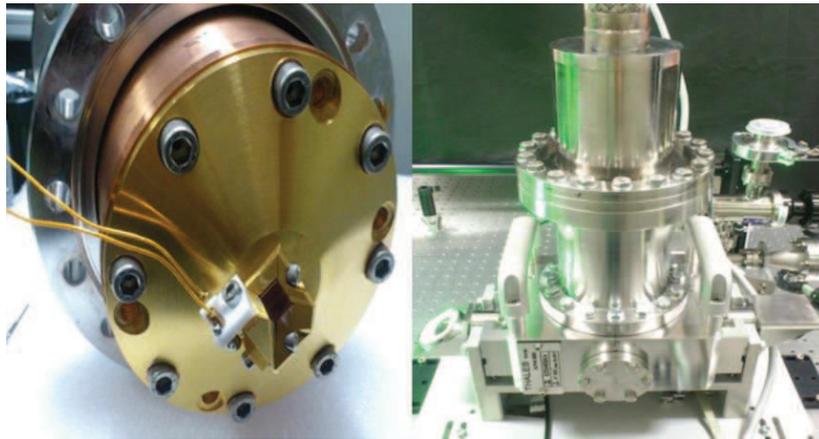


Figure 2.15 : Enceinte ultraviolette cryogénique utilisée pour refroidir le cristal de Ti:Sa de l'amplificateur multi-passage présentée à droite. A gauche, une image montrant le cristal.

En effet à basse température, la conductivité thermique de Ti:Sa augmente beaucoup, comme illustre la figure 2.16, ainsi il est possible, selon la puissance de pompe, de trouver une température pour laquelle la variation d'indice par effet thermique devient négligeable. Cet amplificateur permet de passer de 1.2 mJ (6 W) à $\sim 4 \text{ mJ}$ ($\sim 20 \text{ W}$) avant compression.

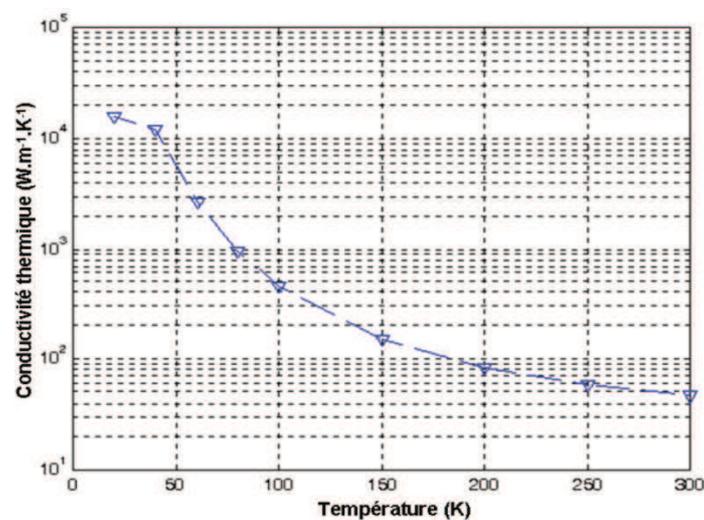


Figure 2.16: Conductivité thermique du Ti:Sa en fonction de la température.

L'amplificateur multi-passages était initialement pompé par deux ETNA HP pour atteindre 40 W avant compression. Pour des raisons de stabilité, nous avons souhaité travailler à plus basse puissance et dédier la sortie uniquement à notre expérience. Afin d'estimer l'extraction optimale avec une seule pompe, nous avons calculé le gain par passage à l'aide d'une approche simplifiée des équations de Frantz-Nodvik.

Les paramètres d'entrée du calcul sont présentés dans le tableau 2.4 :

J_P : Fluence de pompe	0.71 j/cm^2
J_{in} : Fluence du Seed	0.093 j/cm^2
η_q : Défaut quantique	0.665
η_c : Rendement de couplage	1
J_{sat} : Fluence de saturation	0.8 J/cm^2
Facteur de perte	5 %
Nombre de passage	5

Tableau 2.4 : Paramètres utilisés pour le calcul des gains théoriques.

La figure 2.17 montre les valeurs de puissances théoriques obtenues par le calcul, ainsi que les valeurs mesurées expérimentalement.

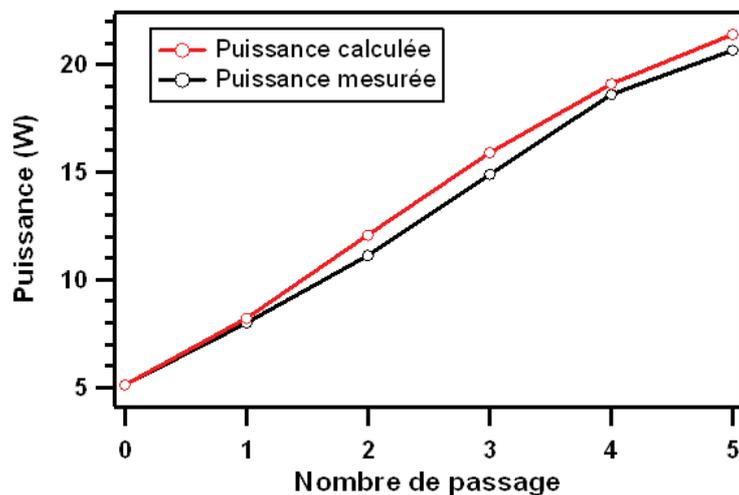


Figure 2.17 : Evolution de la puissance de l'impulsion après chaque passage. La courbe en noir représente les valeurs théoriques calculées et celle en rouge représente les valeurs mesurées expérimentalement.

Le tableau 2.5 récapitule les valeurs des gains théoriques et expérimentaux.

Passage	1	2	3	4	5
Gain calculé	1.61	1.46	1.32	1.2	1.12
Gain mesuré	1.57	1.39	1.34	1.25	1.11

Tableau 2.5 : valeurs des gains expérimentaux et théoriques.

L'écart observé entre les valeurs théoriques et expérimentales peut être expliqué par le fait qu'une légère variation de l'un des paramètres (taille du faisceau) peut être quantifiée lors

du calcul pour passages suivants et que notre approche ne tient pas compte des modifications du profil temporel ni des effets de lentille thermique.

- Compression

Après les étages d'amplification, l'impulsion est recomprimée. L'impulsion en sortie de la chaîne Alpha 5 kHz présente un spectre de 43 nm de largeur à mi-hauteur et une durée de ~ 30 fs, après optimisation du compresseur et des paramètres de phase du Dazzler™ et avec une énergie de ~ 3 mJ (énergie optimale), ce qui correspond à une efficacité du compresseur proche de 75 % (figure 2.18). La stabilité pulse à pulse en sortie de chaîne est de ~ 1.3 % sur 4 heures mesurée à l'aide d'une photodiode rapide.

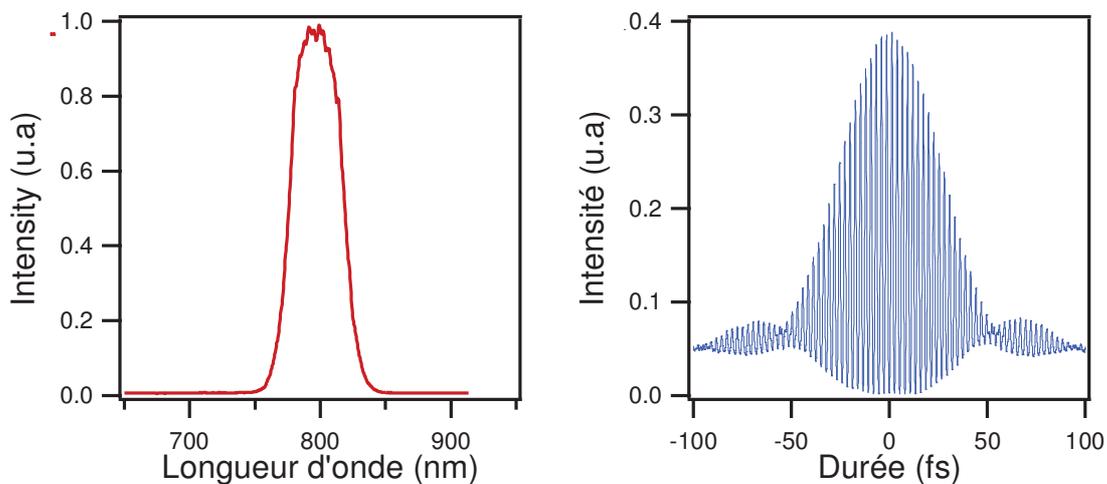


Figure 2.18 : Spectre et trace d'autocorrélation mesurés en sortie de la source *Alpha 5 kHz*. Le spectre présente 43 nm @ FWHM et la durée est de ~ 30 fs.

Par ailleurs, on peut se donner une idée de la répétabilité en puissance de sortie à chaque mise en marche du système, comme illustre la figure 2.19. On peut constater une baisse régulière de la puissance extraite jusqu'au réalignement complet du multi-passe. Dans ces conditions nous avons dû adapter l'injection de la fibre (Partie B) pour avoir une puissance constante d'un jour sur l'autre. On a également pu observer une variation de la divergence du faisceau de sortie liée à la diminution d'extraction et donc à une lentille thermique différente.

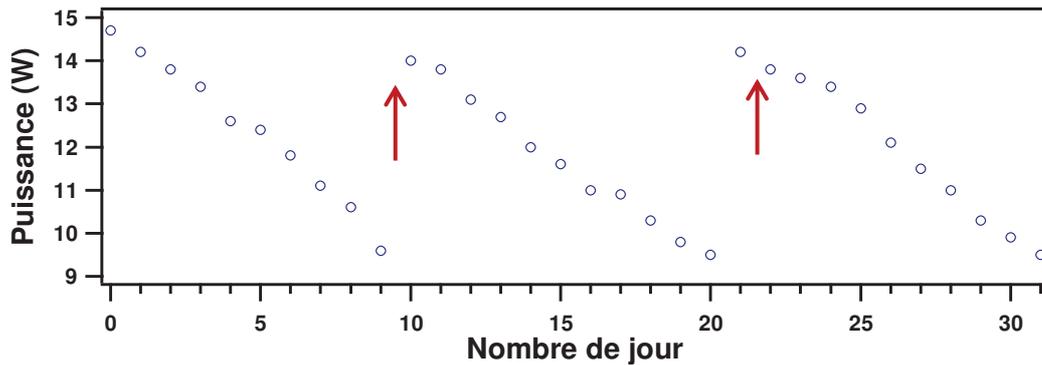


Figure 2.19 : Evolution de la puissance en sortie de chaîne mesurée chaque jour. Les cercles bleus représentent la puissance mesurée chaque jour, la flèche rouge indique un réalignement complet de l'amplificateur multi-passages.

2.1.4. Autres problèmes liés à l'amplification CPA

En plus des effets de rétrécissement, de distorsion spectrale et de lentille thermique, d'autres effets indésirables peuvent apparaître lors de l'amplification des impulsions à dérive de fréquence, tels que la dégradation du contraste temporel de l'impulsion par la présence de différentes structures autour de l'impulsion laser (piédestal, pré- et post-impulsion).

- Contraste temporel de l'impulsion

Le contraste temporel est défini comme le rapport entre l'intensité crête de l'impulsion principale et celle de tout rayonnement parasite qui accompagne cette impulsion à différentes échelles de temps (émission spontanée amplifiée, pré ou post-impulsions, etc.) . Selon le délai qui sépare l'impulsion principale et les impulsions parasites, on distingue deux types de contraste temporel :

Contraste incohérent : (contraste nanoseconde), induit par l'émission spontanée amplifiée (Amplified Spontaneous Emission, ASE) : En effet, lors de l'amplification d'une impulsion laser le cristal émet spontanément des photons dans toutes les directions de l'espace et il existe une probabilité que ce rayonnement soit émis suivant l'axe de propagation de l'impulsion à amplifier, produisant ainsi un piédestal d'énergie autour de l'impulsion principale. Il est généré dans les étages où le gain est très important tel que l'amplificateur régénératif. L'ASE peut être causé d'un mauvais recouvrement entre le faisceau de pompe et l'impulsion à amplifier.

On a mesurée en sortie de la source *Alpha 5 kHz*, à l'aide d'une photodiode rapide visualisée sur un oscilloscope et des densités calibrées, un contraste *ns* pre-pulse du 1 : 1000, figure 2.20.

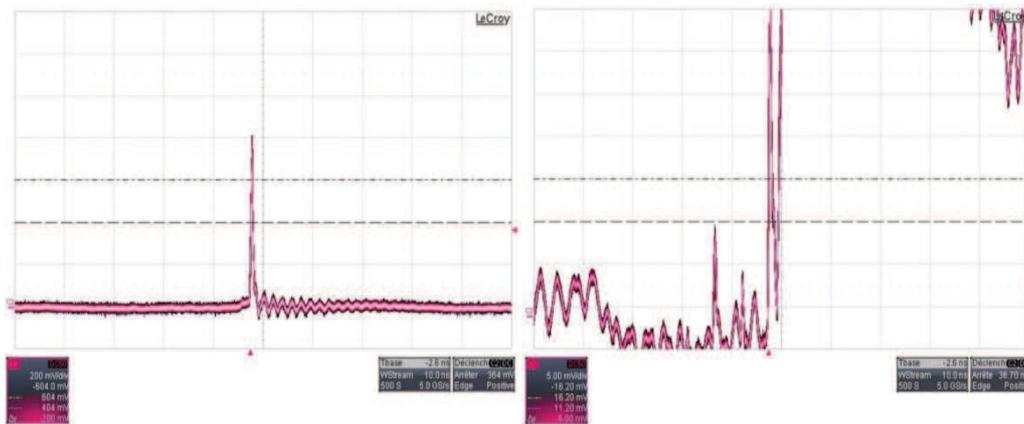


Figure 2.20 : Mesure du contraste ns pré-pulse en sortie de la source *Alpha* 5 kHz. L'impulsion principale est présentée à gauche et à droite la mesure du contraste pre-pulse. Le contraste mesuré est de 1 :1000.

Contraste cohérent : détecté à l'échelle picoseconde appelé aussi contraste picoseconde. La dégradation du contraste peut être due à la présence de réflexions multiples sur les faces de la cellule de Pockels, à un alignement imparfait entre l'axe du cristal et celui de la cellule de Pockels ou à un défaut de compression. Si l'intensité de ces pré-impulsions est assez importante, elles peuvent ioniser la matière avant l'arrivée de l'impulsion principale, ce qui perturbe les expériences d'interaction forte tel que la génération d'harmonique d'ordre élevé. La présence de pré- ou post-impulsions ne peut être détectées qu'avec un corrélateur du troisième ordre à grande dynamique.

2.2. Génération d'impulsions de quelques cycles optiques

Lors de l'amplification d'une impulsion par dérive de fréquence CPA, l'impulsion amplifiée voit son spectre se rétrécir, dû au fait que le gain du Ti:Sa n'est pas le même sur toutes les longueurs d'ondes (spectral narrowing). Cet effet de rétrécissement spectral par le gain implique l'augmentation de la durée de l'impulsion après compression.

En 1996, M. Nisoli et al. [60] ont montré une nouvelle technique de post-compression jusqu'à quelques cycles optiques, qui est bien adaptée pour les impulsions ultracourtes à haute énergie (mJ). Cette technique, illustrée sur la figure 2.22, basée sur l'auto-modulation de phase dans une fibre creuse d'environ $1m$ de long remplie de gaz rare, permet de générer de nouvelles fréquences dans le spectre de l'impulsion. La dérive de fréquence présente en sortie de fibre est ensuite compensée par un dispositif de compression. On peut ainsi produire des impulsions d'une durée de inférieure à $5 fs$ et ayant une énergie comprise entre $0,5$ et $1,2 mJ$ [61,62].

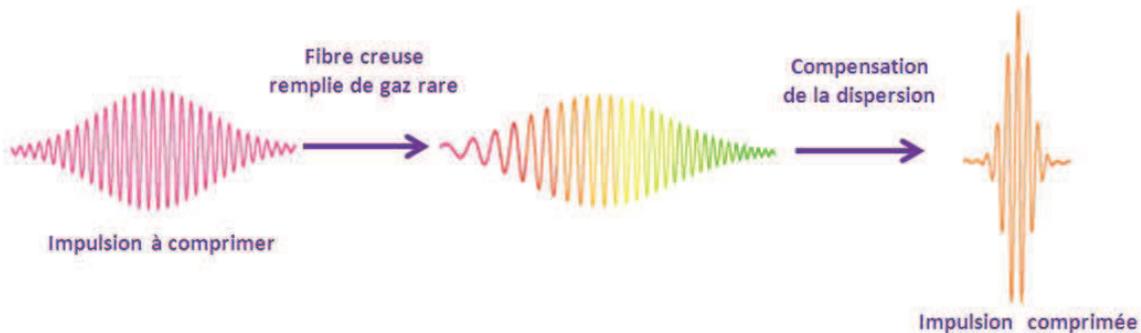


Figure 2.22: Compression d'impulsion dans une fibre creuse remplie de gaz rare.

Dans cette deuxième partie, nous présentons les différents effets à prendre en compte pour décrire la propagation et l'élargissement spectral d'impulsions ultra-brèves dans une fibre creuse remplie de gaz rare. Les premières parties sont consacrées aux modes de propagation d'une impulsion laser dans une fibre creuse remplie de gaz rare, ainsi qu'à l'effet Kerr optique qui permet d'introduire les différents processus à l'origine de l'élargissement spectral des impulsions. La dernière partie présente la capacité de compression de notre dispositif.

2.2.1. Modes de propagation dans une fibre creuse

La propagation d'une onde lumineuse dans un guide d'onde creux est un sujet qui a été très bien étudié en 1964 par Marcatili et Schmeltzer [63]. La propagation de l'impulsion le long de la fibre creuse est la succession de multiples réflexions rasantes à l'interface gaz/silice, schématisée sur la figure 2.23. Pour une fibre suffisamment longue et vu les pertes d'énergie

par les réflexions multiples sur les parois de la fibre, seul le mode fondamental sera transmis favorisant ainsi une bonne qualité spatiale.

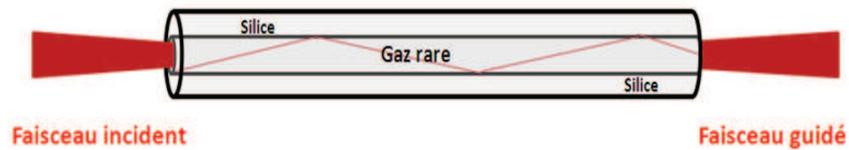


Figure 2.23 : Propagation d'un faisceau laser au travers d'une fibre creuse remplie de gaz rare.

Selon Marcatili, les modes propres d'une fibre creuse peuvent être divisés en trois catégories : * mode électrique circulaire transverse TE_{0m} où les composantes radiales et axiales du champ électrique sont nulles. * mode magnétique circulaire transverse TM_{0m} où les composantes radiales et axiales du champ magnétique sont nulles. * mode hybride EH_{pm} ($p \neq 0$), où toutes les composantes du champ électrique et magnétique sont non nulles.

Pour une fibre à symétrie cylindrique et dont le diamètre interne est bien supérieur à la longueur d'onde de l'impulsion guidée, les modes EH_{1m} sont les modes qui présentent la moindre perte, leurs profils spatiaux ($m = 1, 2$ et 3) sont représentés sur la figure 2.24.

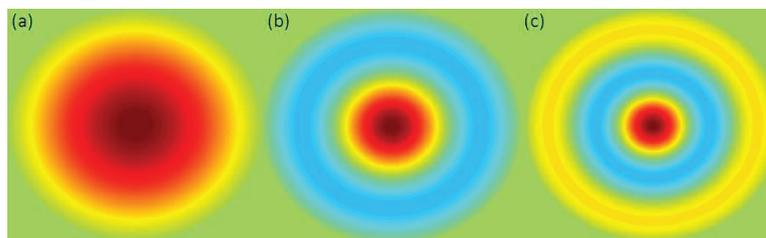


Figure 2.24 : Modes hybrides d'une fibre creuse, (a) EH_{11} , (b) EH_{12} , (c) EH_{13} .

Le mode EH_{11} est celui qui offre la meilleure efficacité de couplage avec le faisceau laser et donc le moins de pertes en énergie, son profil d'intensité est donné par l'équation suivante :

$$I_{1m} = I_0 J_0^2 \left(\alpha_{1m} \frac{r}{a} \right) \quad (2.12)$$

Où I_0 est l'intensité crête de l'impulsion, J_0 est la fonction de Bessel d'ordre zéro, α_{1m} est la racine m-ième de J_0 et a le rayon interne de la fibre creuse. Les valeurs de α_{1m} par les trois premiers modes sont données dans le tableau suivant :

α_{nm}	$m = 1$	$m = 2$	$m = 3$
$n = 1$	2.4048	5.5201	8.6537

Tableau 2.1 : Valeurs des premiers zéros de la fonction de Bessel J_0 [63].

Le facteur d'atténuation de ces modes est donné par la relation suivante :

$$\frac{\alpha}{2} = \left(\frac{\alpha_{1m}}{2\pi} \right)^2 \frac{\lambda^2}{2a^3} \frac{\vartheta^2 + 1}{\sqrt{\vartheta^2 - 1}} \quad (2.13)$$

Où λ est la longueur d'onde du laser et ϑ est le rapport entre les indices de réfraction des milieux extérieur (silice) et intérieur (gaz). L'équation (2.13) montre que l'atténuation est proportionnelle à $\frac{\lambda^2}{a^3}$, on constate donc que plus a est grand, meilleure est la transmission.

Un autre paramètre très important pour avoir une meilleure efficacité est le couplage du faisceau incident avec la fibre. Le taux de couplage η_{1m} d'un faisceau gaussien dans les modes de propagation EH_{1m} en fonction du rapport entre ω_0 (rayon du faisceau à $1/e^2$ à l'entrée de la fibre) et a (rayon interne de la fibre) est donné par la relation suivante :

$$\eta_{1m} = \frac{\left[\int_0^a \exp\left(\frac{-r^2}{\omega_0^2}\right) J_0\left(\alpha_{1m} \frac{r}{a}\right) r dr \right]^2}{\int_0^\infty \exp\left(\frac{-2r^2}{\omega_0^2}\right) r dr \int_0^a J_0^2\left(\alpha_{1m} \frac{r}{a}\right) r dr} \quad (2.14)$$

L'équation (2.14), permet de montrer que si le rapport $\omega_0/a = 0.65$, 98% (théoriquement) du faisceau incident est couplé avec le mode EH_{11} [64]. Si la taille du faisceau n'est pas bien ajustée avant de coupler avec la fibre, la transmission diminue et la qualité spatiale du faisceau en sortie de fibre se dégrade.

2.2.2. Effet Kerr optique

Lorsqu'un champ électrique faible interagit avec la matière, la réponse du milieu est considérée comme linéaire et sa polarisation $P(r, \omega)$ est proportionnelle à l'amplitude du champ électrique appliqué ($P(r, \omega) = \chi^1 E(\omega)$). Par contre à haute intensité la réponse du milieu n'est plus proportionnelle au champ électrique. La polarisation du matériau en fonction du champ électrique appliqué s'écrit sous la forme suivante :

$$P(r, \omega) = \varepsilon_0 \times (\chi^1 E(r, \omega) + \chi^2 E^2(r, \omega) + \chi^3 E^3(r, \omega) + \dots) \quad (2.15)$$

Où χ^n est le tenseur de susceptibilité diélectrique d'ordre n et ε_0 est la constante de permittivité dans le vide. Dans le cas de matériaux optiques ayant un centre de symétrie, les tenseurs d'ordre pair sont nuls, la susceptibilité non-linéaire d'ordre trois est ainsi la première non linéarité.

L'équation (2.15) peut alors s'écrire sous la forme suivante :

$$P(r, \omega) = P_L(r, \omega) + P_{NL}(r, \omega) = \varepsilon_0 [\chi^1 + \varepsilon_{NL}] E(r, \omega) \quad (2.16)$$

ε_{NL} représente la contribution non-linéaire de la constante diélectrique du matériau. Elle est définie par l'équation qui suit :

$$\varepsilon_{NL} = \frac{3}{4} \chi^3 |E(r, \omega)|^2 \quad (2.17)$$

A partir des équations de Maxwell, l'indice de réfraction n et la polarisation P sont liés par la relation suivante :

$$D = n^2 |E(r, \omega)| = \varepsilon_0 |E(r, \omega)| + P(r, \omega) \quad (2.18)$$

L'indice de réfraction n peut s'écrire comme suit :

$$n^2 = 1 + \chi^1 + \varepsilon_{NL} \quad (2.19)$$

En posant, $n_0^2 = 1 + \chi^1$ et sachant que l'indice de réfraction non-linéaire est très inférieur à l'indice linéaire, on peut écrire :

$$n^2 = [n_0 + \Delta n_{NL}]^2 \cong n_0^2 + 2n_0 \Delta n_{NL} \quad (2.20)$$

D'où

$$\Delta n_{NL} = \frac{\varepsilon_{NL}}{2n_0} = \frac{3}{8n_0} \chi^3 |E(r, \omega)|^2 = n_2 |E(r, \omega)|^2 \cong n_2 I \quad (2.21)$$

n_2 représente l'indice de réfraction non-linéaire et I l'intensité du champ électrique. L'indice de réfraction total et à une pulsation ω peut s'écrire sous la forme suivante :

$$n(\omega) = n_0(\omega) + n_2(\omega).I \quad (2.22)$$

D'après l'équation (2.22), on voit que la partie non-linéaire de l'indice de réfraction dépend de l'intensité. Ce phénomène est appelé **effet Kerr optique**, découvert en 1875 par le physicien écossais John Kerr.

Dans le cas d'une impulsion gaussienne, l'intensité varie en fonction du temps et de l'espace ce qui induit une variation de l'indice de réfraction. Cette dépendance de l'indice en fonction de l'intensité peut être à l'origine de nombreux effets non-linéaires (auto-modulation de phase SPM, auto-raïdissement SS, auto-focalisation, ionisation) lors de la propagation de l'impulsion dans une fibre creuse remplie de gaz rare. Dans la suite, ces effets non-linéaires seront détaillés.

2.2.2.1. Elargissement spectral par auto-modulation de phase

L'idée de comprimer des impulsions par auto-modulation de phase SPM (Self Phase Modulation) a été introduite avec les fibres optiques en 1981 par Nakatuska [65]. Quelques années plus tard, cette technique a permis à R. L. Fork de comprimer des impulsions de 50 fs à une durée de 6 fs en utilisant une fibre optique en quartz de longueur 0.9 cm et de diamètre $\sim 4\mu m$ et une combinaison de réseaux de diffraction et de prismes pour la compensation de la dispersion [66].

Pour comprendre le processus l'élargissement spectral, considérons un champ intense se propageant au sein d'une fibre optique de longueur L . Ce dernier va subir un déphasage non-linéaire proportionnel à l'intensité du champ, via une variation locale de l'indice de réfraction due à l'effet Kerr optique. Si on prend en compte la dépendance temporelle de l'intensité, l'indice de réfraction à une fréquence donnée peut s'exprimer sous la forme suivante:

$$n = n_0 + n_2 I(t) \quad (2.23)$$

Où n_0 représente l'indice de réfraction linéaire du milieu, n_2 son indice non linéaire et $I(t)$ est l'intensité du champ laser. L'indice de réfraction non linéaire n_2 dépend de la nature du milieu. Par exemple, la valeur de n_2 vaut $3 \cdot 10^{-16} cm^2/W$ pour une fibre optique en silice fondue. Alors que pour une fibre creuse, n_2 est déterminé par la nature du gaz injecté dans la fibre (pour 1 bar de néon, $n_2 = 7,4 \cdot 10^{-21} cm^2/W$) [67].

Le changement dans l'indice de réfraction induit une modulation de la phase du champ laser, c'est le phénomène **d'auto-modulation de phase**. Le terme de déphasage induit par l'indice de réfraction non linéaire dans un milieu de longueur L s'écrit :

$$\Phi_{NL}(t) = \frac{2\pi}{\lambda_0} n_2 I(t) L \quad (2.24)$$

La variation temporelle de la phase non linéaire permet la création de nouvelles fréquences qui vérifient la relation :

$$\Delta\omega(t) = \omega(t) - \omega_0 = -\frac{\partial\Phi_{NL}}{\partial t} = -\frac{2\pi}{\lambda_0}n_2L\frac{\partial I}{\partial t} \quad (2.25)$$

L'équation (2.25) montre que dans le cas d'un milieu d'indice non-linéaire positif, l'avant de l'impulsion ($t < 0$) est élargi vers le rouge (redshift) et l'arrière ($t > 0$) vers le bleu (blueshift). Il en résulte un élargissement du spectre et donc la possibilité d'obtenir des impulsions plus courtes.

2.2.2.2. Effets de dispersion

En plus de l'auto-modulation, l'effet de dispersion est un phénomène très important pour la compression des impulsions dans une fibre creuse. La propagation d'une impulsion ultracourte dans un milieu dispersif de longueur L (air, verre, etc.), induit une variation de la phase spectrale de l'impulsion $\Phi(\omega) = \beta(\omega).L$, ce qui induit à son tour des distorsions dans le profil temporel de l'impulsion. Dans le cas où la variation de l'indice de réfraction du milieu avec la pulsation est faible, on peut effectuer un développement de Taylor de cette dernière autour de la pulsation centrale du laser ω_0 :

$$\beta(\omega) = \beta_0 + \beta_1(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\beta_2(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\beta_3(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (1.26)$$

Où
$$\beta_n = \frac{\partial^n \beta}{\partial \omega_0^n}, \text{ en } \omega_0 \text{ et } n = 1, 2, 3, \dots \quad (2.27)$$

Les dérivées d'ordres n sont nommées dispersion d'ordre n . Le terme β_1 représente la vitesse à laquelle se propage l'énergie de l'impulsion, $\beta_1 = 1/v_g$ (v_g est la vitesse de groupe). Le terme β_2 est appelé dispersion de vitesse de groupe (GVD: Group Velocity Dispersion), traduit la dépendance de la vitesse de propagation de l'énergie par rapport à la fréquence de l'onde.

L'effet relatif de l'auto-modulation de phase et de la dispersion est déterminé par ces deux longueurs caractéristiques :

La longueur non-linéaire
$$L_{NL} = \frac{1}{\gamma P_0} \quad (2.28)$$

La longueur de dispersion
$$L_{disp} = \frac{T_0^2}{|\beta_2|} \quad (2.29)$$

Où P_0 est la puissance crête de l'impulsion et γ le coefficient de non linéarité. T_0 est la durée initiale de l'impulsion, β_2 est la dispersion de la vitesse de groupe. Ces paramètres quantifient les longueurs physiques sur lesquelles l'auto-modulation de phase et la

dispersion de vitesse de groupe jouent un rôle important sur l'évolution de l'impulsion se propageant dans la fibre.

Afin d'obtenir un bon spectre en sortie de fibre, Il est nécessaire donc de trouver un bon équilibre entre SPM et la dispersion. Lorsque $L_{NL} \gg L_{disp}$, la durée de l'impulsion tout au long de sa propagation dans le milieu est gouvernée par la dispersion de vitesse de groupe. L'auto-modulation de phase est alors négligeable. D'où un élargissement temporel de l'impulsion. Dans le cas contraire, SPM domine les effets de dispersion. Il en résulte donc un élargissement spectral, et les nouvelles fréquences générées ne sont pas en phase [68].

2.2.2.3. Auto-raïdissement

L'auto-raïdissement (Self-steepening SS) est un effet qui résulte de la dépendance en intensité de la vitesse de groupe [68]. SS mène à une asymétrie dans le spectre élargi par SPM. En effet, le centre de l'impulsion voit un indice plus fort que les bords de l'impulsion, ce qui introduit une déformation sur le profil temporel de l'impulsion, illustré sur la figure 2.25. Le front avant de l'impulsion voit sa pente diminuer alors que le front arrière se raidit. Cela implique que l'élargissement spectral sera plus fort à l'arrière de l'impulsion et l'élargissement se fait plus vers les hautes fréquences (blueshift). Par contre, la partie rouge du spectre (redshift) va être plus intense : cela est dû au fait que le front montant de l'impulsion est plus étalé temporellement, donc l'énergie accumulée dans le front montant est plus importante que sur le front descendant.

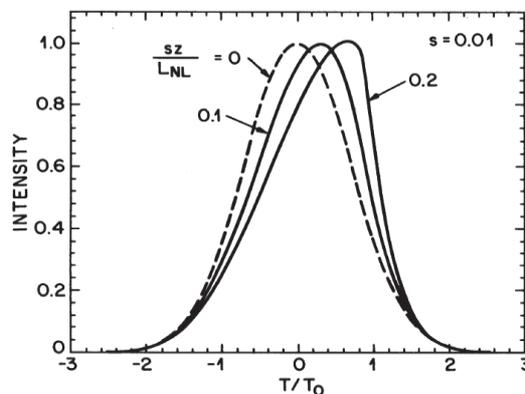


Figure 2.25 : auto-raïdissement d'une impulsion gaussienne dans le cas de non dispersion. La courbe en trait discontinu montre la forme de l'impulsion à $z = 0$ [68].

La longueur caractéristique de l'auto-raïdissement est donnée par la relation suivante :

$$L_{SS} = \frac{L_{NL}}{s} \quad (2.30)$$

Avec τ désigne la durée de l'impulsion et s est proportionnel à l'inverse du nombre de cycle optique. Dans le cas des impulsions de quelques dizaines de cycles optiques ($s > 0.01$), l'auto-raïdissement SS est indissociable de SPM. Dans le cas des impulsions longues ($s < 0.01$), SS est négligeable devant SPM.

2.2.2.4. Auto-focalisation

L'auto-modulation de phase décrite précédemment est la conséquence temporelle de l'effet Kerr. Dans cette partie nous évoquons la conséquence de l'effet Kerr dans le domaine spatial, appelé auto-focalisation. Si on considère un faisceau gaussien se propageant dans un milieu non linéaire d'indice $n_2 > 0$ et de profil $I(r)$, l'indice de réfraction du milieu s'écrit :

$$n = n_0 + n_2 I(r) \quad (2.31)$$

La variation spatiale de l'indice de réfraction affecte la propagation du faisceau et engendre l'effet d'une lentille convergente, l'indice étant plus grand au centre du faisceau que sur les bords, appelé lentille Kerr. Cet effet d'auto-focalisation induit l'augmentation de l'intensité de l'impulsion, voire ionisé le milieu, et donc l'apparition de nouveaux effets non-linéaire.

2.2.2.5. Ionisation

Lorsqu' une impulsion laser ultra-courte est focalisée dans un gaz (ayant une intensité supérieur à $10^{14} W/cm^2$) peut ioniser ce dernier et un plasma est ainsi créée. L'indice de réfraction d'un plasma s'écrit :

$$n(t) = \sqrt{1 - \frac{n_e(t)}{n_c}} \quad (2.32)$$

Avec n_c est la densité critique du plasma (densité à partir de laquelle la longueur d'onde considérée ne peut plus se propager dans le plasma) et n_e désigne la densité électronique.

L'équation (2.32) montre la dépendance de l'indice du plasma avec la densité électronique. L'évolution de cette dernière au cours du temps va entraîner une variation de l'indice optique du milieu, ainsi la création de nouvelles fréquences. Dans le cas où $n_e \ll n_c$, la variation d'indice s'écrit comme suit :

$$n(t) \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{n_e(t)}{n_c} \rightarrow \frac{\partial n(t)}{\partial t} = -\frac{1}{2n_c} \frac{\partial n_e(t)}{\partial t} \quad (2.33)$$

Comme la densité électronique ne fait que croître au cours de la propagation, la variation de l'indice est toujours négative, ce qui correspond à la création de nouvelles fréquences plus élevées (longueurs d'onde plus courtes (Blueshift)).

2.2.3. Compression des impulsions par des miroirs dispersifs

L'auto-modulation de phase dans une fibre creuse remplie de gaz rare permet d'avoir des impulsions avec un spectre très large, permettant potentiellement d'obtenir des impulsions de quelques cycles optiques. L'utilisation d'un dispositif de compression est alors nécessaire

pour obtenir ces impulsions ultra-courtes vu que lors de SPM, les nouvelles fréquences créées ne se propagent pas avec la même vitesse de phase.

En 1997, M. Nisoli et al. [69] ont obtenu des impulsions de 5 fs avec une énergie de quelques μJ , en utilisant une combinaison de prismes et de miroirs dispersifs CM (Chirped Mirrors). Cette combinaison de prismes et de CM est ensuite remplacée par S. Sartania et al. [61], par un compresseur composé uniquement de CM, avec lequel ils ont obtenu des impulsions de 5 fs d'une énergie de 0.5 mJ. Les CM peuvent être conçus de façon à ajouter une dispersion négative constante sur une large bande spectrale.

Un miroir dispersif est formé de plusieurs couches optiques [70], où on utilise en alternance un matériau ayant un indice de réfraction faible et un autre ayant un indice de réfraction élevé, schématisée sur la figure 2.26. Les composantes de basses fréquences du spectre pénètrent plus profondément dans l'empilement de couches que les composantes hautes fréquences. Il en résulte donc la génération de dispersion négative sur l'impulsion réfléchie.

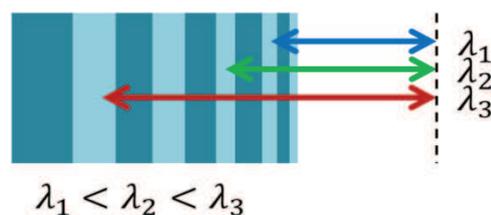


Figure 2.26 : Principe d'un miroir dispersif. Les courtes longueurs d'onde sont les premières à être réfléchies afin d'assurer une GDD négative (GDD : Group Delay Dispersion).

2.2.4. Génération d'impulsions de quelques cycles optiques

2.2.4.1. Dispositif expérimental

Le schéma de l'expérience est dessiné sur la figure 2.27. Les impulsions issues de la chaîne Alpha 5 kHz traversent un télescope 3:1 afin de pouvoir ajuster la taille du faisceau à l'entrée de fibre. Elles sont ensuite focalisées à l'entrée d'une fibre creuse située à l'intérieur d'un tube rempli d'un gaz rare (néon, $I_{SBI}(Ne) = 8,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$), dont la pression peut être finement ajustée. Le tube est fermé par deux fenêtres taillées à Brewster de façon à avoir le minimum de pertes. La fibre fait 1 mètre de long et a un diamètre interne de $250 \mu\text{m}$, elle est maintenue dans un V-groove (commercialisé par Femtolaser). Le faisceau en sortie de fibre passe par un miroir collimateur et ensuite réfléchi sur un lots de 8 miroirs dispersifs (Comp1) très large bande, afin de remettre en phase les nouvelles fréquences en introduisant une GDD totale de -300 fs^2 . Une paire de lame wedges permet ensuite de bien ajustée la compression. Les impulsions sont caractérisées à l'aide d'un autocorrélateur interférométrique du second ordre "Femtometer" commercialisé par Femtolaser.

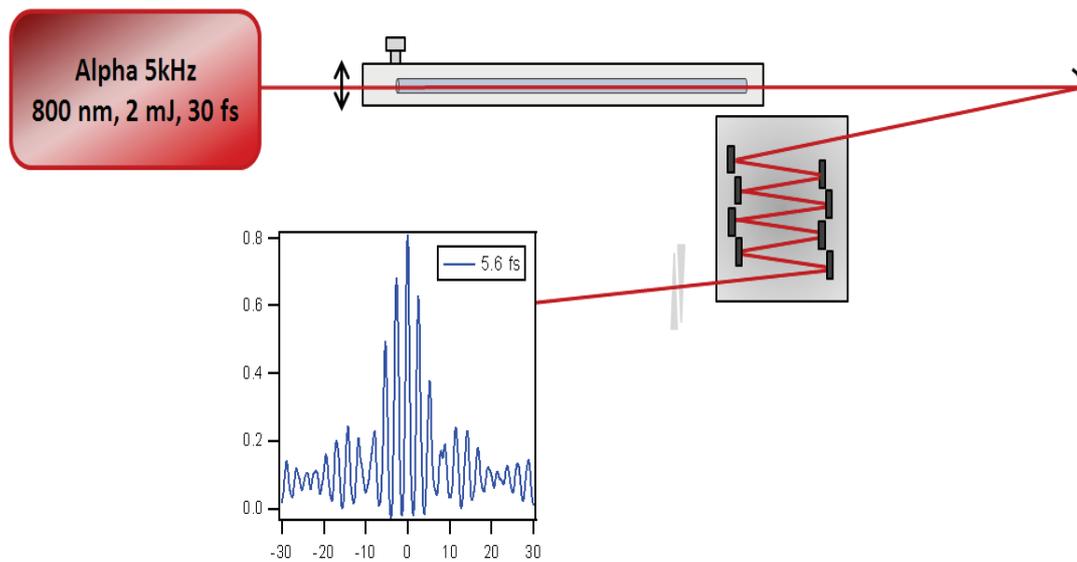


Figure 2.27 : Compression d'impulsions dans une fibre creuse remplie de gaz rare.

2.2.4.2. Résultats expérimentaux

- Influence du couplage

Le couplage du faisceau incident avec les modes de la fibre est le premier paramètre à optimiser afin d'arriver à avoir un bon élargissement spectral, une transmission élevée et une bonne qualité du profil spatial. Pour maximiser le pourcentage de couplage avec la fibre, nous avons donc travaillé à améliorer la taille du spot à l'entrée de la fibre. La meilleure taille du spot qu'on a mesuré vaut $\sim 230 \mu\text{m}$ sur l'axe X et $\sim 195 \mu\text{m}$ sur l'axe Y, illustrée sur la figure 2.28. Nous avons mesuré une efficacité de 43 % sans le gaz comparable à la valeur donnée par le constructeur.

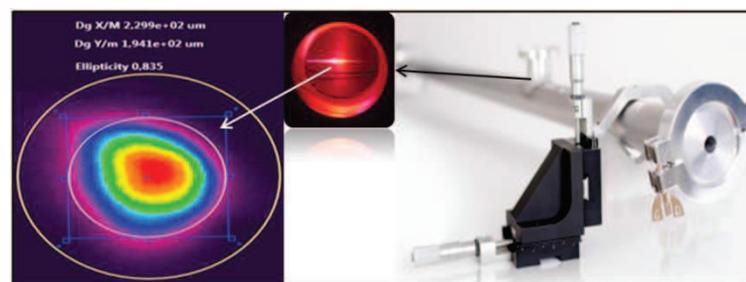


Figure 2.28 : Mesure du faisceau à l'entrée de fibre, mesuré par une caméra Ophir-Spiricon. La taille du spot mesurée vaut $\sim 230 \mu\text{m}$ sur l'axe X et $\sim 195 \mu\text{m}$ sur l'axe Y.

Cette énorme différence la valeur de la transmission théorique et expérimentale peut être due à la contribution de plusieurs facteurs : (* dégradation de la qualité du faisceau par rapport au faisceau gaussien $M^2 > 1$. * le changement de pointée à l'entrée de fibre. * la qualité de fibre, la moindre imperfection sur la surface de la fibre peut engendrer une réduction du taux de couplage...).

- Influence de la pression

Nous étudions ici, l'influence de la pression du gaz sur l'élargissement spectral. Les résultats obtenus dans le néon sont représentés dans la figure 2.29 :

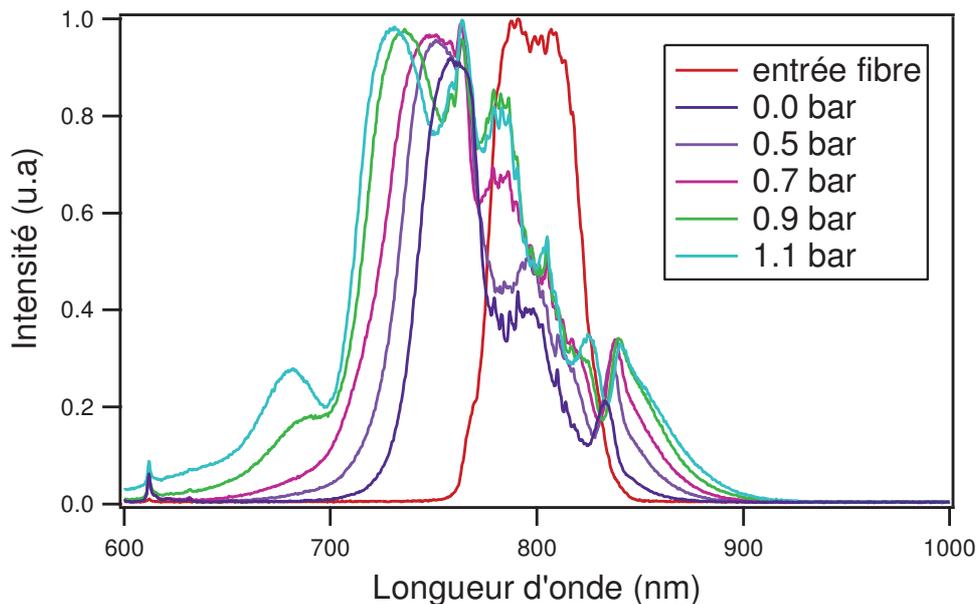


Figure 2.29 : Evolution du spectre en sortie de la fibre creuse en fonction de la pression du néon pour une pression de 0 à 1.1 bar. Le spectre en rouge représente le spectre injecté dans la fibre.

La figure 2.29 présente l'évolution du spectre en sortie de fibre pour une pression de néon comprise entre 0 et 1.1 bar. L'énergie en entrée de fibre vaut $E_{EF} = 2 \text{ mJ}$. Le spectre de référence avant l'élargissement spectral est représenté en rouge, ayant 43 nm de largeur à mi-hauteur. On remarque ici, que plus on augmente la pression du gaz, plus le spectre s'élargit, cela est dû au fait que l'indice non linéaire du gaz augmente de façon linéaire avec la pression. Pour une pression égale à 1.1 bar, le spectre présente une largeur de 95 nm @ FWHM. On voit aussi que l'élargissement spectral se fait plus vers les courtes longueurs d'ondes (blueshift) que sur les grandes longueurs d'onde (redshift) du spectre. Cela peut être expliqué par la présence des effets combinés de l'auto-modulation de phase, d'ionisation et d'auto-raïdissement du gaz. L'énergie en sortie de fibre vaut 0.68 mJ, soit une efficacité de 39 %. Cette baisse d'efficacité peut être à l'origine différents effets tel que l'auto-focalisation (changement de taille du spot, d'où l'efficacité de couplage).

- Compression des impulsions à quelques cycles optiques

Afin de réaliser la compression, l'impulsion issue de la fibre est réfléchiée 8 fois sur des miroirs dispersifs très large bande ($620\text{ nm} - 920\text{ nm}$), pour remettre en phase les nouvelles fréquences générées dans la fibre, en introduisant une dispersion totale de -300 fs^2 . Ensuite, l'impulsion est caractérisée à l'aide d'un autocorrélateur interférométrique d'ordre 2, figure 2.30.

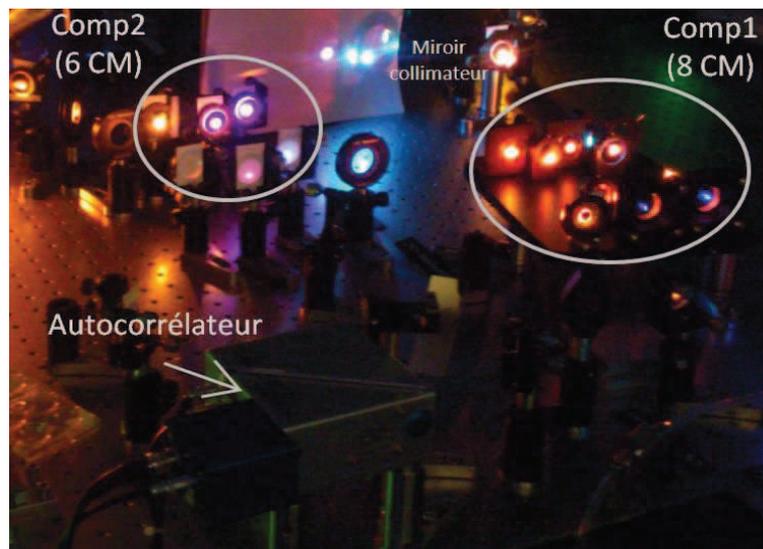


Figure 2.30 : Dispositif de compression des impulsions issues de la fibre. Comp1 : 8 CM avec une GDD totale de -300 fs^2 , utilisé pour compenser les dispersions rajoutées par la fibre. Comp2 : 6 CM avec une GDD totale de -270 fs^2 , utilisée pour pré-compenser les dispersions rajoutées jusqu'au milieu de génération des harmoniques d'ordres élevés (chapitre 3).

Nous avons mesuré comme durée optimale avec ce système de post-compression, une durée de 5.6 fs, illustrée sur la figure 2.31.

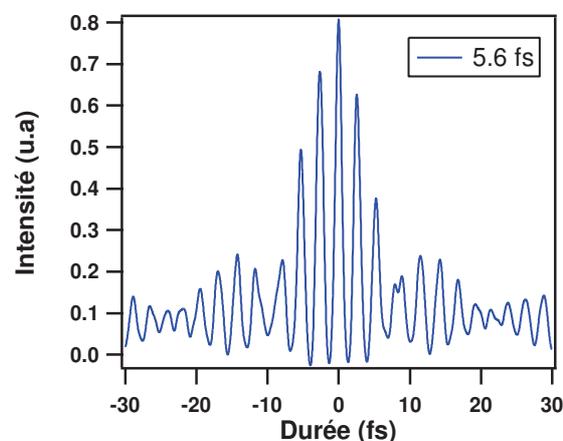


Figure 2.31 : Trace d'autocorrélation interférométrique en sortie du Comp1. La durée est de 5.6 fs pour une limite de fourrier égale à 4.9 fs.

Etant donné les problèmes rencontrés avec l'amplificateur multi-passage (répétabilité de puissance d'un jour sur l'autre et variation de la divergence du faisceau en sortie de chaîne, il était difficile de garder la même efficacité de la fibre. En routine, la durée mesurée en sortie de fibre est de 8 fs (figure 2.32).

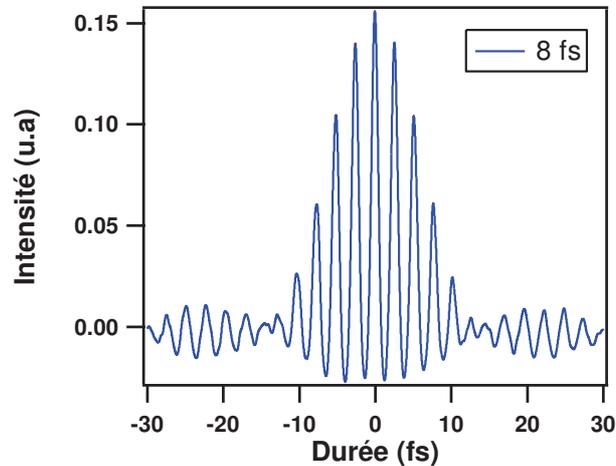


Figure 2.32 : Trace d'autocorrélation interférométrique correspondant à une durée de 8 fs.

- Installation d'un deuxième compresseur de miroirs dispersifs

Les impulsions issues du système de post-compression seront utilisées pour faire des expériences de spectroscopie résolues en temps, avec un bras sonde dans la gamme spectrale XUV obtenu par génération d'harmonique d'ordre élevé dans un gaz rare et un bras pompe centré à 800 nm.

Nous avons donc installé un deuxième compresseur (Comp2), présenté sur la figure 2.30, constitué de 6 CM permettant d'introduire une dispersion de -45 fs^2 par rebond, afin de pré-compenser les dispersions positives rajoutées après traversée de différents milieux dispersifs (air, optiques). Nous avons ensuite caractérisé la durée d'impulsion en sortie du Comp2 et nous avons mesuré une durée de 6.2 fs après un rajout de 9 mm de verre, figure 2.33. La durée d'impulsion en sortie du Comp1 vaut 6.5 fs. On peut conclure que ce compresseur nous permet de compenser de l'équivalent de 9 mm de verre.

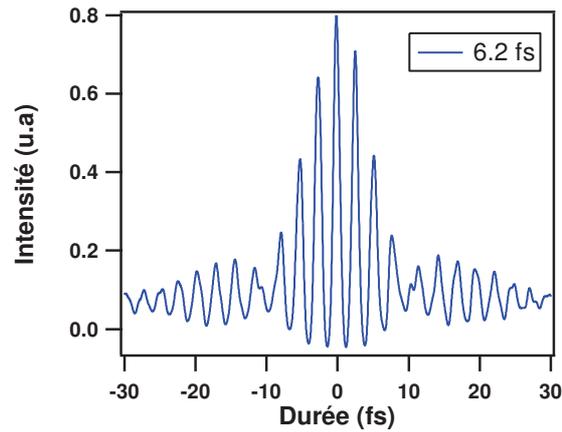


Figure 2.33 : trace d'autocorrélation interférométrique en sortie du Comp2, obtenue après un rajout de 9 mm de verre.

Bilan récapitulatif :

La figure 2.34 présente un bilan récapitulatif des caractéristiques optimales de la source laser Alpha 5 kHz et du système de post-compression qui seront utilisé pour les expériences de cette thèse :

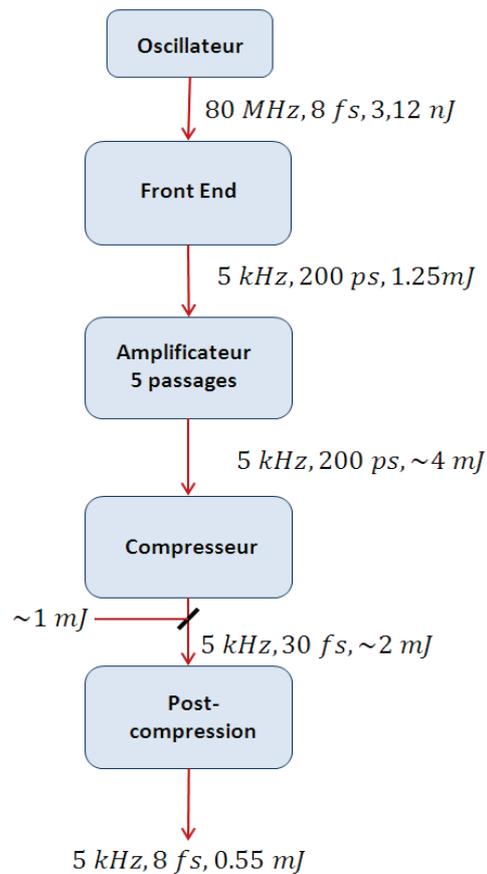


Figure 2.34 : Caractéristiques de la chaîne et du système de post-compression.

Chapitre 3

Génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz

Sommaire

3.1. Aspects microscopiques de la génération d'harmoniques	59
3.1.1. Modèle semi-classique : modèle à trois étapes	59
3.1.1.1. Ionisation tunnel	60
3.1.1.2. Accélération de l'électron libre dans le champ laser	62
3.1.1.3. Recombinaison radiative de l'électron et de l'ion parent.....	63
3.1.2. Modèle quantique : modèle de Lewenstein.....	66
3.2. Aspects macroscopiques de la génération d'harmoniques : (accord de phase)	71
3.2.1. Accord de phase dans un milieu dilué.....	72
3.2.2. Influence des effets de dispersion atomique et électronique	75
3.2.3. Condition d'accord de phase généralisée	76
3.3. Optimisation de la génération d'harmonique	79
3.3.1. Influence du milieu générateur	79
3.3.2. Influence de l'éclairement laser	79
3.3.3. Influence de la durée d'impulsion	80
3.4. Présentation de la ligne harmonique	81
3.4.1. Optimisation expérimentale de la source harmonique	83
3.4.1.1. Génération dans l'argon.....	84
3.4.1.1. Génération dans le néon.....	86

Introduction

Le phénomène de génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG) dans les gaz rares a été observé pour la première fois en 1987 à Chicago par A. McPherson et al. [11] et juste quelques mois après à Saclay par M. Ferray [12]. La HHG est obtenue en focalisant dans un gaz rare (Kr, Xe, Ar, Ne, He) une impulsion laser courte de fréquence ω_0 avec un éclairement supérieur à 10^{13} W/cm^2 . L'interaction hautement non-linéaire entre le champ laser intense et les atomes du milieu gazeux donne naissance à un rayonnement XUV dans la direction de propagation du faisceau générateur, Figure 3.1.

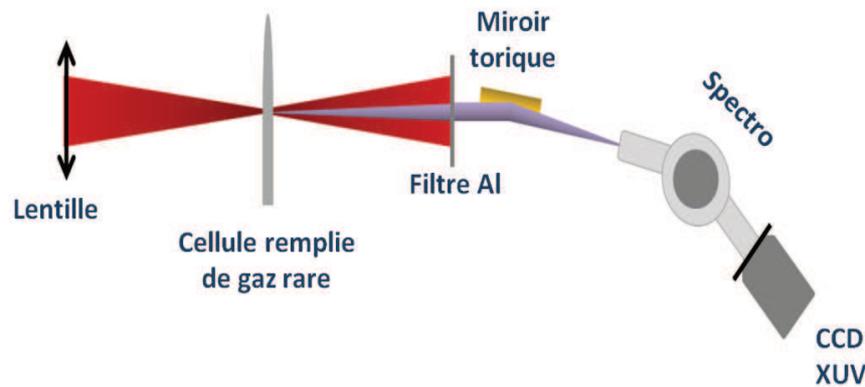


Figure 3.1 : Principe de génération des harmoniques d'ordre élevé.

Ce chapitre est consacré à la description du processus de génération d'harmoniques élevées et de la source XUV développée dans cette thèse. L'objectif était d'obtenir un spectre XUV suffisamment stable et intense pour couvrir la gamme spectrale 50-70 eV pour réaliser des expériences de dynamique d'aimantation aux seuils M des métaux de transitions.

Dans un premier temps, nous présentons le modèle semi classique à trois étapes proposé par Corkum en 1993, qui apporte une description simple du processus de génération d'harmonique d'ordre élevé [71]. Ensuite, nous montrerons que l'approche purement quantique développée par M. Lewnstein permet une meilleure estimation du spectre harmonique [72]. Ces deux modèles décrivent le mécanisme de génération à partir de la réponse de l'atome unique. Pour prendre en compte les conditions de génération expérimentales comme la géométrie ou le type de gaz utilisé, nous verrons dans une deuxième partie, qu'il est nécessaire de considérer la réponse collective du milieu de génération. On introduira alors la notion d'accord de phase relative à la HHG. Dans une dernière partie, les performances optimales obtenues avec l'Argon et le Néon, sont présentées.

3.1. Aspects microscopiques de la génération d'harmoniques.

3.1.1. Modèle semi-classique : modèle à trois étapes

Le modèle à trois étapes proposé par Corkum en 1993 [71], permet d'exprimer la réponse d'un atome unique dans le régime de champ fort. Le champ laser est supposé polarisé linéairement et de basse fréquence.

Dans ce modèle semi-classique, la génération d'harmoniques d'ordre élevé est décomposée en trois étapes, figure 3.2:

- i) Ionisation de l'atome par effet tunnel.
- ii) Accélération de l'électron libre dans le champ laser.
- iii) Recombinaison radiative de l'électron et de l'ion parent.

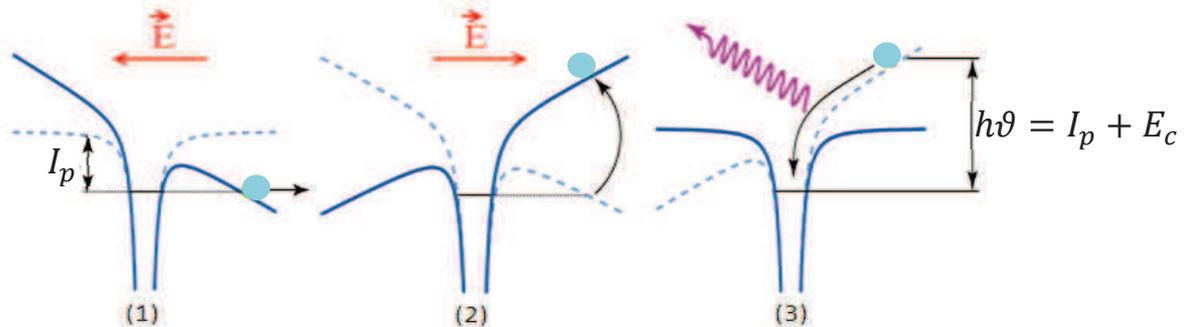


Figure 3.2 : Processus du modèle à trois étapes : Sous l'effet du champ laser, le potentiel atomique est abaissé, l'ionisation tunnel peut avoir lieu. (2) Le champ laser change de sens et ramène l'électron vers l'ion parent. (3) L'électron peut être recombéné vers l'ion parent et un photon XUV est émis.

3.1.1.1. Ionisation tunnel :

Avant de décrire le processus d'ionisation tunnel, il est nécessaire de rappeler que selon l'intensité et la longueur d'onde du champ laser, on distingue trois régimes d'ionisation. Lorsque l'intensité du champ laser est inférieure à 10^{13}w/cm^2 , l'énergie d'un photon n'est pas suffisante pour arracher un électron de l'attraction nucléaire. Si l'absorption successive de l'énergie de plusieurs photons dépasse l'énergie de liaison, l'électron sera alors libéré et ce régime est appelé ionisation multiphotonique.

Quand le champ laser est très intense ($> 10^{15} \text{w/cm}^2$), la barrière de potentiel est alors supprimée et l'atome est complètement ionisé [73]. On parle ici du régime ionisation par suppression de barrière.

L'éclairement laser pour lequel la barrière de potentiel est complètement abaissée de sorte que l'électron peut s'échapper librement est donné par la relation suivante [73] :

$$I_{BSI} \left(\frac{\text{W}}{\text{cm}^2} \right) = 3.8 \times 10^9 \frac{I_p^4(\text{ev})}{Z^2} \quad (3.1)$$

Où I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome et Z la charge après l'ionisation. L'intensité de suppression de barrière ne dépend que du gaz considéré pour la génération via le potentiel d'ionisation atomique et la charge Z . Dans le tableau 3.1 sont présentés les potentiels d'ionisation et les éclairements de suppression de barrière de quelques gaz rares :

Gaz	I_P (ev)	I_{BSI} (W/cm^2)
He	24.587	$1.4 \cdot 10^{15}$
Ne	21.564	$8.2 \cdot 10^{14}$
Ar	15.759	$2.3 \cdot 10^{14}$

Tableau 3.1 : potentiel d'ionisation et éclaircissement de suppression de barrière de potentiel.

Lorsque le champ laser est suffisamment intense ($> 10^{13} W/cm^2$), il permet d'abaisser la barrière de potentiel et autorise à un électron à la traverser par effet tunnel, c'est le régime d'ionisation tunnel.

Ces trois régimes d'ionisation peuvent être distingués par le paramètre de Keldysh γ [74]. Ce dernier s'exprime comme le rapport entre le temps que met l'électron pour traverser la barrière de potentiel τ_t et la période optique du laser ($T_0 = 2\pi/\omega_0$). Le paramètre de Keldysh γ est défini par :

$$\gamma = \frac{\tau_t}{T_0} = \sqrt{\frac{I_P}{2U_p}} \quad (3.2)$$

U_p est le potentiel pondérateur du laser fondamental associé à l'énergie d'oscillation d'un électron de masse m_e et de charge e , soumis à un champ électrique E de pulsation ω_0 et d'amplitude E_0 , ce potentiel s'exprime comme :

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega_0^2} \quad (3.3)$$

Où m_e et e sont respectivement la masse et la charge de l'électron. Le potentiel pondérateur peut être aussi écrit en fonction de l'éclaircissement laser et de la longueur d'onde :

$$U_p [ev] = 9.33 \times 10^{-14} I [W/cm^2] \lambda_0^2 [\mu m^2] \quad (3.4)$$

Pour $\gamma \gg 1$, l'électron n'a pas le temps de traverser la barrière de potentiel avant que celle-ci ne soit modifiée (fréquence importante et amplitude du champ laser faible). C'est l'ionisation multiphotonique qui domine.

Pour $\gamma \ll 1$, la barrière de potentiel est abaissée de manière significative et pendant un temps assez long pour que la probabilité de passage de l'électron au travers de la barrière soit grande (faible fréquence et amplitude du champ laser suffisamment importante). Dans ce cas l'ionisation par effet tunnel et l'ionisation par suppression de barrière peuvent avoir lieu.

La génération d'harmoniques d'ordres élevés a généralement lieu pour le régime d'ionisation par effet tunnel $\gamma \leq 1$.

3.1.1.2. Accélération de l'électron libre dans le champ laser

Après traversée de la barrière de potentiel, l'électron est accéléré dans le continuum sous l'effet du champ laser. On considère ici que le champ laser est suffisamment fort, l'électron ne subit plus l'influence du noyau et se comporte comme une particule libre. Le mouvement de l'électron dans le continuum peut donc être étudié classiquement à partir des équations de Newton. L'équation du mouvement est :

$$F = m\ddot{x} = -eE(t) \quad (3.5)$$

Et si on suppose que le champ laser est polarisé linéairement selon l'axe x , il s'écrit sous la forme suivante :

$$E_x(t) = E_0 \cos \omega_0 t \quad (3.6)$$

L'équation (3.5) s'écrit alors :

$$F = m\ddot{x} = -eE_x(t) = -eE_0 \cos \omega_0 t \quad (3.7)$$

On pose $\varphi_i = \omega_0 t_i$ où φ_i représente la phase à l'instant d'ionisation t_i de l'électron. Pour simplifier les calculs, on prend comme conditions initiales : $\dot{x}(t_i) = 0$, l'électron perd toute son énergie en traversant la barrière de potentiel et $x(t_i) = 0$, l'électron est supposé à l'origine. La double intégration de (3.7) donne l'équation de la trajectoire de l'électron :

$$\dot{x}(t) = -\frac{eE_0}{m\omega_0} (\sin\varphi - \sin\varphi_i) \quad (3.8)$$

$$x(t) = \frac{eE_0}{m\omega_0^2} ((\cos\varphi - \cos\varphi_i) + (\varphi - \varphi_i)\sin\varphi_i) \quad (3.9)$$

En utilisant (3.8), on détermine l'énergie cinétique acquise par l'électron au cours de son mouvement dans le continuum:

$$E_C(t) = \frac{1}{2} m \dot{x}^2 \quad (3.10)$$

$$E_C(t) = \frac{e^2 E_0^2}{2m \omega_0^2} (\sin\varphi - \sin\varphi_i)^2 = 2U_p (\sin\omega_0 t - \sin\omega_0 t_i)^2 \quad (3.11)$$

Pour des phases d'ionisation φ_i comprise entre $(0 \text{ et } \frac{\pi}{2})$ et $(\pi \text{ et } \frac{3\pi}{2})$ l'électron suit une trajectoire fermée et repasse par $x = 0$, la position de son ion parent. Si $\varphi_i = 0$, l'électron est émis au maximum du champ électrique, l'électron passe alors la plus grande durée dans

le continuum et donne lieu à un passage par $x = 0$ un cycle optique plus tard. Lorsque l'électron est libéré pour des phases φ_i comprises entre $(\frac{\pi}{2}$ et $\pi)$ et $(\frac{3\pi}{2}$ et $2\pi)$, la norme du champ laser croît, les électrons sont donc accélérés et ne repassent jamais par la position $x = 0$. Ici, seules les trajectoires correspondant à des phases d'ionisation comprise entre $(0$ et $\frac{\pi}{2})$ sont représentées sur la Figure 3.3.

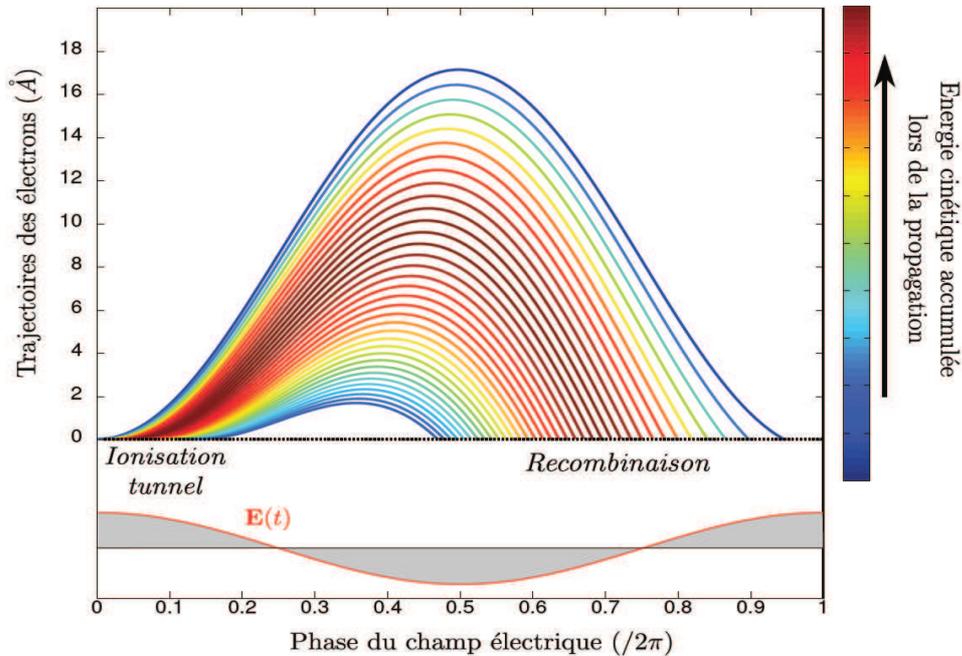


Figure 3.3 : Trajectoires électroniques des électrons pour un éclairage $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ @ 800 nm. La couleur des trajectoires représente l'énergie cinétique acquise par l'électron au moment de la recombinaison sur l'ion parent. Le champ électrique est représenté en grisé [75].

3.1.1.3. Recombinaison radiative de l'électron et de l'ion parent

Lors du passage de l'électron par la position $x = 0$, il y a une probabilité non nulle pour que l'électron se recombine de nouveau avec son ion parent à un instant de recombinaison t_r . La recombinaison électron-ion parent donne lieu à l'émission d'un photon d'énergie $h\nu$ égale la somme du potentiel d'ionisation I_p de l'atome plus l'énergie cinétique E_c accumulée lors de la propagation dans le continuum jusqu'à la recombinaison :

$$h\nu = I_p + E_c \quad (3.12)$$

À partir de (3.9) et (3.11), on peut calculer l'instant de collision de l'électron avec son ion parent ainsi que son énergie correspondante. L'instant de recombinaison peut être

déterminé comme la racine de l'équation (3.9) égale à zéro ($x(t_r) = 0$). L'équation (3.9) et (3.11) deviennent :

$$\omega_0(t_r - t_i)\sin\omega_0 t_i = \cos\omega_0 t_r - \cos\omega_0 t_i \quad (3.13)$$

$$E_C(t_r) = 2U_P(\sin\omega_0 t_r - \sin\omega_0 t_i)^2 \quad (3.14)$$

L'équation (3.14) montre que l'énergie cinétique gagnée par l'électron au moment de la recombinaison dépend de son instant d'ionisation et de recombinaison. On voit aussi dans l'équation (3.13) que l'instant de recombinaison peut s'écrire en fonction l'instant d'ionisation :

$$t_r = f(t_i) \quad (3.15)$$

L'énergie cinétique s'écrit alors en fonction de l'instant d'ionisation comme suit :

$$E_C(t_i) = 2U_P(\sin\omega_0 f(t_i) - \sin\omega_0 t_i)^2 \quad (3.16)$$

L'énergie cinétique maximale que peut avoir l'électron au moment de sa recombinaison est donnée par les valeurs de t_i satisfaisant la relation suivante :

$$\frac{d}{dt_i} E_C(t_i) = \frac{e^2 E_0^2}{m \omega_0} [\sin\omega_0 f(t_i) - \sin\omega_0 t_i] \left[\cos\omega_0 f(t_i) \frac{d}{dt_i} f(t_i) - \cos\omega_0 t_i \right] = 0 \quad (3.17)$$

L'énergie cinétique maximale que peut gagner l'électron est obtenue pour une phase d'ionisation égale à 0.09π (17°) ou 1.09π (197°) et vaut $3.17 U_P$. L'énergie maximale du photon émis est donnée par la relation (3.18) appelée **loi de coupure**, en anglais "**cutoff law**" :

$$h\nu_{\text{coupure}} = I_P + 3.17 U_P \quad (3.18)$$

La Figure 3.4 présente le résultat de calcul de l'énergie cinétique de l'électron au moment de la recombinaison en fonction de la valeur de la phase d'ionisation de l'électron.

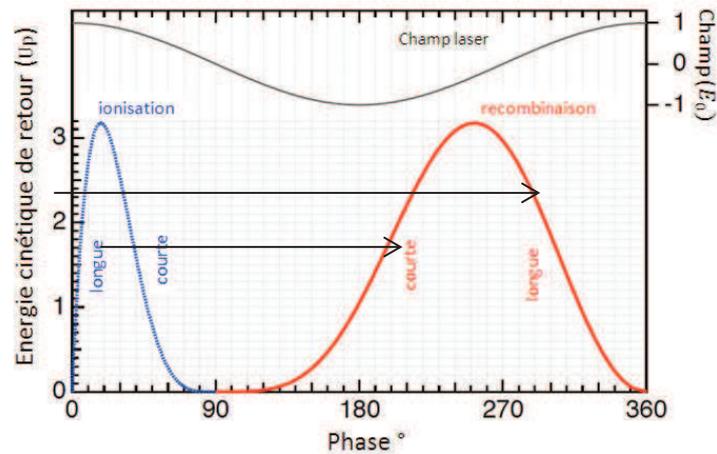


Figure 3.4 : Energie cinétique de retour de l'électron en fonction de la phase d'ionisation et de recombinaison [76].

Cette figure montre un maximum de l'énergie cinétique que peut gagner l'électron dans le continuum ($3.17 U_p$) pour une phase d'ionisation égale à 17° . De part et d'autre de ce maximum, on voit que pour une valeur de l'énergie cinétique correspondent deux phases d'ionisations différentes qui correspondent à leurs tours à deux types de trajectoires empruntées par l'électron dans le continuum. Les trajectoires peuvent être classées en deux catégories :

- Trajectoire courte où l'électron évolue dans le champ pendant un temps court.
- Trajectoire longue où l'électron évolue dans le champ pendant un temps plus long.

D'après la Figure 3.4, on remarque que pour les trajectoires courtes, l'ionisation se produit pour des phases d'ionisations φ_i comprises entre 17° et 90° ($17^\circ < \varphi_i < 90^\circ$), alors que pour les trajectoires longues ($0^\circ < \varphi_i < 17^\circ$).

Le processus complet du modèle à trois étapes se répète de façon antisymétrique (changement de signe de E) tous les demi-cycles optiques. Cela mène à une série d'émission du rayonnement XUV dont la périodicité temporelle vaut $T_0/2$, (Figure 3.5) correspondant à un train d'impulsions attoseconde dont l'enveloppe est donnée par la durée d'impulsion de génération

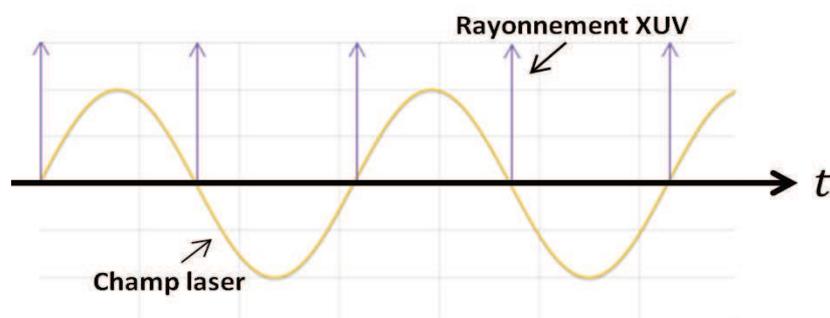


Figure 3.5 : Emission harmonique dans le domaine temporel, émission de périodicité $T_0/2$.

Dans le domaine spectral, on a un spectre de raies harmoniques séparées de $2\omega_0$. Seulement les harmoniques impaires de la fréquence fondamentale sont générées. En effet, l'émission successive des rayonnements XUV se fait dans des directions opposées (le champ électrique change de signe), les composantes spectrales correspondant ont la même amplitude spectrale mais de signe différent. Cela conduit à des interférences destructives pour les harmoniques d'ordres paires ($\omega = 2m\omega_0$) et à des interférences constructives pour les ordres impaires ($\omega = (2m + 1)\omega_0$). Le spectre HHG schématisé sur la Figure 3.6 peut être divisé en trois parties : un régime perturbatif pour les faibles ordres harmoniques dont on observe une décroissance rapide avec l'ordre harmonique. Cette région est suivie d'un plateau contenant les ordres harmoniques pour lesquels l'efficacité de conversion est quasi constante et enfin la coupure "cut-off" pour les ordres les plus élevés, dans laquelle l'amplitude des harmoniques chute rapidement [77].

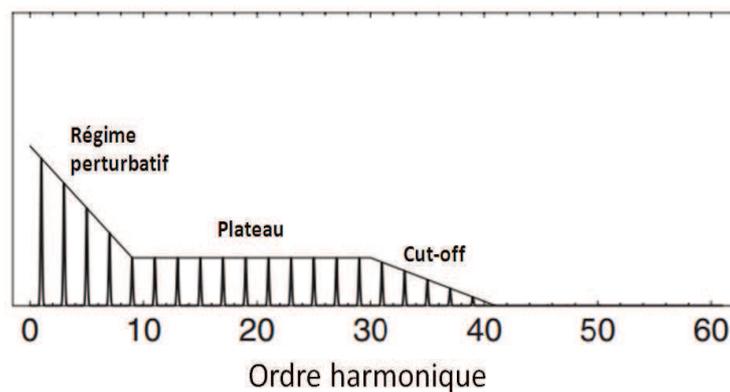


Figure 3.6 : Allure typique d'un spectre harmonique, constitué de trois parties : un régime perturbatif, un plateau et une coupure. Figure extraite de [77].

Le modèle à trois étapes permet de déterminer des grandeurs importantes telles que les instants d'ionisations et de recombinaisons et l'énergie de coupure. Cependant, le modèle proposé par Corkum ne permet pas de décrire précisément les propriétés spatiales, temporelles et spectrales des harmoniques émises. Pour cela, il est nécessaire d'utiliser un modèle purement quantique.

3.1.2. Modèle quantique : modèle de Lewenstein

Le processus de la HHG peut être décrit par le modèle proposé par M. Lewenstein et al en 1994 [72]. Ce modèle quantique est basé sur l'approximation du champ fort (en anglais, Strong Field Approximation, SFA) dans le cadre de l'approximation d'un seul électron actif (Single Active Electron, SAE) [74]. Il considère un seul électron actif de l'état fondamental et toutes les contributions des états excités sont négligées. Il considère aussi que le champ laser est suffisamment intense pour que l'électron libéré par ionisation tunnel dans le continuum ne subisse plus l'influence du potentiel coulombien ($U_p \gg I_p$). De plus, il néglige la déplétion du fondamental, cela est vrai lorsque l'éclairement est très inférieur à

l'éclairement de saturation du gaz utilisé pour la génération ($I_0 \ll I_{sat}$), de manière à favoriser une ionisation tunnel.

Dans le cadre de l'approximation du champ fort et en considérant les hypothèses citées précédemment, l'expression du moment dipolaire $x(t)$ s'écrit [72]:

$$x(t) = \langle \psi(t) | x | \psi(t) \rangle \quad (3.19)$$

$$x(t) = -i \int_0^t dt_i \int d^3p (d_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)})^* \cdot e^{iS(\mathbf{p},t,t_i)} \cdot E(t_i) d_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)} \quad (3.20)$$

Avec $E = -\frac{\partial A}{\partial t}$, où A correspond au potentiel vecteur, t_i l'instant d'ionisation, d l'élément de transition dipolaire électrique entre le niveau fondamental et un état du continuum et p le moment canonique de l'électron.

On peut associer à cette intégrale une interprétation basée sur le modèle à trois étapes décrit dans la section 3.1.1 :

- Le dernier terme $d_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)} E(t_i)$ de la formule (3.20), correspond à la probabilité d'ionisation. Il représente la transition de l'état fondamental vers un état du continuum de moment canonique $\mathbf{p}(t_i)$.

- Le terme $e^{iS(\mathbf{p},t,t_i)}$, traduit la propagation de l'électron dans le champ laser avec une phase $S(\mathbf{p}, t, t_i)$ égale à l'intégrale d'action de la trajectoire empruntée :

$$S(\mathbf{p}, t, t_i) = - \int_{t_i}^t \left[\frac{(\mathbf{p}+\mathbf{A}(t'))^2}{2} + I_p \right] dt' \quad (3.21)$$

- Le terme $(d_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)})^*$, représente la recombinaison avec l'ion parent. En effet, après l'accélération dans le continuum, l'électron se recombine à l'instant $t = t_r$ avec une impulsion $(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))$.

En effectuant la transformée de Fourier du moment dipolaire (formule (3.20)), on obtient le spectre harmonique.

$$\begin{aligned} x(\omega_q) &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt_r x(t_r) e^{i\omega_q t_r} \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt_r \int_{-\infty}^{t_r} dt_i \int d^3p \mathbf{B}(t_r, t_i, \mathbf{p}) \cdot e^{i\varphi(t_r, t_i, \mathbf{p})} \end{aligned} \quad (3.22)$$

Avec \mathbf{B} représente l'amplitude de l'intégrande dans l'équation (3.20) et $\varphi_{d,q}$ est la phase du dipôle à l'ordre harmonique q, définie par :

$$\varphi_{d,q}(t_r, t_i, \mathbf{p}) = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left[\frac{(\mathbf{p}+\mathbf{A}(t'))^2}{2} + I_p \right] dt' \quad (3.23)$$

❖ Equation de point selle et comparaison avec le modèle semi-classique

Salière et al. ont interprété la formule (3.22) dans le cadre de la théorie des intégrales de Feynman [78]. Dans la formulation de Feynman, l'amplitude du dipôle est considérée comme la somme cohérente des contributions (spatiales et temporelles) de tous les chemins quantiques reliant l'état initial à l'état final.

Le calcul direct de (3.22) nécessite un temps de calcul très long vu que la phase $\varphi_{d,q}$, formule (3.23), fait intervenir une infinité de chemins quantiques contribuant à la génération d'un ordre harmonique q . Pour simplifier les calculs, on applique la méthode du point selle (**Saddle point**): dans l'approximation du champ fort, l'action classique $S(\mathbf{p}, t, t_i)$ varie rapidement le long d'une trajectoire quantique. Cela implique que seulement les trajectoires quantiques dont la phase est stationnaire ($\nabla S(\mathbf{p}, t_r, t_i) + \omega_q t_r = 0$), dominent l'intégrale.

D'autre part, la condition de stationnarité ($\nabla S(\mathbf{p}, t_r, t_i) + \omega_q t_r = 0$), n'est autre que la différence entre la position de l'électron libre et à au moment de sa recombinaison $x(t_r)$ et celle à l'instant d'ionisation $x(t_i)$, ($\nabla S(\mathbf{p}, t_r, t_i) + \omega_q t_r = x(t_r) - x(t_i) = 0$), [72]. Par conséquent, cette condition correspond aux moments \mathbf{p} , pour lesquels les électrons, passés à l'instant t_i dans le continuum, retourne à la même position à l'instant de recombinaison t_r ($x(t_r) = x(t_i)$). Ces positions sont proches du noyau, car c'est le seul endroit où les transitions de et vers l'état fondamental ont une amplitude de probabilité non négligeable.

La différentiation de l'équation (3.23) par rapport à t_i , \mathbf{p} et t_r et en appliquant la condition de stationnarité donne les équations de point selle (**saddle point equations**) :

$$\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i))^2}{2} + I_p = 0 \quad (3.24)$$

$$\int_{t_i}^{t_r} dt (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)) = 0 \quad (3.25)$$

$$\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i))^2}{2} + I_p = \omega_q \quad (3.26)$$

Le sens physique de ces dernières équations devient plus clair si on note $\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i))^2}{2} = E_c$ avec E_c le moment cinétique.

L'équation (3.24) se réécrit alors $E_c(t_i) + I_p = 0$: elle montre qu'à l'instant d'ionisation t_i , la somme de l'énergie cinétique de l'électron et le potentiel d'ionisation est nulle. Si $I_p = 0$, cela mène à dire qu'à l'instant d'ionisation l'électron quitte le noyau avec une vitesse nulle.

En réalité $I_p \neq 0$, ce qui implique que lors de la traversée de la barrière par effet tunnel l'électron doit avoir une énergie cinétique négative. Cette condition n'est permise que si le temps t_i est complexe \mathbb{C} . Sa partie imaginaire est liée au temps tunnel alors que sa partie réelle est liée à l'instant d'ionisation [72]. L'équation (3.25), se réécrit comme suit: $\int_{t_i}^{t_r} dt v(t) = x(t_r) - x(t_i) = 0$, cette équation indique, comme déjà mentionné précédemment, que la propagation de l'électron doit suivre une trajectoire fermée et retourner à la même position au moment de la recombinaison. Enfin, l'équation (3.26), concerne la recombinaison radiative et montre que l'énergie du photon émis est égale à la somme du potentiel d'ionisation et de l'énergie cinétique gagnée par l'électron dans le continuum.

Le modèle de M. Lewenstein et al. permet bien de retrouver les hypothèses données par le modèle semi-classique à trois étapes, ainsi que la notion de trajectoires courtes et longues. Plus de détails sont décrits dans [72,79,80]. La Figure 3.7 montre un bon accord entre les résultats obtenus par le modèle semi-classique et le modèle quantique.

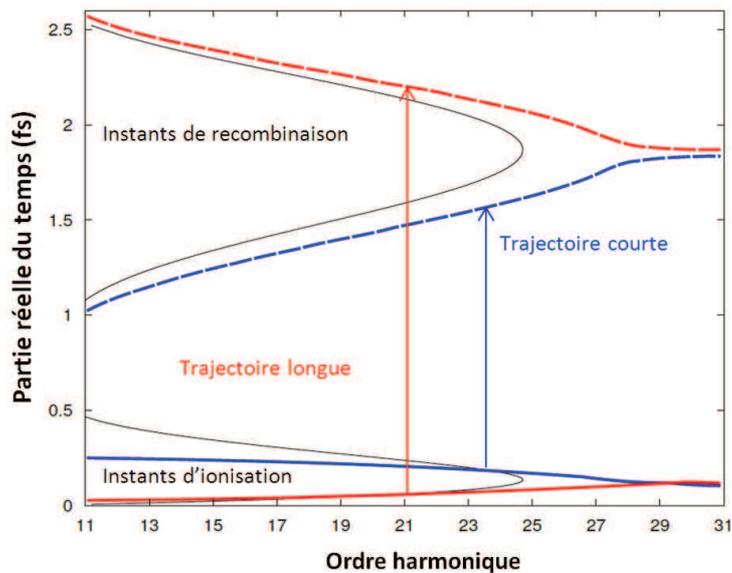


Figure 3.7 : Partie réelle des instants d'ionisation (trait plein) et de recombinaison (trait discontinu), pour une génération dans l'argon avec un éclairage de $1.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, obtenus par résolution des équations du point selle. Présence de deux familles de trajectoires : trajectoires courtes en bleu, trajectoires longues en rouge. La courbe fine noire représente le résultat des calculs classiques [81].

Toutefois, le modèle quantique apporte une correction sur la position de la coupure. Elle est légèrement supérieure à celle obtenue par le calcul classique. La loi de coupure s'écrit alors :

$$h\nu_{\text{coupure}} = F(I_p/U_p) I_p + 3.17 U_p \quad (3.27)$$

Où $F(I_p/U_p)$ est un facteur correctif variant entre 1.32 et 1.2 pour I_p/U_p variant entre 0 et 4.

Il permet aussi de montrer la dépendance de la phase du dipôle harmonique en fonction de l'éclairement laser. K. Varjú et al. ont calculé la phase de l'harmonique 19 générée dans l'argon en fonction de l'éclairement I , [82]. La Figure 3.8 montre que pour des éclairements supérieurs à 10^{14} W/cm^2 , la phase varie linéairement en fonction de l'éclairement :

$$\varphi_{d,q}^j = -\alpha_q^j I \quad (3.28)$$

Où $\varphi_{d,q}$ est la phase du dipôle à l'ordre q , j représentent les trajectoires courtes et longues et $\alpha_q^j = \frac{d\varphi_q^j}{dI}$ est la constante des chemins quantiques. Pour des éclairements inférieurs à $5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, l'harmonique 19 passe du plateau à la coupure et les deux familles de trajectoires deviennent indiscernables.

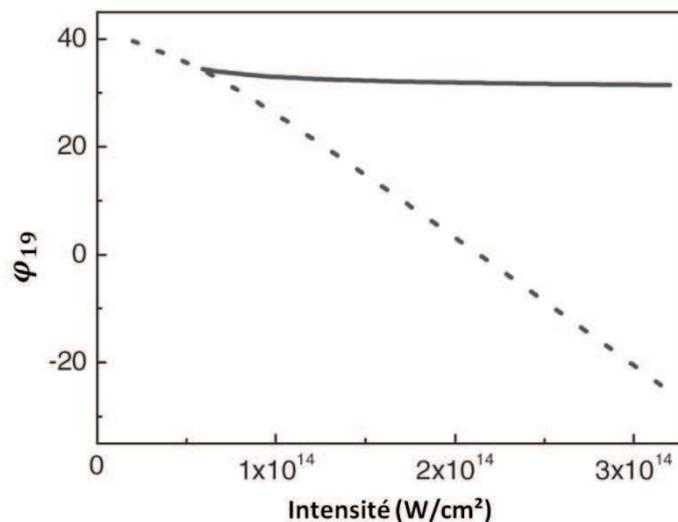


Figure 3.8 : Phase de l'harmonique 19 générée dans l'argon en fonction de l'éclairement. La phase correspondant aux trajectoires courtes (longues) est représentée en traits continus (tirets). Figure extraite de [82].

Jusqu'à maintenant, le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé a été introduit en considérant seulement la réponse de l'atome unique. Or, le champ harmonique total résulte de la superposition cohérente de tous les champs rayonnés par l'ensemble des dipôles atomiques dans le volume d'interaction. Afin d'optimiser le champ harmonique total, il est donc nécessaire d'étudier la réponse macroscopique du milieu.

3.2. Aspects macroscopiques de la génération d'harmoniques : (accord de phase)

La génération d'harmonique d'ordre élevé résulte d'une part de la réponse microscopique et d'autre part de la réponse macroscopique du milieu, où le champ harmonique total est la superposition cohérente des champs rayonnés à la fréquence $q\omega$, q impaire, par tous les dipôles atomiques existant dans le volume d'interaction, Figure 3.9. Un maximum de signal est obtenu lorsque les champs émis par chacun des dipôles interfèrent constructivement sur tout le milieu de génération. Dans cette partie nous verrons que pour satisfaire cette condition, il faut que la condition d'accord de phase soit vérifiée, c'est-à-dire que la polarisation non linéaire induite par un champ laser intense et le champ harmonique se propagent avec la même vitesse de phase. Plus la différence de phase entre les différents émetteurs est minimale plus la génération du champ harmonique macroscopique est efficace.

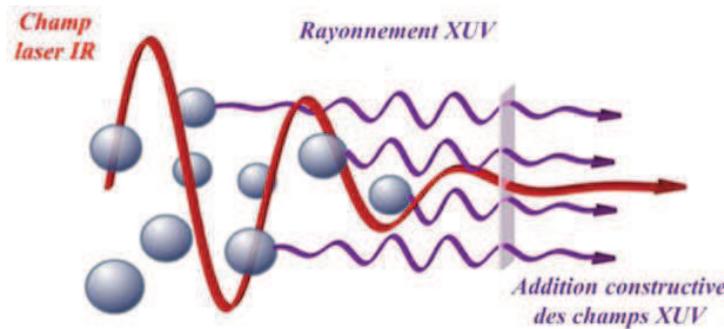


Figure 3.9 : Propagation des dipôles harmoniques générés à différentes phases du champ infrarouge jusqu'à la sortie du milieu générateur. Figure extraite de [83].

La polarisation non linéaire, terme source de la HHG, peut s'écrire de la façon suivante :

$$P_q^{NL} = \eta_{at} |d_q| e^{i(q\varphi_1 + \varphi_d)} \quad (3.29)$$

Où η_{at} est la densité atomique du milieu, $\varphi_1(r, z)$ la phase du champ laser fondamental et $\varphi_d(r, z)$ la phase du dipôle harmonique.

On définit le champ harmonique macroscopique total comme suit :

$$\vec{E}_q(r, z) = |E_q| e^{i\varphi_q} \quad (3.30)$$

Comme nous l'avons déjà mentionné, l'énergie transférée est maximale lorsque la vitesse de phase du champ harmonique total est égale à la vitesse de phase (définie comme le rapport entre la pulsation et le nombre d'onde associé à cette pulsation) de la polarisation non linéaire ($v(E_q) = v(P_q^{NL})$). Cela conduit à une égalité entre les vecteurs d'ondes définis comme le gradient de la phase.

La condition d'accord de phase s'écrit alors comme suit [84,85] :

$$\nabla\varphi_q(r, z) = q\nabla\varphi_1(r, z) + \nabla\varphi_d(r, z) \quad (3.31)$$

$$k_q(r, z) = qk_1(r, z) + K(r, z) \quad (3.32)$$

Avec $k_q(r, z)$ le vecteur d'onde associé au champ harmonique, $k_1(r, z)$ le vecteur d'onde associé au champ fondamental et $K(r, z)$ le vecteur d'onde associé à la phase du dipôle.

3.2.1. Accord de phase dans un milieu dilué

Dans cette partie nous négligeons les effets de dispersion atomique et électroniques (milieu dilué) et on considère que le faisceau laser est gaussien présentant une symétrie de révolution autour de l'axe de propagation z .

Le vecteur d'onde k_q du champ harmonique s'écrit :

$$k_q = n_q \frac{q\omega_0}{c} \approx n_1 \frac{q\omega_0}{c} \approx qk_1^0 \quad (3.33)$$

Le vecteur d'onde k_1 associé au champ fondamental se décompose de la façon suivante :

$$k_1(r, z) = \nabla\varphi_1(r, z) = k_1^0 \vec{z} + k_{géo}(r, z) \quad (3.34)$$

Où k_1^0 est le vecteur d'onde associé à la propagation dans le milieu selon l'axe z de vecteur unitaire \vec{z} . $k_{géo}$ est le vecteur d'onde associé à la focalisation du faisceau laser qui correspond au gradient de la phase de Gouy soit :

$$\Phi_{Gouy}(r, z) = \text{arg} \left[\frac{1}{b+2iz} \exp \left(-\frac{k_1^0 r^2}{b+2iz} \right) \right] \quad (3.35)$$

Avec b est le paramètre confocal $b = \frac{2\pi r_0^2}{\lambda} = 2Z_R$, r_0 est le waist et Z_R est la longueur de Rayleigh. Sur l'axe z la phase de Gouy vaut :

$$\Phi_{Gouy}(r = 0, z) = -\text{artan} \left(\frac{z}{Z_R} \right) \quad (3.36)$$

$$k_{géo} = \nabla\Phi_{Gouy}(r = 0, z) = -\frac{1}{Z_R \left[1 + \left(\frac{z}{Z_R} \right)^2 \right]} \quad (3.37)$$

La formule (3.37) montre que la variation de $k_{géo}$ est toujours négative quel que soit z (position de la cellule, ($z < 0$) avant ou ($z > 0$) après le focus) et Z_R . Cette variation atteint sa valeur maximale au foyer et plus la focalisation est douce (zone de Rayleigh plus grande) moins la dispersion de Gouy est importante.

Le vecteur d'onde K associé à la variation de la phase φ_d du dipôle harmonique en fonction de l'éclairement (introduite dans la section précédente) s'écrit :

$$K = \nabla \varphi_{d,q}^j(r, z) = -\alpha_q^j \nabla I(r, z) = \frac{2 \alpha_q^j I_0 \frac{z}{Z_R^2}}{\left(1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2\right)^2} \quad (3.38)$$

La formule (3.38) montre que le signe de K dépend de z , positif sur l'axe des ($z > 0$) et négatif sur l'axe ($z < 0$).

La condition d'accord de phase généralisée s'écrit :

$$\Delta k_q = k_q - qk_1 - K = 0 \quad (3.39)$$

$$\Delta k_q = k_q - qk_1^0 - qk_{géo} - K = 0 \quad (3.40)$$

Pour satisfaire un accord de phase sur tout le milieu de génération, il faut trouver un compromis entre $k_{géo}$, et K . La figure 3.10 représente la distribution spatiale des vecteurs d'ondes k_1 du champ fondamental et K , associé à la phase du dipôle atomique. A partir de cette figure, nous étudions les conditions d'accord de phase.

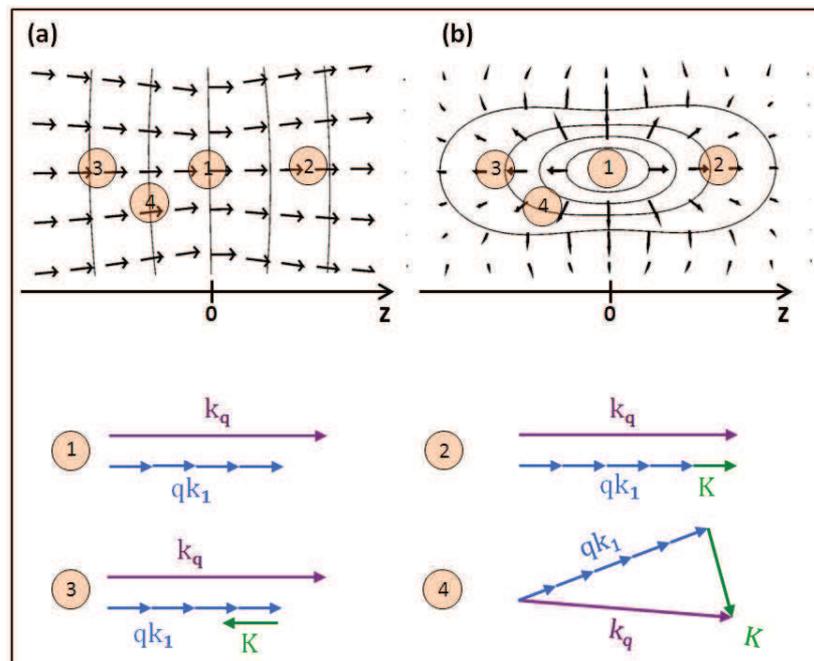


Figure 3.10 : Distribution spatiale des vecteurs d'onde (a) k_1 du fondamental et (b) K associé à la phase du dipôle atomique et accord de phase en différents endroits du milieu d'interaction (1, 2, 3 et 4).

- ① Au foyer ($r = 0$ et $z = 0$), le vecteur d'onde K est nul. D'où le désaccord de phase est dû à la phase de Gouy est vaut : $|\Delta k_q| \approx \frac{2q}{b}$.
- ② Pour ($r = 0$) et ($z > 0$) (après le foyer), le vecteur K est orienté selon une direction opposée à celle de $k_{géo}$, qui à son tour diminue la contribution de k_1 . Le vecteur d'onde K permet donc la compensation de la dispersion induite par la focalisation. Il en résulte une émission harmonique sur l'axe de propagation (accord de phase colinéaire), présentant une faible divergence en sortie du milieu ainsi qu'en champ lointain (Figure 3.11),[79].
- ③ Pour ($r = 0$) et ($z < 0$) (avant le foyer), le vecteur d'onde K est orienté selon la direction de $k_{géo}$, cela dégrade encore plus l'accord de phase rendant ainsi une émission moins efficace.
- ④ Pour ($r \neq 0$) et ($z < 0$), le vecteur K est orienté hors axe. Il existe des régions pour lesquelles la condition d'accord de phase peut être satisfaite de façon non colinéaire. Dans ce cas, il faut que la composante radiale de K soit très importante et que sa composante longitudinale soit petite ($z \ll b$), cela implique que ces régions sont proches du foyer[84]. L'émission harmonique est alors hors axe présentant une distribution spatiale annulaire (Figure 3.11),[85].

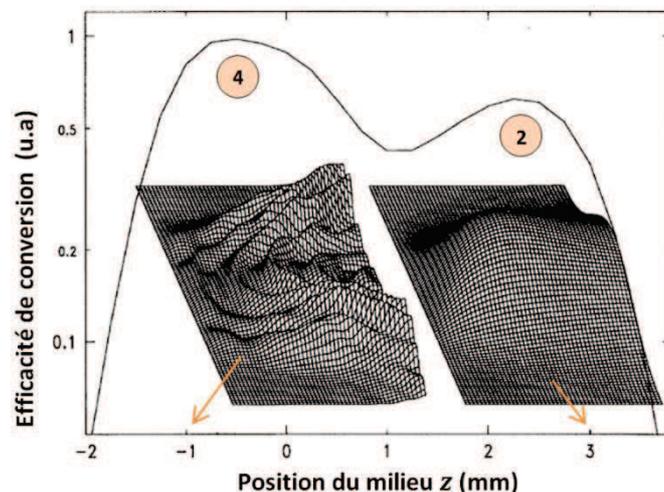


Figure 3.11 : Efficacité de conversion (trait plein) pour l'harmonique 45 généré dans le néon en fonction de la position du centre du milieu d'interaction par rapport au foyer, avec un éclairement $I_0 = 6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Les graphes 3D montrent comment le champ harmonique est construit dans le milieu pour les cas où l'accord de phase est réalisé. Figure extraite de [85].

Jusqu'ici, nous avons considéré que le milieu de génération est un milieu dilué, où les effets de dispersion dus aux atomes neutres (dispersion atomique) et aux électrons libres

(dispersion électronique), ne participent pas à la HHG. Alors que pour atteindre une efficacité acceptable pour nos expériences, il est nécessaire d'utiliser des milieux relativement denses.

3.2.2. Influence des effets de dispersion atomique et électronique

Dispersion atomique : La contribution du désaccord de phase due à la dispersion du milieu est donnée par :

$$\Delta k_{at} = \frac{2\pi}{\lambda} \delta n_{at} \quad (3.41)$$

On définit $\delta n_{at} = n_1 - n_q$, la différence de l'indice de réfraction du gaz (pour une pression égale à 1 bar) pour la longueur d'onde fondamentale et harmonique (l'indice de réfraction des gaz rares dépend de la longueur d'onde et il est très proche de 1).

L'indice de réfraction est proportionnel à la pression du gaz (en bar) et lorsque le milieu est ionisé ($\tau \neq 0$, taux d'ionisation), l'équation (3.41) se réécrit comme suit :

$$\Delta k_{at} = \frac{2\pi}{\lambda} P \delta n_{at} (1 - \tau) \quad (3.42)$$

D'après l'équation (3.42), on remarque que la contribution due à la dispersion atomique est positive.

Dispersion électronique : Lors de l'interaction d'un faisceau laser intense avec un milieu gazeux, non seulement l'émission harmonique qui se produit lors l'ionisation, il peut y avoir aussi des électrons libres. Ces derniers peuvent limiter l'émission via la dispersion électronique (dépendante du temps). L'indice de réfraction du plasma est donné par :

$$n_{\omega_0} = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c(\omega_0)}} \quad (3.43)$$

Avec n_e la densité électronique n_c la densité critique du plasma et, elles sont respectivement données par :

$$n_e = \frac{\tau P}{k_B T} \quad (3.44)$$

et

$$n_c = \frac{\omega_0^2 m_e}{\mu_0 c^2 e^2} \quad (3.45)$$

Où ω_0 est la pulsation du laser, μ_0 et c les constantes fondamentales du vide, m_e et e respectivement la masse et la charge de l'électron, P la pression du gaz, k_B la constante de Boltzmann et T la température ambiante.

$$\Delta k_{elec} = \Delta n_{elec} \times \frac{\omega_0}{c} \cong -\frac{n_e \omega_0}{2cn_c} \quad (4.46)$$

La formule (4.46) montre que la contribution due à la dispersion électronique est négative.

3.2.3. Condition d'accord de phase généralisée

Après avoir défini les différents termes intervenant à la condition d'accord de phase. La relation (3.39) devient :

$$\Delta k_q = k_q - q(k_1^0 + k_{géo} + k_{at} + k_{elec}) - K = 0 \quad (4.47)$$

$$\Delta k_q = -q(\underbrace{k_{géo}}_{< 0} + \underbrace{k_{at}}_{> 0} + \underbrace{k_{elec}}_{< 0}) - \underbrace{K}_{< 0 \text{ pour } z < 0} = 0 \quad (4.48)$$

$> 0 \text{ pour } z > 0$

Le vecteur d'onde de désaccord total s'écrit :

$$\Delta k_q = \frac{q\omega}{c} \left(\frac{n_e}{2n_c} - \delta n_{at} \right) + \frac{q/Z_R}{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} - \frac{2\alpha_q^j I_0 \frac{z}{Z_R^2}}{\left(1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2\right)^2} \quad (3.49)$$

Le premier terme de l'équation (3.49) correspond à la somme des dispersions électronique et atomique qui dépendent de l'ordre harmonique, de la pression et du degré d'ionisation dans le milieu de génération. Le second terme correspond à la dispersion de Gouy dépendant de la taille de la longueur de Rayleigh Z_R et de l'ordre harmonique, le dernier terme correspond à la dispersion propre des harmoniques qui dépend de l'intensité laser et de la constante des chemins quantiques α .

En résumé, on peut dire que pour obtenir un accord de phase, plusieurs contributions linéaires et non-linéaires participent à la condition d'accord de phase et doivent être finement ajustées entre elles. Ces termes de dispersions dépendent du type de gaz utilisé, pression, géométrie de focalisation, position de la cellule, trajectoires et de l'éclairement laser. Si un désaccord de phase subsiste ($\Delta k_q \neq 0$), on introduit la longueur de cohérence L_{coh} définie comme suit :

$$L_{coh} = \frac{\pi}{\Delta k_q} \quad (3.50)$$

La longueur de cohérence appelée aussi longueur de déphasage représente la longueur sur laquelle le signal harmonique se construit efficacement. Elle correspond à la distance entre deux émetteurs en opposition de phase. Cela implique une condition sur la longueur du milieu de génération L_{med} , il faut que cette dernière n'excède pas L_{coh} .

- Influence de l'absorption

Comme mentionné précédemment, pour avoir une génération efficace, il est nécessaire que le milieu de génération soit suffisamment dense. Il faut donc tenir compte de la réabsorption du rayonnement émis par le milieu générateur lui-même. On introduit alors une troisième longueur appelée longueur d'absorption L_{abs} , définie comme la longueur parcourue par le faisceau au bout de laquelle le signal est atténué d'un facteur $1/e$.

Si on considère que le flux de photon en début du milieu de génération vaut S_0 , en sortie du milieu il vaudra :

$$S = S_0 \cdot e^{-L_{med}/L_{abs}} \quad (3.51)$$

La longueur d'absorption peut être calculer à partir l'équation suivante [86] :

$$L_{abs} = -\frac{L_{med}}{\ln(T)} \quad (3.52)$$

Avec T la transmission du milieu générateur que l'on peut trouver sur le site internet du centre CXRO [87]. La Figure 3.12 présente l'évolution de la longueur d'absorption en fonction de l'ordre harmonique dans l'argon pour une pression de 150 mbar et 3.5 mm comme longueur du milieu.

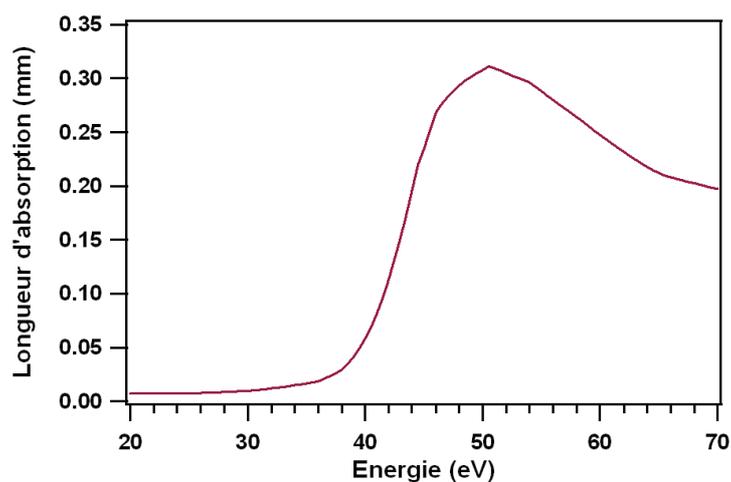


Figure 3.12 : Evolution de la longueur d'absorption en fonction de l'ordre harmonique dans l'argon ($P = 150 \text{ mbar}$, $L_{cell} = 3.5 \text{ mm}$).

De nouveau, pour aboutir à un signal harmonique conséquent, il est indispensable de trouver un compromis entre ces trois longueurs de façon à avoir toujours un milieu suffisamment dense et non limité par l'absorption. E. Constant et al. ont montré dans leurs études l'évolution du nombre de photons générés en fonction de la longueur du milieu pour différentes longueurs de cohérence [88].

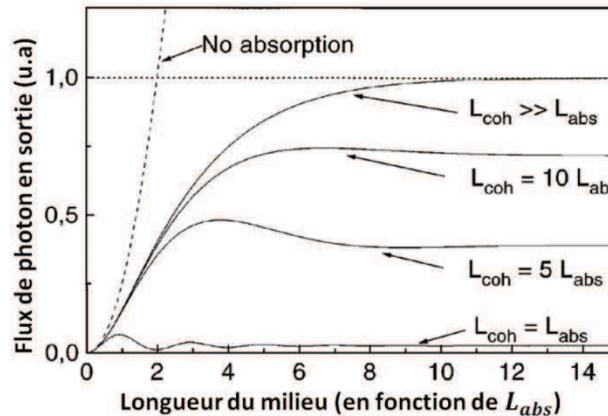


Figure 3.13 : Nombre de photon émis (unité arbitraire) sur l'axe en fonction de la longueur du milieu (en fonction de la longueur d'absorption). Figure extraite de [88].

Sur la Figure 3.13, on voit que plus L_{coh} est importante plus l'émission est efficace. Et dès que la longueur du milieu de génération dépasse quelques L_{abs} , le signal harmonique sature. Pour obtenir un signal qui vaut au moins 50 % du signal maximum, il faut satisfaire les conditions suivantes :

$$L_{med} > 3L_{abs} \quad (3.53)$$

$$L_{coh} > 5L_{abs} \quad (3.54)$$

Jusqu'à maintenant, nous avons expliqué le processus de génération d'harmonique d'ordre élevé selon les deux aspects microscopique et macroscopique. A l'échelle microscopique, la HHG s'effectue en 3 étapes (ionisation par effet tunnel, l'accélération dans le continuum et la recombinaison radiative). L'énergie harmonique émise est égale à la somme du potentiel d'ionisation de l'atome et de l'énergie cinétique gagnée par l'électron pendant son excursion dans le champ laser. Ensuite, nous avons évoqué la réponse macroscopique du système : la notion d'accord de phase est introduite, ainsi les conditions permettant d'avoir un bon signal harmonique. Dans ce qui suit, nous montrons l'influence de différents paramètres sur l'optimisation de la HHG.

3.3. Optimisation de la génération d'harmonique

Plusieurs paramètres peuvent être impliqués lors de l'optimisation du rayonnement XUV. Ces paramètres peuvent être classifiés en trois parties : le milieu atomique (nature du gaz : Xe, Ar, Ne, He, pression), le laser générateur (éclairage, durée) et la géométrie utilisée lors de l'interaction non-linéaire du laser avec le milieu générateur (colinéaire, non-colinéaire, courte ou longue focale). Nous présentons dans la suite l'influence de quelques paramètres sur le spectre harmonique.

3.3.1. Influence du milieu générateur

La loi de coupure (3.18) montre bien la dépendance du spectre harmonique de la nature du gaz rare utilisé via le potentiel d'ionisation. Plus le gaz est léger, plus son potentiel d'ionisation est important (tableau 3.1). Il en résulte donc un spectre plus repoussé vers les hautes énergies (ordre harmonique plus élevé). La figure 3.14 présente une comparaison du signal et de l'ordre harmonique obtenu pour les différents gaz utilisés (Xe, Ar, Ne, He ; I_p augmente respectivement) pour un éclairage de l'ordre de $1.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$. On observe que plus le gaz est léger, plus le plateau est long et l'ordre harmonique atteint est élevé.

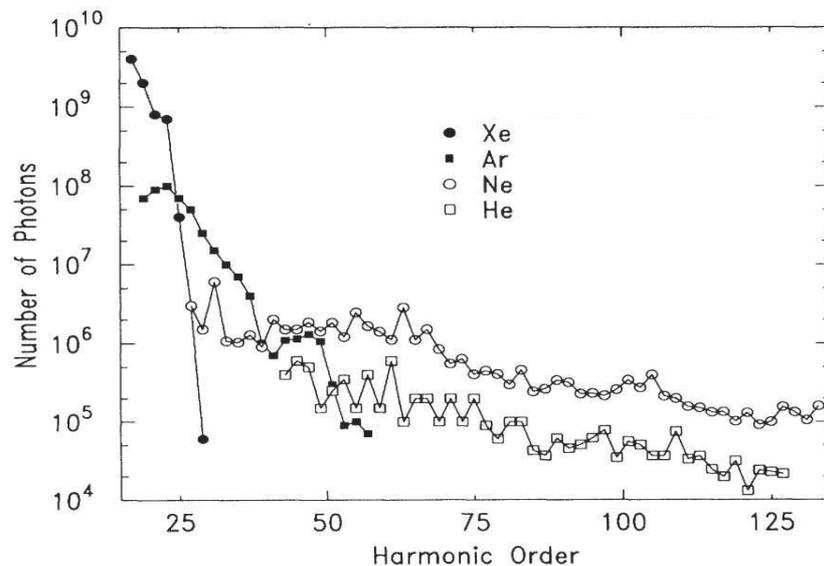


Figure 3.14 : Nombre total de photon généré dans le xénon, l'argon, le néon et l'hélium en fonction de l'ordre harmonique, figure extraite de [89].

3.3.2. Influence de l'éclairage laser

L'éclairage laser est un paramètre fondamental pour la génération d'harmonique d'ordres élevés. La figure 3.15 représente l'évolution de l'ordre harmonique dans l'argon (figure 3.15(a)) et le néon (figure 3.15(b)) pour différents éclairages. On observe, pour les deux gaz, que l'ordre harmonique maximal augmente avec l'éclairage laser, ainsi que

l'efficacité de conversion. Dans le cas de l'argon, l'ordre harmonique passe de 21 à 35 lorsque l'éclairement passe de 10^{14}W/cm^2 à $3.4 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$. Pour le néon, l'ordre harmonique passe de 29 à 79 lorsque l'éclairement passe de $1.1 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$ à $7.8 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$.

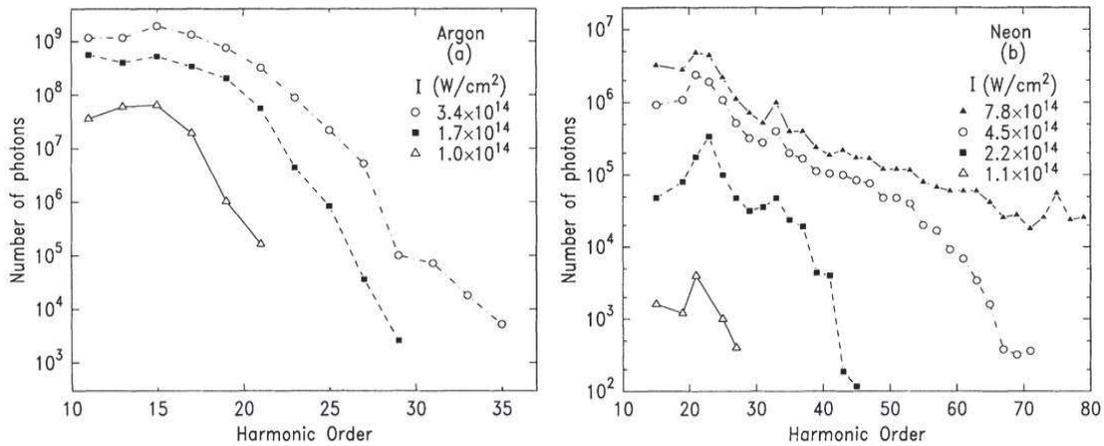


Figure 3.15 : Nombre de photons en fonction de l'ordre harmonique : (a) génération dans l'argon pour des éclairements 10^{14}W/cm^2 à $3.4 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$. (b) génération dans le néon pour des éclairements de $1.1 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$ à $7.8 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$. Figure extraite de [90].

3.3.3. Influence de la durée d'impulsion

La figure 3.16 montre l'évolution du spectre harmonique généré dans l'argon pour trois durées d'impulsions différentes (25 fs, 50 fs, 100 fs) et avec un éclairement de $4 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$. L'effet de la durée d'impulsion sur l'étendue du spectre est bien clair. En effet, l'ordre harmonique passe de 29 à 47 lorsque la durée d'impulsion passe de 100 fs à 25 fs, ainsi que l'efficacité de génération est meilleure.

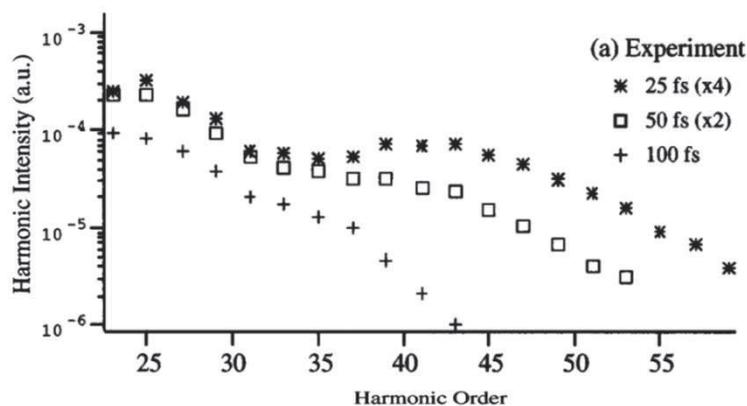


Figure 3.16 : efficacité de génération dans l'argon pour trois durées d'impulsions différentes (25 fs, 50 fs, 100fs) avec un éclairement de $4 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$. Figure extraite de [91].

Dans ce qui suit, nous présentons la ligne harmonique que nous avons mis en œuvre. Et dans une deuxième partie nous présentons quelques paramètres explorés pour optimiser la génération d'harmoniques dans une cellule de gaz et les résultats obtenus.

3.4. Présentation de la ligne harmonique

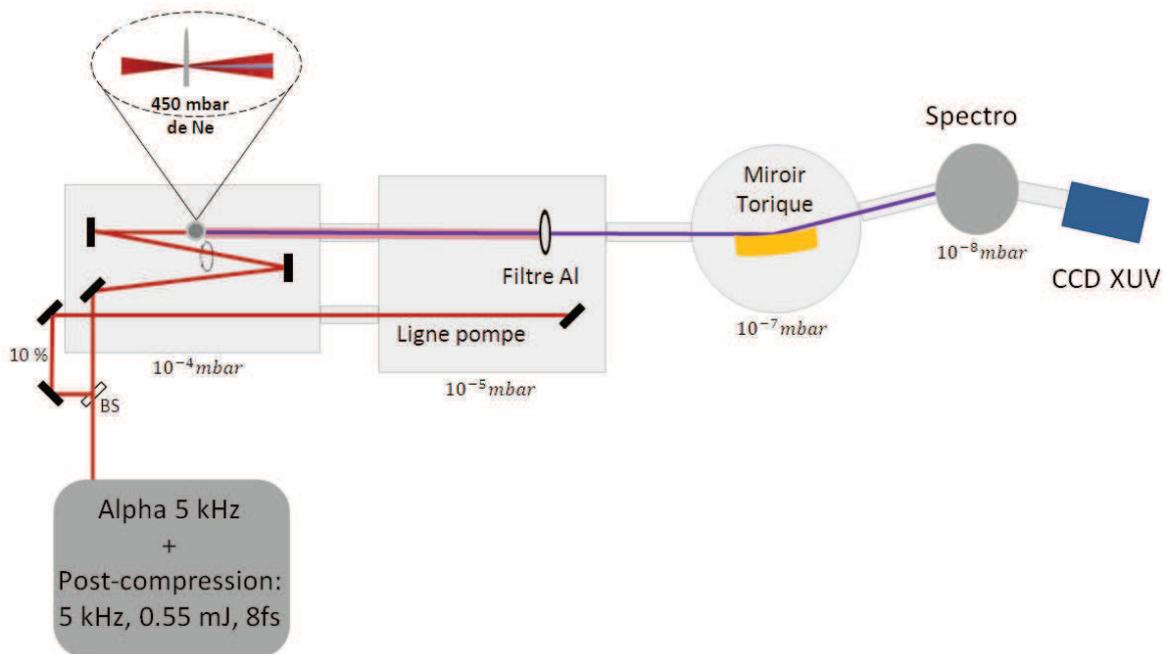


Figure 3.17 : Schéma du dispositif de génération d'harmoniques d'ordres élevés mis en œuvre.

La figure 3.17 présente le schéma de la ligne de génération d'harmoniques d'ordres élevés que nous avons mise en œuvre. La sortie de la chaîne Alpha 5 kHz et du système de post-compression est divisée en deux parties par une séparatrice (BS, 10 % de réflectivité). Une ligne XUV, générée par le processus de génération d'harmonique d'ordre élevé dans un gaz rare. Cette ligne va servir comme une ligne sonde XUV pour les expériences que nous avons envisagées. Et une deuxième ligne appelée pompe, (ici, la chambre de l'échantillon n'est pas schématisée. Elle se situe entre la chambre du Miroir Torique et le Spectro). Maintenant, on ne considère que la ligne XUV. Le faisceau est ensuite injecté dans une première chambre sous vide, ayant 10^{-7} mbar comme vide limite (sans le gaz) et il est focalisé à l'aide d'une lentille de focale égale à 0.5 m (zone de Rayleigh ~ 10 mm) dans une cellule de gaz rare.

- Milieu de génération

Nous avons choisi pour nos expériences une cellule (tube de nickel) de gaz comme milieu de génération. Ce type de cible convient bien à une cadence kHz et présente l'avantage d'être simple à aligner car c'est le faisceau lui-même qui perce le milieu, il suffit donc de placer la cellule sur le trajet du faisceau, contrairement aux capillaires qui nécessitent un alignement très précis et une très grande stabilité de pointé. Le positionnement de la cellule est géré par des moteurs *PI* sur les trois axes (x,y,z). En amont de la cellule un dispositif de régulation de pression permet de balayer un niveau de pression compris entre 10 *mbar* et 600 *mbar*, schématisé sur la figure 3.18. Dans ce qui suit, nous utilisons une cellule de diamètre 3.5 *mm*. Ce choix de longueur a été fixé après plusieurs tests sur des cellules de tailles différentes.

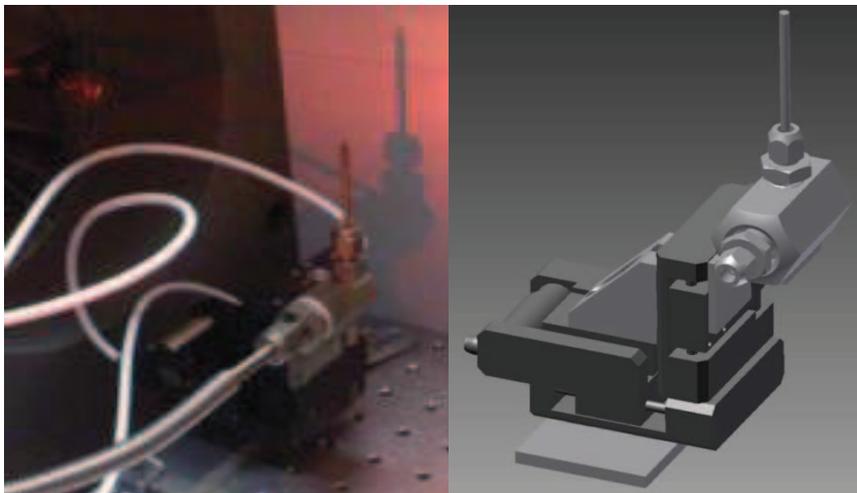


Figure 3.18 : Tube de nickel de 3.5 *mm* de diamètre injecté de gaz rare, utilisé comme milieu de génération d'harmonique d'ordre élevé.

Le rayonnement XUV ainsi généré dans le milieu de génération se propage colinéairement avec le faisceau générateur infrarouge sous vide sur une distance de 1.2 *m* avant de traverser un filtre en aluminium afin d'éliminer le faisceau infrarouge.

- Filtre en aluminium

Le rayonnement infrarouge constitue un problème majeur pour le système de détection des rayons XUV. Ce rayonnement est suffisamment intense pour endommager le système de détection ou conduire à la saturation de la détection et empêche ainsi de distinguer le rayonnement XUV. Pour s'affranchir de ses problèmes, nous avons utilisé un filtre en aluminium placé dans l'axe de propagation du faisceau XUV. L'avantage de ce filtre est qu'il transmet l'énergie sur une gamme, qui nous intéressent pour nos expériences, couvrant la

gamme de 17 eV à 72 eV. La transmission théorique du filtre aluminium en fonction de la longueur d'onde est représentée sur la figure 3.19. Cette transmission est calculée à partir du site CXRO.

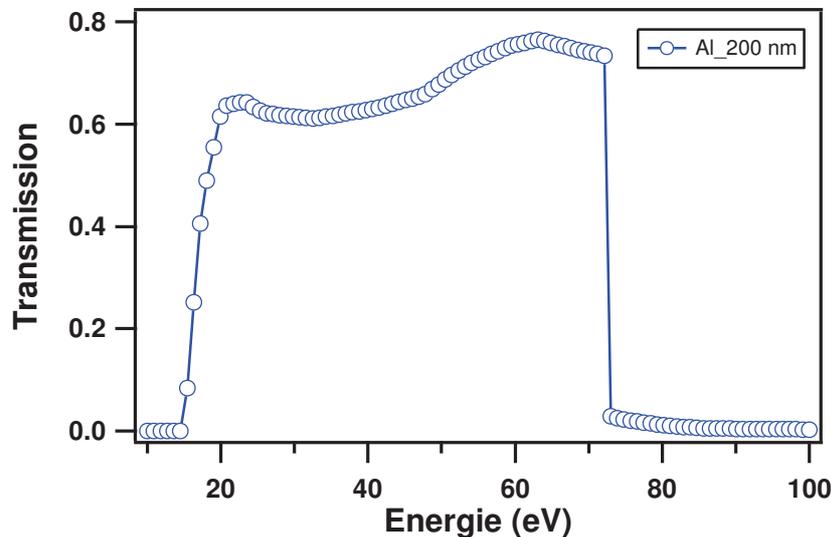


Figure 3.19 : Transmission théorique calculée pour 200 nm d'épaisseur d'aluminium en fonction de l'énergie. Reproduite de [87].

Ensuite le faisceau est focalisé à l'aide d'un miroir torique traité en or ayant une focale de 0.75 m (utilisé en incidence rasante $i = 82^\circ$) sur la fente d'un spectromètre à réseau en réflexion (HORIBA JOBIN YVON de 450 *traits/mm*) permettant de couvrir une gamme d'énergie entre 11.2 et 123.9 eV. La largeur de la fente est ajustable manuellement en utilisant une vis micrométrique calibrée avec la taille de la fente (4 μm – 2.28 mm). Le signal est ainsi détecté par une caméra CCD XUV 16 bits Andor Technology. La caméra CCD est mobile sur les axes X et Y à l'aide de deux platines de translation micrométrique. La position en X permet de choisir la gamme d'énergie, selon la courbe de calibration et la position sur Y permet d'ajuster le focus afin d'optimiser la résolution spectrale. La fenêtre de détection a comme dimension 27.6 mm \times 6.9 mm correspondant à 2048 \times 512 pixels de 13.5 μm \times 13.5 μm . La détection est à environ 3.8 m du milieu de génération.

3.4.1. Optimisation expérimentale de la source harmonique

Comme déjà mentionné au début de la section 2.3, plusieurs paramètres peuvent intervenir lors de l'optimisation du rayonnement XUV, ceux liés au milieu de génération (type du gaz, pression, longueur de la cellule...) et ceux liés à la source laser de génération (éclairage, durée, focalisation...).

L'éclairement laser utilisé pour la génération est estimé à $\sim 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ correspondant à une énergie injectée égale à 0.49 mJ , une durée estimée de 8 fs et un spot de $\sim 100 \mu\text{m}$ de diamètre. La polarisation du faisceau est P (imposée par le type d'expérience envisagée ; configuration MOKE transverse²). Sachant que la réflectivité des optiques XUV, par exemple le miroir torique, le signal harmonique sera plus faible.

Vu qu'on est limitée avec l'éclairement laser. Nous avons commencé par travailler dans l'argon ($I_p = 15.759 \text{ eV}$, $I_{BSI} = 2.3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$), puis dans le néon ($I_p = 21.564 \text{ eV}$, $I_{BSI} = 8.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

3.4.1.1. Génération dans l'argon

La figure 3.20 montre un spectre harmonique obtenu dans l'argon après optimisation des paramètres de génération. La pression en amont de la cellule était fixé à 150 mbar et une énergie de 0.49 mJ . Le spectre obtenu s'étend de l'harmonique 17 à l'harmonique 37, ce qui correspond à une gamme d'énergie allant de 26.5 eV à 58.2 eV .

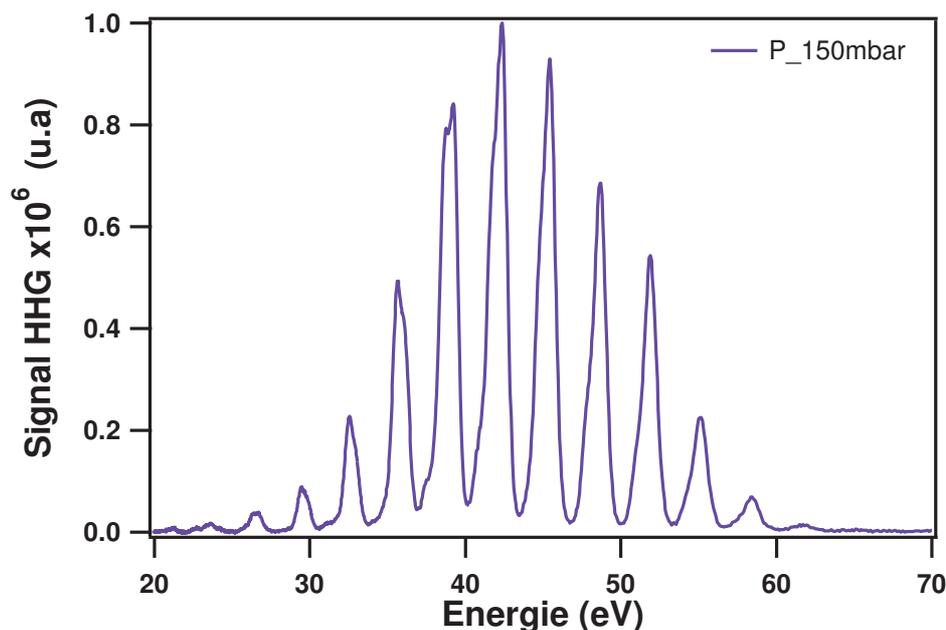


Figure 3.20 : Spectre harmonique obtenu dans l'argon après un filtre Al (200 nm) pour des conditions de génération optimales ($P = 150 \text{ mbar}$, $E = 0.49 \text{ mJ}$).

Dans la suite, nous montrons l'influence de quelques paramètres explorés pour optimiser le signal harmonique généré dans l'argon.

² cf. Chapitre 1 section 1.4.

- Effet de la pression

Comme la pression du milieu générateur joue un rôle primordial dans le processus d'optimisation de la génération d'harmonique d'ordre élevée. Nous présentons ici, l'évolution du signal harmonique en fonction de la pression

La figure 3.21 montre l'évolution du signal harmonique en fonction de la pression sur les harmoniques entre 17 et 37 générées dans l'argon. On observe une croissance du signal harmonique jusqu'à une pression de 150 mbar, correspondant à un optimum d'accord de phase dans ces conditions de génération. Les longueurs d'absorption dans la gamme d'énergie 30 – 60 eV et pour une pression de 150 mbar varient entre 0.02 et 0.31 mm, ce qui est en accord avec la condition $L_{med} > 3L_{abs}$, [88]. Lorsque la pression continue à augmenter le signal décroît jusqu'à s'éteindre complètement pour une pression supérieure à 220 mbar.

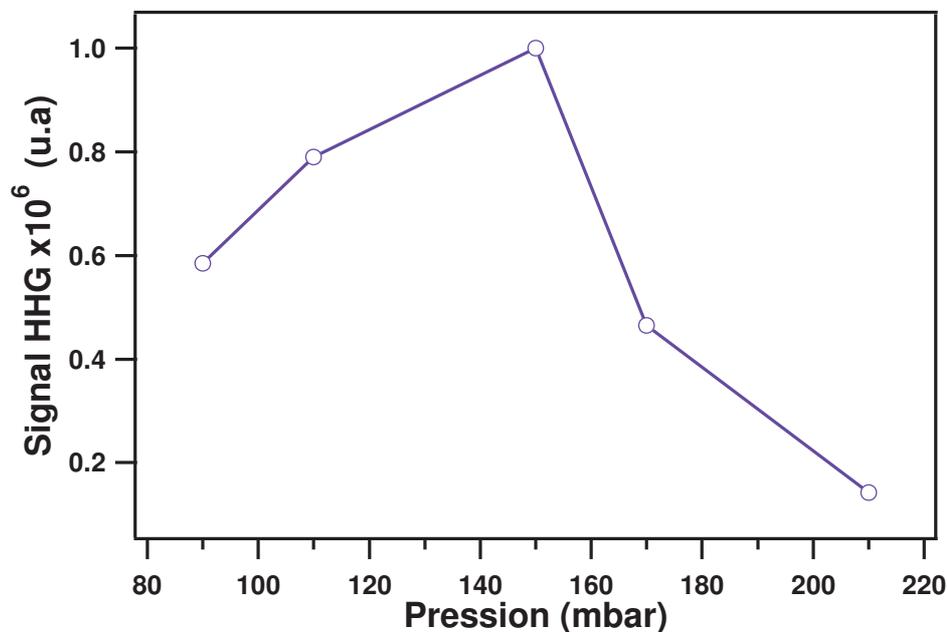


Figure 3.21 : Evolution du signal harmonique en fonction de la pression. L'énergie est de 0.49 mJ.

- Influence de la position de la cellule par rapport au foyer

La figure 3.22 montre l'évolution du signal harmonique en fonction de la position de la cellule par rapport au foyer z_0 . On observe une augmentation du signal HHG en s'éloignant du foyer. Le signal harmonique atteint son maximum pour une cellule située ~ 3 mm du foyer puis il décroît, ce qui est conforme avec les conditions d'accord de phase, [84].

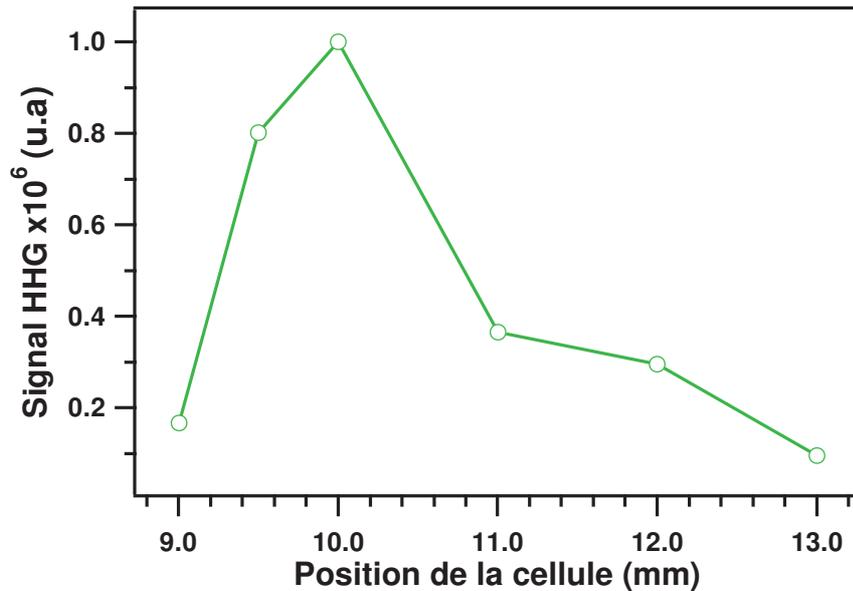


Figure 3.22 : Evolution du signal harmonique en fonction de la position de la cellule par rapport au foyer z_0 . Le foyer est situé à $z_0 = 7 \text{ mm}$, les positions pour $z > z_0$ correspondent à des positions après le foyer.

3.4.1.2. Génération dans le néon

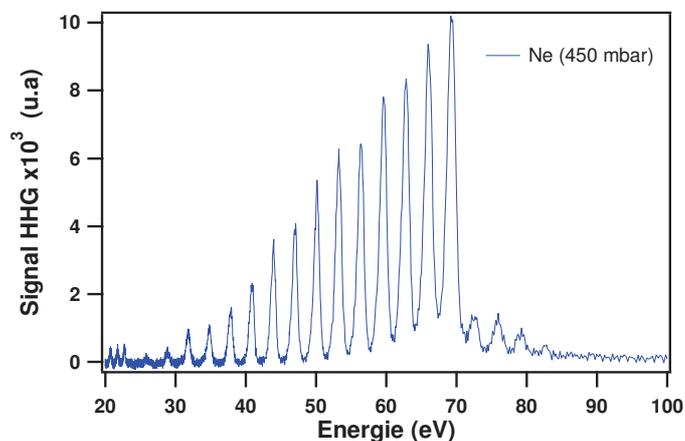


Figure 3.23 : Spectre harmonique obtenu dans le néon après un filtre Al (200 nm) pour des conditions de génération ($P = 450 \text{ mbar}$, $\sim 2.10^{14} \text{ W/cm}^2$).

La figure 3.23 montre un spectre obtenu dans le néon suite à une optimisation des paramètres de génération. La pression était de 450 mbar , l'éclairement laser est estimée à $\sim 2.10^{14} \text{ W/cm}^2$. Le spectre s'étend de l'harmonique 23 à l'harmonique 47 ce qui correspond à la gamme d'énergie entre 35 eV et 72 eV . La chute brutale du signal est attribuée à la coupure du filtre aluminium située à 72 eV .

Conclusion :

Dans ce chapitre, nous avons présenté les concepts théoriques permettant la compréhension du processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé. En deuxième partie, nous avons présenté la ligne harmonique mise en œuvre et les résultats obtenus.

Une fois que la source est bien diagnostiquée et fonctionne en routine, nous allons pouvoir commencer le travail sur l'étude de la dynamique des charges et des spins dans des métaux de transition tel que le cobalt Co. Vu que les seuils d'absorption de ces derniers sont situés dans la gamme 50-70 eV, nous ne travaillerons pour la suite qu'avec le néon, voir chapitre 4 section 4.3.

Chapitre 4

Concepts théoriques associés aux notions de dynamique de cohérence et de spin et résultats expérimentaux préliminaires de dynamique d'aimantation dans le cobalt observée dans les domaines spectraux du visible et RX

Sommaire

4.1. A propos de l'origine du processus de désaimantation	89
4.1.1. Interaction spin-orbite : effets cohérents et magnéto-électriques dynamiques.	89
4.1.2. Thermalisation des spins : le modèle de Stoner et le modèle de TDDFT	93
4.1.3. Processus « spins-flip » et lien avec la précession d'aimantation du modèle de LLG.....	95
4.1.4. Stratégie : étude de la désaimantation et de la précession des spins dans des films de cobalt dopés avec des atomes de terre-rare.....	97
4.2. Etude des films de cobalt dans le proche infra-rouge : expériences Kerr MO à 800 nm	97
4.2.1. Echantillons de cobalt dopés avec des terres rares et montage pompe-sonde Kerr/Faraday magnéto-optique	98
4.2.2. Résultats de dynamique d'aimantation	100
4.2.3. Modèle de précession avec non conservation du module d'aimantation	105
4.3. Etude des films de cobalt au seuil M : expériences Kerr magnéto-optiques à 60 eV	110

Introduction

Dans ce chapitre nous commençons par décrire les processus physiques qui sont au cœur des effets dynamiques que nous avons étudiés. Nous proposons une démarche pour tenter d'élucider l'une des questions fondamentales du Femtomagnétisme : l'origine de la désaimantation. Nous décrivons ensuite des expériences Faraday magnéto-optiques résolues en temps à 800 nm, réalisées avec des films de Cobalt dopés avec des terres rares, qui ont permis de confronter certains modèles. Notamment le lien entre désaimantation et précession est discuté en regard de nos résultats. Nous faisons ensuite le lien entre les expériences réalisées dans le proche infra-rouge et celles en cours dans le domaine des RX.

4.1. A propos de l'origine du processus de désaimantation.

L'origine de la désaimantation induite par laser a fait l'objet de nombreuses discussions. Un consensus est en train d'émerger sur le rôle important de l'interaction spin-orbite en présence d'un champ laser [6,7,27,92-94]. Mais des controverses sont encore présentes concernant le rôle des processus spin-flip similaires à ceux présents dans un milieu diffusant [95,96] contenant des impuretés (mécanisme Elliott-Yafet [97,98]). Les résultats récents obtenus en utilisant un modèle de théorie de la fonctionnelle de la densité dépendante du temps [99] indiquent que l'interaction d'échange et l'interaction spin-orbite sont toutes deux responsables de la désaimantation. L'importance de l'échange, traitée de manière auto-consistante, confirme des prédictions faites dans le cas d'un modèle simplifié faisant intervenir des paires de Stoner [3]. Dans ce paragraphe nous passons en revue ces trois catégories de mécanismes. Nous terminons par une brève description de notre stratégie d'étude avec les échantillons de cobalt dopés.

4.1.1. Interaction spin-orbite : effets cohérents et magnéto-électriques dynamiques.

En 2009 il a été démontré que la rotation Faraday dans des films de nickel et de platine de cobalt (CoPt₃) se produit pendant quelques dizaines de femtosecondes [7]. L'effet se traduit par une rotation de la polarisation d'une seule impulsion de 48 fs de durée au cours de sa propagation et qui dépend de manière non-linéaire de la densité d'excitation du faisceau laser. Le mécanisme correspondant a été assimilé à un processus cohérent magnéto-optique dans la mesure où sa durée est de l'ordre de celle de l'impulsion laser et dépend de l'orientation du champ magnétique statique externe appliqué. De plus dans cette expérience la distinction entre processus cohérent purement électronique et magnétique a pu être mise en évidence. Pour cela des mesures polarimétriques à deux faisceaux ont été faites en champ magnétique H opposé. La configuration est telle que la polarisation du champ électrique de l'impulsion pompe est soit à un angle $\theta_{pp} = 0^\circ$ ou 90° par rapport à celle de l'impulsion sonde. Le signal cohérent électronique est obtenu de la somme des signaux : $[(S_{\theta_{pp}=0^\circ,+H} + S_{\theta_{pp}=0^\circ,-H}) - (S_{\theta_{pp}=90^\circ,+H} + S_{\theta_{pp}=90^\circ,-H})]/2$. Cela correspond à la rotation Kerr optique. Le signal cohérent magnétique est lui obtenu à partir de la différence des signaux : $[(S_{\theta_{pp}=0^\circ,+H} - S_{\theta_{pp}=0^\circ,-H}) - (S_{\theta_{pp}=90^\circ,+H} - S_{\theta_{pp}=90^\circ,-H})]/2$. Dans cette équation la différentiation par rapport à H supprime la contribution électronique dans le signal magnétique et la différentiation par rapport à la valeur de θ_{pp} nous assure que le signal restant n'est que la partie cohérente du signal magnétique et non pas celui dû à la relaxation des populations de spins. Les figures 4.1a et 4.1c montrent les signaux magnétiques complets pour $\theta_{pp}=0^\circ$ et $\theta_{pp}=90^\circ$ pour un film de Ni de 7.5 nm d'épaisseur et d'un film de CoPt₃ de 15 nm d'épaisseur. La densité d'énergie absorbée de pompe est de 0.4 mJcm⁻². Les signaux cohérents électroniques et magnétiques correspondant déduits des formules précédentes sont montrés sur les figures 4.1b et 4.1d.

Le rapport entre contributions électronique et magnétique est de 1.4 pour Ni et 4.2 pour CoPt₃. Cela est dû au fait que le couplage spin-orbite est plus important dans le cas de CoPt₃ et au fait que l'origine de ce couplage comme nous allons le voir est due à l'interaction spin-orbite. Cette expérience a été déterminante pour montrer que la relaxation cohérente des charges, ou encore ce que l'on appelle parfois « relaxation libre de la polarisation » (par analogie avec la « relaxation libre de l'induction » dans les études d'échos de spins), dans un métal ferromagnétique est différente de celle des spins.

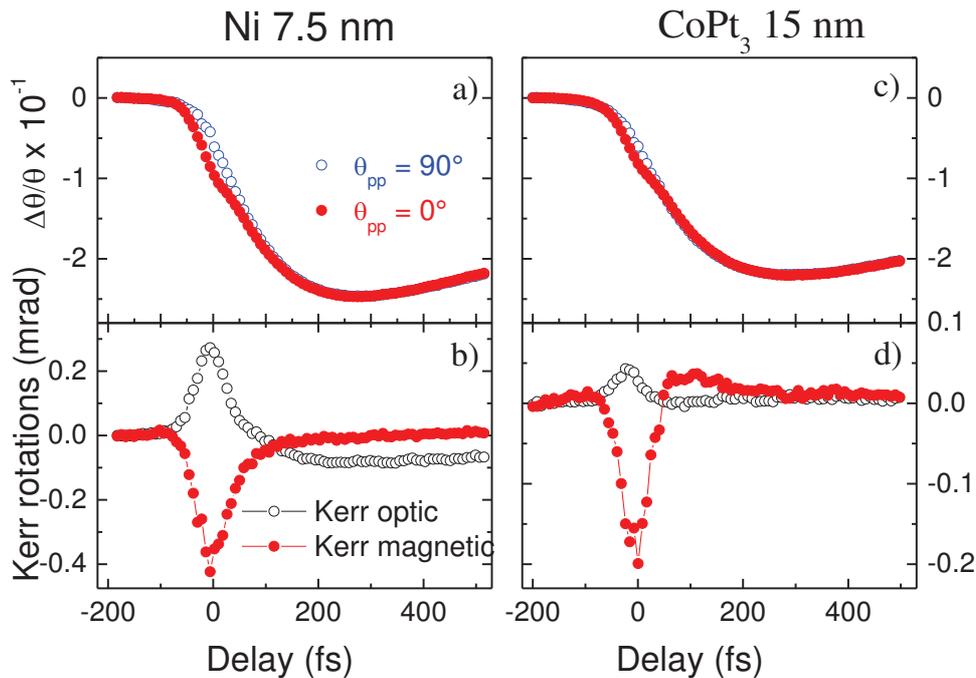


Figure 4.1 : Réponses cohérentes électronique et magnétique de films ferromagnétiques. Signaux pompe-sonde magnéto-optiques d'un film de Ni (4.1a et 4.1b) et de CoPt₃ (4.1c) et (4.1d). Les signaux cohérents magnétiques en rouge dans les figures 4.1b et 4.1d sont obtenus par double différenciation par rapport au champ magnétique statique et par rapport à l'orientation de la polarisation de pompe qui est soit parallèle ou orthogonale à celle de la sonde.

Afin de modéliser l'importance des effets cohérents lors de la désaimantation de films ferromagnétiques, notre équipe a développé un modèle d'interaction de la lumière avec des spins en prenant en compte l'interaction spin-orbite. Le modèle développé [27], considère le cas simplifié d'un système hydrogénoïde, constitué de 8 niveaux d'énergie en interaction avec un champ laser impulsionnel (impulsion femtoseconde) et un champ magnétique externe statique. Le Hamiltonien du système prend en compte l'interaction spin-orbite via l'équation de Dirac relativiste pour un électron. Après une transformation appropriée (transformation de Foldy-Wouthuysen) pour séparer les valeurs propres d'énergies positives et négatives (ce qui fût la démarche de Dirac pour mettre en évidence le positron), et après

un développement au second ordre en $1/m$, où m est la masse de l'électron, les termes importants sont les suivants :

$$H_{int} = -\frac{q}{m}\Pi \cdot A_L - \frac{q}{2m^2c^2}[(p - qA_M) \times S] \cdot E_L - \frac{q}{m}S \cdot B_L - \frac{iq\hbar}{4m^2c^2}S \cdot (\nabla \times E_L) \quad (4.1)$$

Avec le moment cinétique généralisé donné par :

$$\Pi = p - qA_M + \frac{q}{2mc^2}S \times E_i \quad (4.2)$$

Le champ magnétique statique est caractérisé par l'induction et le potentiel vecteur : B_M, A_M et le champ électrique du laser par E_L, A_L . S est l'opérateur de spin et E_i le champ électrique associé au potentiel ionique. L'Hamiltonien (4.1) contient deux termes principaux. Le premier comporte le couplage du champ laser avec les spins via le couplage dipolaire du champ électrique avec le dipôle électrique qui fait intervenir le moment cinétique généralisé dans lequel intervient l'interaction spin-orbite avec le potentiel des ions (ou de manière équivalente le champ ionique). C'est ce terme qui permet d'expliquer les effets Kerr et Faraday magnéto-optiques statiques, tel que l'a démontré Argyres [100]. Le deuxième terme est un terme similaire mais qui fait intervenir le champ laser au lieu du champ ionique. C'est l'analogue du couplage spin-orbite mais qui fait appel au potentiel local induit par le faisceau laser. Ce terme d'origine relativiste (tout comme le couplage spin-orbite habituel) nécessite des densités d'excitation très importantes et peut être négligé au premier ordre en champ.

L'Hamiltonien (4.1) a été utilisé dans le cas d'un système hydrogénoïde à 8 niveaux : 2 états fondamentaux non-dégénérés $2s$ de spins $S_z = \pm 1/2$ et 6 états excités $3p$ également non-dégénérés de moments orbitaux $l_z = (0; \pm 1)$ et $S_z = \pm 1/2$, figure 4.2.

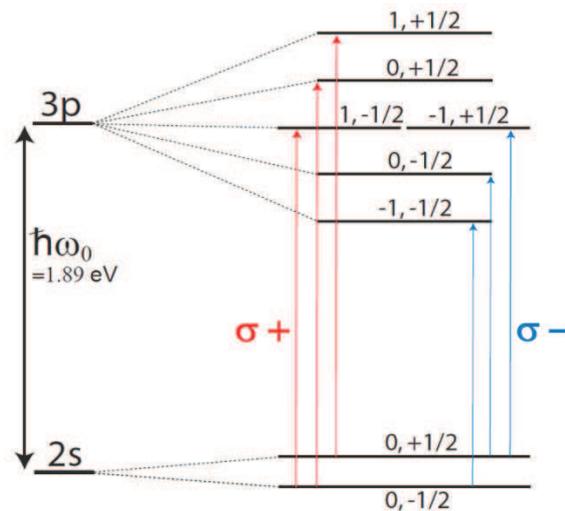


Figure 4.2 : Transitions pour un laser polarisé circulairement. En rouge, les transitions $\sigma+$, en bleu les transitions $\sigma-$. Extraite de [27].

Un traitement à l'ordre 3 en champ et un calcul dynamique effectué à partir de la matrice densité, en prenant en compte l'ordre temporel de deux champs pompe et sonde ont permis de calculer la réponse Faraday nonlinéaire dépendante du temps. Le résultat principal est que ce modèle simplifié de l'interaction spin-photon met bien en exergue l'existence d'une contribution cohérente purement magnétique comme le montre la figure 4.3. On y retrouve les notions connues dans le cas de la dynamique des charges seules, à savoir deux composantes cohérentes : le terme de polarisation (en rouge dans la figure 4.3) qui est présent pendant la durée des impulsions pompe et sonde et/ou pendant la durée du temps de déphasage ($T_2/2$ ou $T_2/4$ selon que le système ait une largeur spectrale homogène ou inhomogène), le terme de perturbation de la pompe par la sonde (courbe en bleue dans la figure 4.3) qui est présent aux délais pompe-sonde négatifs et enfin un terme incohérent correspondant aux populations (en noir dans la figure 4.3) dont le temps de relaxation se produit pendant le temps de vie T_1 . La courbe en vert correspond aux trois contributions telles qu'elles apparaissent dans des expériences Kerr ou Faraday magnéto-optique résolue en temps. Notons que dans la figure 4.3 il s'agit bien d'un signal faisant intervenir la dynamique des spins, via le couplage spin-orbite.

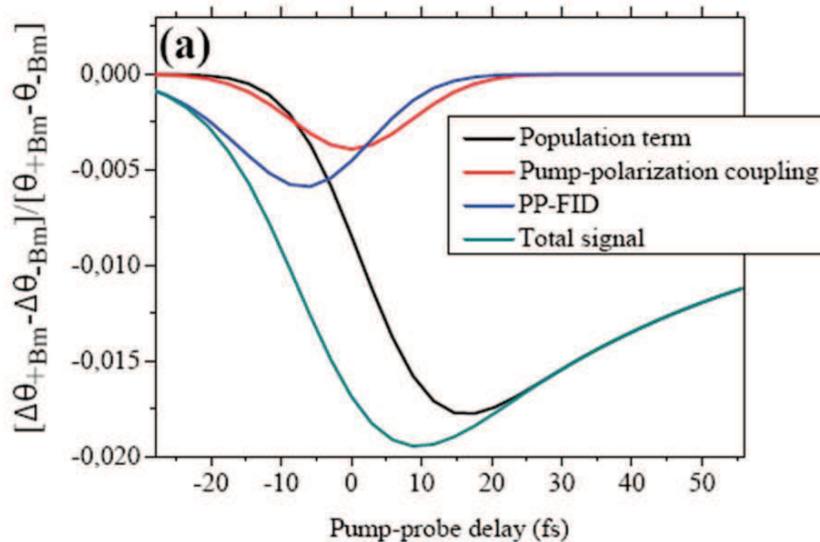


Figure 4.3 : Rotation Faraday différentielle dépendant du temps dans le cas d'un système hydrogénoïde à 8 niveaux. Les contributions cohérentes et la contribution des populations sont indiquées en encart.

Le modèle précédent possède l'avantage de comprendre la physique des effets cohérents magnéto-optiques induits par des impulsions laser ultra-brèves, il permet également de mettre des bases solides à l'étude d'effets plus fins tels que l'interaction spin-photon en champ électromagnétique de forte densité, où le champ laser peut se « substituer » au champ ionique pour induire un couplage spin-orbite d'une nouvelle nature telle que cela a été prédit par Bigot et al. Dans le cas de la matière condensée, où les effets d'échanges sont

très importants, le modèle doit prendre en compte cet échange et pour cela il vaut mieux faire appel à des modèles incluant directement les notions de ferromagnétisme, de corrélations électroniques et d'échange. C'est l'objet du prochain paragraphe.

4.1.2. Thermalisation des spins : le modèle de Stoner et le modèle de théorie de la fonctionnelle de la densité dépendant du temps.

Comme nous venons de le voir, les effets cohérents se produisent pendant la durée de l'impulsion étant donné que le temps de déphasage des charges et des spins dans les métaux est extrêmement rapide (de l'ordre de la femtoseconde). Cela a d'ailleurs été démontré dans le cas d'une étude de mélange d'ondes dans des grenats dopés au bismuth [101,102]. La dynamique de populations électroniques (charges et spins) ne peut bien sûr pas être modélisée par une simple constante de relaxation T_1 . Il faut faire appel aux théories incluant les interactions à plusieurs corps. Ce n'est que dans ce cadre que l'on peut espérer obtenir une information sur la dynamique qui suit les effets cohérents, à savoir la thermalisation des spins. Nous considérons ci-dessous deux cas principaux, le premier correspondant à un champ moyen dans le cadre de l'approximation de Stoner et qui permet d'expliquer comment intervient la désaimantation sur la base d'un modèle de températures [3]. Le deuxième est purement ab-initio et fait intervenir la théorie de la fonctionnelle de la densité [99].

- Désaimantation par création de paires de Stoner

Ce modèle repose sur le fait que l'interaction de l'impulsion laser femtoseconde pompe avec le métal ferromagnétique modifie de manière très significative la distribution d'énergie autour du niveau de Fermi. Les électrons de valences acquièrent une énergie cinétique très importante dans leur bandes respectives et il n'est pas déraisonnable de considérer un modèle de type Stoner [38]. Ce modèle repose une approche de magnétisme itinérant, considérant en première approximation que l'énergie cinétique des électrons est bien supérieure aux corrélations électroniques. Le potentiel de Coulomb U est considéré comme étant très fortement écranté et l'on suppose que c'est un potentiel de quasi-contact : $U(r - r') = I \delta(r - r')$ pour deux électrons de coordonnées r et r' . Les énergies des quasiparticules de vecteur d'onde k sont donnée par :

$$\varepsilon_{k\pm} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e^*} + nI(1 \mp M) \text{ avec } M = n_{\uparrow} - n_{\downarrow} \quad (4.3)$$

où $n_{\uparrow}(n_{\downarrow})$ sont les densités d'états de spins des porteurs majoritaires et minoritaires et M l'aimantation. L'aimantation peut alors être calculée pour une température T_e des électrons avec l'équation intégrale :

$$M = \mu_B m = \mu_B \int [F(\varepsilon_{k+}, T_e) - F(\varepsilon_{k-}, T_e)] g(\varepsilon) d\varepsilon \text{ ; avec } \varepsilon = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \quad (4.4)$$

Où μ_B est le magnéton de Bohr et F la distribution de Fermi à la température T_e . $g(\varepsilon)$ est la densité d'états dans les bandes d (on considère ici un métal de transition tel que le nickel).

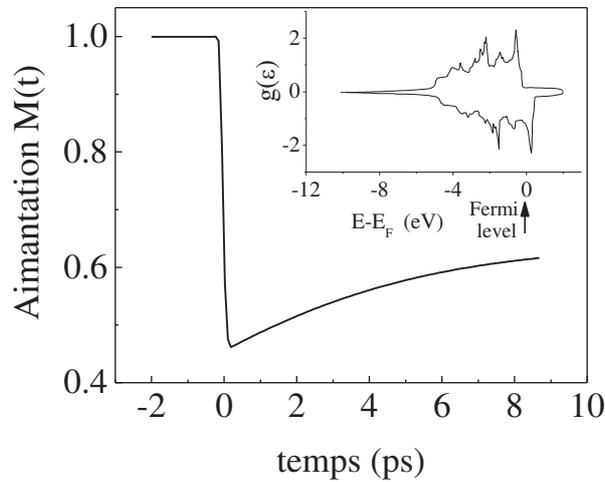


Figure 4.4 : Dynamique d'aimantation du nickel obtenue avec le modèle de Stoner. L'encart représente la densité d'état des spins majoritaires et minoritaires.

La figure 4.4 représente la dynamique d'aimantation $M(t)$ d'un film de nickel obtenue avec un tel modèle. La dynamique est obtenue en supposant que la température $T_e(t)$ dépend du temps selon le modèle à deux bains décrit au chapitre 1. On a supposé une impulsion Gaussienne de 100 fs et la densité d'états des porteurs majoritaires et minoritaires est montrée en encart. Il est remarquable que ce modèle simple avec interaction de contact, donc écrantage Coulombien maximum, représente assez bien la dynamique observée dans l'expérience de 1996. On peut également prendre en compte la thermalisation des spins avec le modèle dynamique incluant des populations hors équilibre qui « alimentent » les populations d'électrons thermalisée à la température T_e (et ou T_s). Selon que l'on considère ou non un modèle à 3 bains).

- Modèle TDDFT (time dependent density functional theory).

Dans le modèle précédent les corrélations entre les spins ne sont pas prises en compte. Récemment l'équipe de Gross au Max Planck à Halle a développé un modèle de dynamique de spins dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité, dans l'état excité, en prenant en compte les spins. C'est à ce jour le modèle le plus complet prenant en compte de manière satisfaisante l'échange-corrélation dans la dynamique de spins. Notons que l'interaction avec le réseau n'est pas prise en compte et que ce modèle n'est donc valable que pendant la désaimantation accompagnant la thermalisation des spins.

K. Krieger et coll. [99] ont étudié la dynamique des spins dans les métaux de transitions Ni, Fe, Co en utilisant le formalisme de la théorie de la fonctionnelle de la densité dépendante du temps, avec résolution en spins dans le cas du magnétisme non-colinéaire. Les orbitales Kohn-Sham dépendant du temps sont données par :

$$i \frac{\partial \psi_j(r,t)}{\partial t} = \left[\frac{1}{2} \left(-i\nabla + \frac{1}{c} A_{ext}(t) \right)^2 + V_s(r,t) + \frac{1}{2c} \sigma \cdot B_s(r,t) + \frac{1}{4c^2} \sigma \cdot (\nabla V_s(r,t) \times i\nabla) \right] \psi_j(r,t) \quad (4.5)$$

où $A_{ext}(t)$ est le potentiel vecteur du champ laser et σ les matrices de Pauli. Le potentiel Kohn-Sham effectif est la somme : $V_s(r,t) = V_{ext}(r,t) + V_H(r,t) + V_{xc}(r,t)$ des potentiels externe, de Hartree électrostatique et d'échange corrélation. De même le champ magnétique effectif est la somme : $B_s(r,t) = B_{ext}(r,t) + V_{xc}(r,t)$ des champs externes (du laser et champ statique appliqué) et du champ d'échange. Le troisième terme de l'équation (4.5) correspond à l'interaction spin-orbite.

Les auteurs ont appliqué leur modèle ab-initio au cas de Ni, Co et Fe en utilisant des états excités réalistes (structure de bande) de ces métaux ferromagnétiques excités par des impulsions laser de 5 fs de durée. Ils ont obtenu pour la première fois la désaimantation induite par laser sans faire intervenir la température du système. Le principal résultat est que la désaimantation se produit en deux étapes. Pendant la durée de l'impulsion une partie des électrons se délocalise en effectuant des transitions vers les états excités ensuite, pendant quelques dizaines de femtosecondes, les électrons localisés subissent des spin-flips. Ces spins-flips, qui sont à l'origine de la désaimantation, sont dus à l'interaction spin-orbite car ils disparaissent lorsqu'elle celle-ci est supprimée dans l'équation dynamique des orbitales Kohn-Sham.

Ce modèle confirme ainsi l'approche décrite au paragraphe 4.1.1, dans le cas des processus cohérents d'un système hydrogénoïde, où l'interaction spin-orbite est aussi le facteur expliquant les modifications de la rotation Faraday ultra-rapide. Evidemment dans le modèle TDDFT la dynamique des populations est obtenue de manière réaliste et auto-consistante via l'échange-corrélation et non par une constante de relaxation T_1 postulée ad-hoc.

4.1.3. Processus « spins-flip » et lien avec la précession d'aimantation du modèle de Landau-Lifshitz-Gilbert.

Dans les deux précédents paragraphes, nous avons montré que l'interaction spin-orbite permet d'expliquer aussi bien les processus cohérents magnétiques que la dynamique de populations de spins. Un autre modèle a été proposé pour expliquer la désaimantation ultra-rapide [95]. Il est important de s'attarder ici sur ce modèle en le résumant brièvement car il a motivé une partie des mesures et résultats obtenus avec le cobalt dopé avec des terres rares. Nous verrons en effet dans le paragraphe 2 que nos expériences infirment ce modèle qui repose sur des processus de renversement des spins (« spins-flip ») dus à la diffusion des charges et des spins avec les phonons d'une manière semblable à la diffusion Elliot-Yafet des

électrons de conduction sur des impuretés [97,98]. Les auteurs ont d'abord considéré les charges et dérivé une expression donnant le taux de relaxation τ_{el} entre les électrons et le réseau. Pour cela ils considèrent un Hamiltonien d'interaction qui fait intervenir des processus de diffusion élémentaires $\lambda_{ep}c_k^\dagger c_{k'}(a_q^\dagger + a_q)$ entre électrons (opérateurs création c_k^\dagger et annihilation $c_{k'}$) et phonons (a_q^\dagger et a_q) avec l'élément de matrice d'interaction λ_{ep} . En intégrant sur la densité d'états électroniques à température T_e et de phonons à température T_l et en utilisant la règle d'or de Fermi, ils obtiennent :

$$\tau_{el} = \frac{T_e - T_l}{(C_l/C_e - 1)T_l} \approx \frac{\hbar \pi k_B T_e}{6 D_F D_p E_p \lambda_{ep}^2} \quad (4.6)$$

Où C_e, C_l sont les chaleurs spécifiques électronique et de réseau. D_F est la densité d'états au niveau de Fermi supposée constante et D_p le nombres de phonons considérés comme oscillateurs harmoniques. L'approche conduisant à l'expression (4.6) est semblable à celle des deux bains, décrite au chapitre 1, à cela près que la constante de couplage électrons-réseau G_{el} entre les deux bains est remplacée par une expression d'origine quantique entre populations d'électrons et de phonons. Ensuite les auteurs considèrent l'interaction des spins avec les charges et phonons en supposant des renversements de spins $\lambda_{ep}\sqrt{a}c_k^\dagger c_{k'}(a_q^\dagger + a_q)(S_{j\uparrow} + S_{j\downarrow})$, a étant une probabilité de « spins-flip » et $S_{j\uparrow}, S_{j\downarrow}$ les opérateurs de spins. En considérant les différentes possibilités d'absorption ou d'émission de phonons avec renversement des spins, la relaxation des spins vers l'équilibre est donnée par une constante de relaxation τ_{sl} donnée, par la règle d'or de Fermi :

$$\tau_{sl} = \frac{\Delta T_{sl}(\infty)}{\dot{T}_{sl}(0)} = \frac{\Delta S(\infty)}{\dot{S}(0)} = \frac{\hbar}{k_B T_0 \alpha} \quad \text{avec} \quad \alpha = \frac{2\pi \lambda_{ep}^2 D_F^2 D_p a k_B T}{E_p D_s} \quad (4.7)$$

où α n'est autre que la constante d'amortissement de Gilbert. Les calculs ne sont valables que dans un régime de perturbation faible, loin de la température de Curie, dans la limite où les chaleurs spécifiques de spins et électronique vérifient : $C_s \ll C_e$. Cette approche est compatible avec le modèle à trois bains décrit au chapitre 1, si l'on considère que les constantes de couplages phénoménologiques G_{el} et G_{sl} sont liées aux probabilités de diffusion λ_{ep} et a des charges et des spins avec les phonons.

Ce modèle de « spins-flips » s'inscrit dans un cadre thermodynamique et ne considère par conséquent pas les populations électroniques hors-équilibre et athermales, qui sont essentielles pendant les premières centaines de femtosecondes, lorsque la désaimantation se produit, dans la plupart des métaux ferromagnétiques. Mais, comme nous allons le voir dans ce qui suit, le problème principal avec ce modèle est la relation entre le temps de relaxation τ_{sl} et l'amortissement de Gilbert α , qui sont inversement proportionnelles.

4.1.4. Stratégie : étude de la désaimantation et de la précession des spins dans des films de cobalt dopés avec des atomes de terre-rare.

Nous avons vu au chapitre 1 que l'un des succès du Femtomagnétisme est non seulement de pouvoir étudier la dynamique des spins hors équilibre mais également de pouvoir étudier la précession d'aimantation pendant plusieurs dizaines de picosecondes. Cela permet notamment d'obtenir des informations directement dans l'espace temporel et non pas en fréquence comme c'est le cas avec la résonance ferromagnétique. Le cas du cobalt est particulièrement intéressant. En effet, le contraste des oscillations associées à la précession, obtenues par sa projection sur l'axe polaire perpendiculaire au plan du film, est très important comme on le voit sur la figure 1.7 du chapitre 1. Par ailleurs, la durée femtoseconde des impulsions est susceptible de donner également accès aux mécanismes de désaimantation. C'est donc tout naturellement que l'on a choisi ce métal de transition pour étudier la relation de proportionnalité inverse entre τ_{sl} et α décrite dans le paragraphe précédent. Notons que τ_{sl} désigne bien le temps de désaimantation et non la relaxation des spins au réseau du modèle à trois bains, car il s'agit des processus spin-flips qui conduisent à la désaimantation (introduction d'un « désordre » magnétique) et non le refroidissement des spins au réseau (réapparition de l'ordre ferromagnétique).

Pour pouvoir étudier la validité de l'expression $\tau_{sl} \propto 1/\alpha$ encore faut-il pouvoir varier ces deux quantités de manière systématique. Pour cela nous disposons de deux paramètres expérimentaux : la densité d'excitation laser E_l et, pour le cas qui nous concerne, de la densité d'impuretés magnétiques x dont on peut doper les films de cobalt. Dans le premier cas on sait en effet que le temps de désaimantation augmente lorsque E_l augmente. La variation de α avec E_l n'est par contre par bien connue. Dans le deuxième cas on sait qu'une densité d'ions terre rares augmente l'amortissement de Gilbert. Par contre le comportement du temps désaimantation en fonction de x n'est pas connue. La stratégie que nous avons adopté est donc de mesurer ces deux quantités dynamiques (τ_{sl} et α en fonction de E_l et x) d'abord en effectuant des expériences pompe-sonde magnéto-optiques dans le proche infra-rouge puis dans le domaine des RX.

4.2. Etude des films de cobalt dans le proche infra-rouge : expériences Kerr magnéto-optiques à 800 nm.

Ces expériences ont été réalisées en collaboration avec Leandro H. F. Andrade (*IPEN-CNEN, São Paulo, Brésil*) et Antonio D. Santos (*Département de Physique des Matériaux, Université de São Paulo, Brésil*). Un premier batch d'échantillons de cobalt dopés a été fait à São Paulo et caractérisé là bas. Un deuxième batch a été fait à Strasbourg pour confirmer les résultats.

4.2.1. Échantillons de cobalt dopés avec des terres rares et montage pompe-sonde Kerr/Faraday magnéto-optique.

Les films métalliques ferromagnétiques ont été déposés sur des substrats de verre et de silicium par évaporation sous atmosphère d'Ar contrôlée à 5 mTorr . Les échantillons sont des films de cobalt co-dépôtés avec des terres rares (Tb, Ho, Sm, Dy). Le taux d'évaporation de chacun de ces éléments a été calibré en utilisant la spectroscopie Rutherford en rétrodiffusion (RBS : Rutherford Back Scattering). L'épaisseur et la composition de chacun des échantillons a été déterminée en ajustant les spectres RBS expérimentaux avec le software Rump. Une caractérisation typique est montrée sur la figure 4.5(a). La caractérisation magnétique des échantillons a été faite à 300 K par VSM (Vibrating Sample Magnetometer) et SQUID (Superconducting Quantum Interference Device). Les mesures VSM montrent que les échantillons ont une aimantation dans le plan avec un champ coercitif typique de 200 Oe qui n'est quasiment pas modifié pour un faible dopage. L'aimantation à saturation M_S est calculée à partir des résultats SQUID en prenant en compte le volume de matière déterminé par RBS (épaisseur) et imagerie. Dans le cas du dopage avec Tb, Dy et Ho, qui se couplent de manière antiferromagnétique avec le Co nous observons une diminution de M_S en augmentant la concentration du dopage (figure 4.5(b)). Nous avons cependant vérifié par RBS que l'épaisseur des échantillons est la même c'est-à-dire de 17 nm , à 10% près.

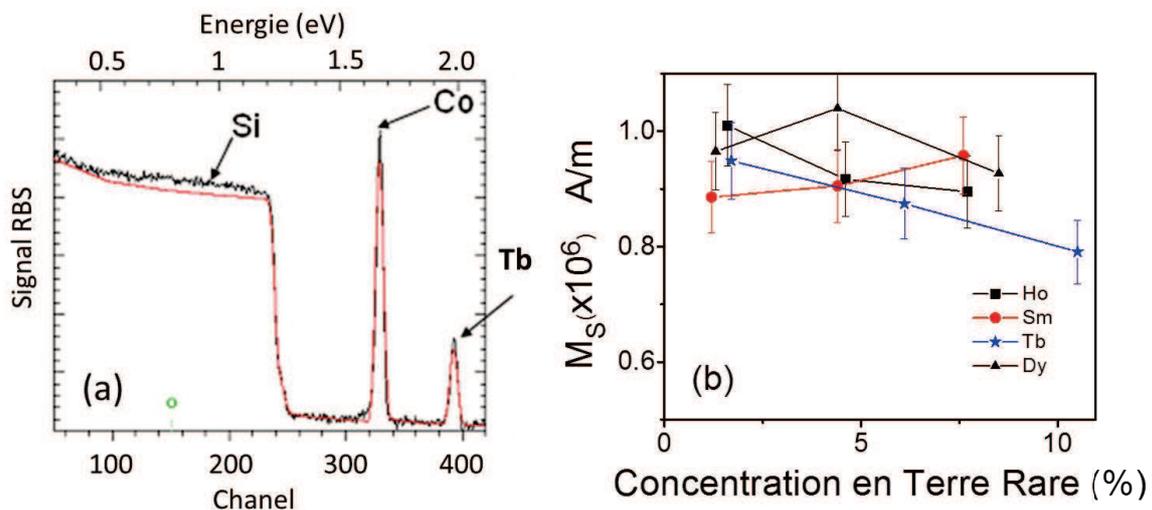


Figure 4.5 : Caractérisation des échantillons dopés aux terres rares. (a) spectre RBS dans le cas d'un dopage avec Tb. (b) Mesures VSM de l'aimantation à saturation pour plusieurs dopants en fonction de leur concentration.

Les mesures dynamiques ont été faites avec un système laser Titane Saphir amplifié à 5 kHz . Le système est constitué d'un oscillateur à 80 MHz délivrant des impulsions de 35 fs , centrées à la longueur d'onde de 800 nm (Tsunami de chez Spectra Physics). Le faisceau est

injecté dans un amplificateur régénératif pompé par un laser TLF (EM power de chez Spectra Physics). La puissance moyenne de sortie est de $\sim 2W$, dont seulement une partie est prélevée pour nos expériences ($\sim 100 mW$). La durée des impulsions au niveau de l'échantillon est de $50 fs$ à $800 nm$ comme le montre l'autocorrélation interférométrique de la figure 4.6. Le faisceau est divisé en deux parties pour les impulsions pompe et sonde. Le rapport de focalisation entre faisceau pompe ($\sim 100 \mu m$) et sonde ($\sim 50 \mu m$) est de $\sim 1/2$. Un champ magnétique statique d'amplitude maximum $\pm 3 kOe$ est utilisé pour varier l'aimantation dans le plan xOz selon la configuration montrée sur la figure 4.7, où l'on a également représenté le pont de polarisation disposé sur le faisceau sonde après l'échantillon, afin de mesurer la rotation θ ou l'ellipticité ε Kerr. Simultanément la réflectivité R et la transmission T de l'échantillon peuvent être mesurées. Une ligne à retard entre les trajets des impulsions pompe et sonde permet de mesurer les quantités dynamiques différentielles : $\Delta T/T$, $\Delta R/R$, $\Delta \theta/\theta$, $\Delta \varepsilon/\varepsilon$, où $\Delta A/A$ (avec $A=T$, R , θ ou ε) désigne $(A_{avec pompe} - A_{statique})/A_{statique}$, au moyen d'une détection synchrone constituée d'un hacheur mécanique ($215 Hz$) et d'amplificateurs lock-in. Le pas temporelle minimum est donné par le déplacement du moteur de $0.1 \mu m/pas$ ($0.66 fs$) et permet d'explorer la gamme temporelle de -50 à $800 ps$. La densité d'excitation avec le faisceau pompe est variable entre 1.7 et $20.2 mJ/cm^2$. Pour certaines mesures, le faisceau pompe est doublé à $400 nm$ dans un cristal de BBO. Cela permet de minimiser, au niveau de la détection, la diffusion inévitable de la pompe dans la direction de la sonde au moyen de filtres appropriés. Cela se fait au détriment de la résolution temporelle qui dans ce cas est de l'ordre de $100 fs$ en raison de la dispersion en fréquence des impulsions dans le cristal doubleur. Lorsqu'une meilleure résolution temporelle était nécessaire ($50 fs$), nous avons utilisé des impulsions pompe et sonde à $800 nm$. Dans ce cas des franges d'interférences sont présentes sur les signaux détectés mais que nous avons pu réduire en modulant le trajet des impulsions pompe avec un transducteur piézoélectrique. La figure 4.6 représente un schéma synoptique simplifié dans l'environnement de l'échantillon avec les configurations d'excitation et de détection.

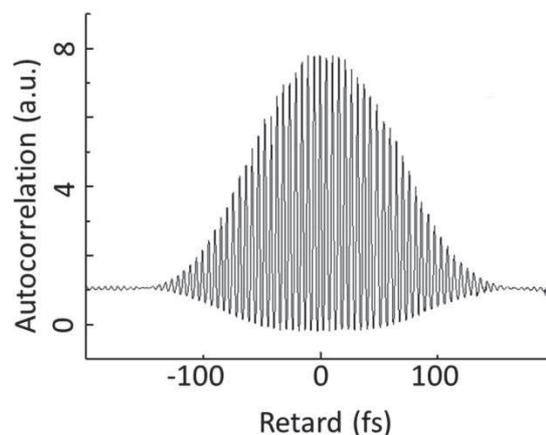


Figure 4.6 : Autocorrélation interférométrique des impulsions amplifiées.

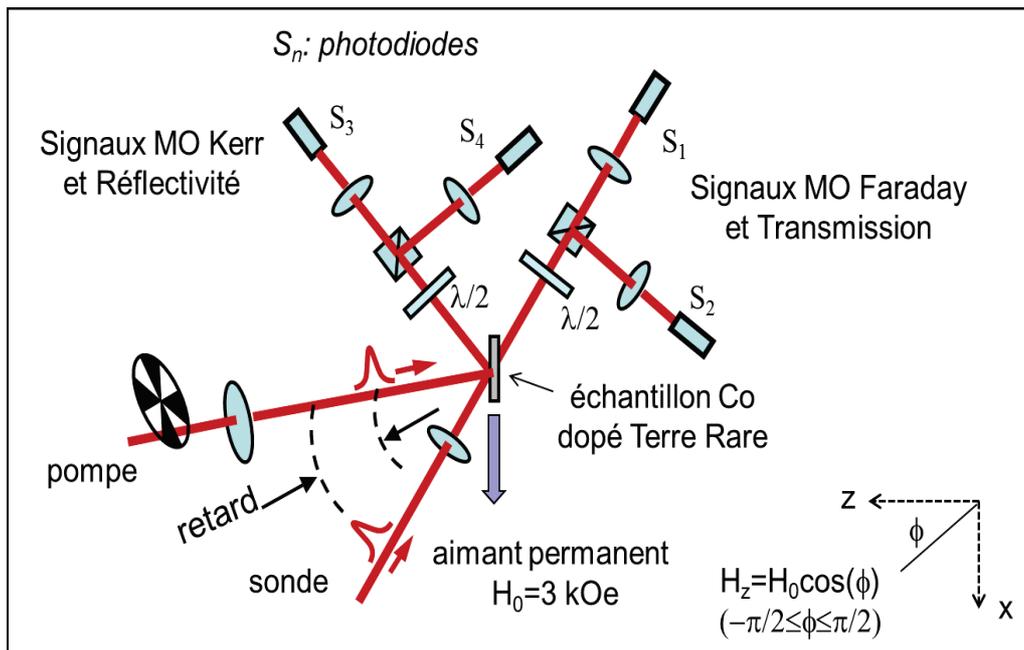


Figure 4.7 : Montage Kerr et Faraday magnéto-optique à 800 nm.

4.2.2. Résultats de dynamique d'aimantation : étude de la désaimantation et de la précession.

Dans ce paragraphe nous donnons les résultats expérimentaux correspondant à la désaimantation et à la précession d'aimantation dans différents films de cobalt dopés avec les terres rares. Le but est d'obtenir une variation systématique des quantités τ_M (temps de désaimantation) et η (temps d'amortissement de la précession). Ces deux quantités pourront ainsi directement être comparées entre elles et permettront de confronter le modèle de « spin-flips » pour lequel la relation (4.7) devrait s'appliquer. Rappelons que ce modèle prédit que τ_{sl} (temps de renversement des spins) et α (amortissement de Gilbert) sont inversement proportionnels. Notons que, nos mesures ayant lieu directement dans l'espace temporel, nous obtenons directement l'amortissement en temps η plutôt que α qui correspond à la largeur spectrale de la résonance ferromagnétique. L'avantage est que nous comparons ainsi directement deux grandeurs temporelles. La relation entre ces deux quantités est donnée par [103] :

$$\alpha = 2/\eta \cdot \gamma \cdot M_s \tag{4.8}$$

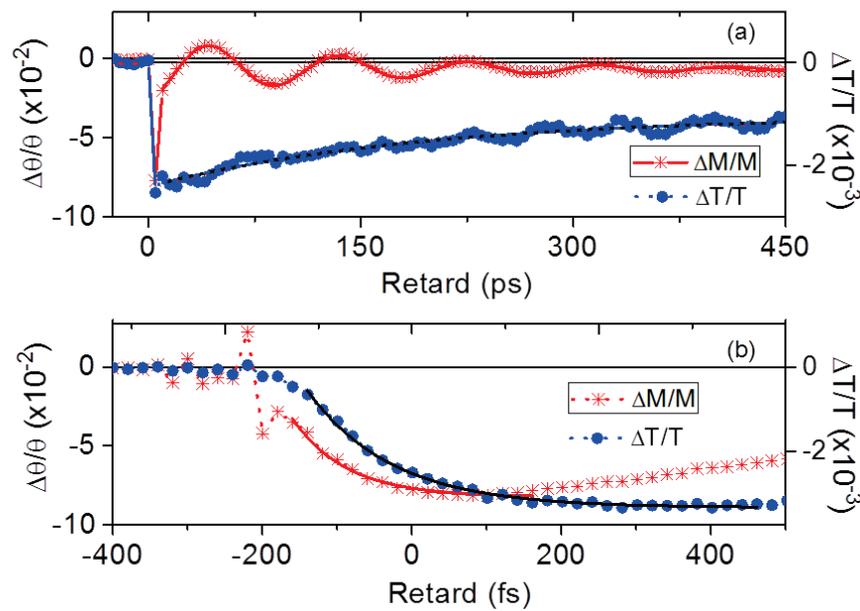


Figure 4.8 : Signaux Kerr Magnéto-Optiques $\Delta\theta/\theta$ et de transmission différentielle $\Delta T/T$. (a) temps longs correspondant au mouvement de précession et à la relaxation de chaleur. (b) temps courts correspondant à la désaimantation et à l'élévation de température électronique.

La figure 4.8 montre les signaux dynamiques de rotation Kerr magnéto-optique $\Delta\theta/\theta$ ainsi que la transmission $\Delta T/T$, pour un échantillon de cobalt avec 10% de terbium ($\text{Co}_{89.5}\text{Tb}_{10.5}$). Les mesures sont faites avec deux pas temporels différents pour obtenir les variations aux temps longs (450 ps) dans la figure 4.8(a) et courts (500 fs) dans la figure 4.8(b). Aux temps longs, les oscillations sont caractéristiques du mouvement de précession de l'aimantation autour du champ effectif. Il s'agit en fait de la projection sur l'axe Oz perpendiculaire au plan de l'échantillon (mesure Kerr M.O. polaire). Cette précession de période 92 ps est amortie en $\eta = 149$ ps pour les conditions d'excitation. La précession est induite par le changement initial de température électronique induite par l'impulsion pompe qui à cette grande échelle temporelle est en équilibre avec la température de réseau. La relaxation correspondante de transmission est de 185 ps. En première approximation on peut considérer que la variation $\Delta T/T$ traduit la relaxation de température $\Delta T_e/T_e$ et $\Delta\theta/\theta$ celle de l'aimantation $\Delta M/M$. Notons que la précession s'amortit plus vite que la relaxation de température car la diffusion de chaleur à l'environnement (du film de CoTb au substrat) persiste au-delà d'une nanoseconde (résidu de 45% de signal $\Delta T/T$ à $t = 1$ ns par rapport à sa valeur maximale). Le temps de désaimantation extrait de la figure 4.8(b) est de $\tau_M = 71 \pm 5$ fs. Notons aux temps très courts $t \approx 0$ un résidu d'oscillation correspondant aux interférences entre pompe et sonde qui ne sont pas complètement éliminées mais qui n'altère pas la mesure de τ_M qui est n'est qu'exponentielle qu'en dehors des effets cohérents comme cela a déjà été discuté dans le cas de films de Ni ou de CoPt_3 [7].

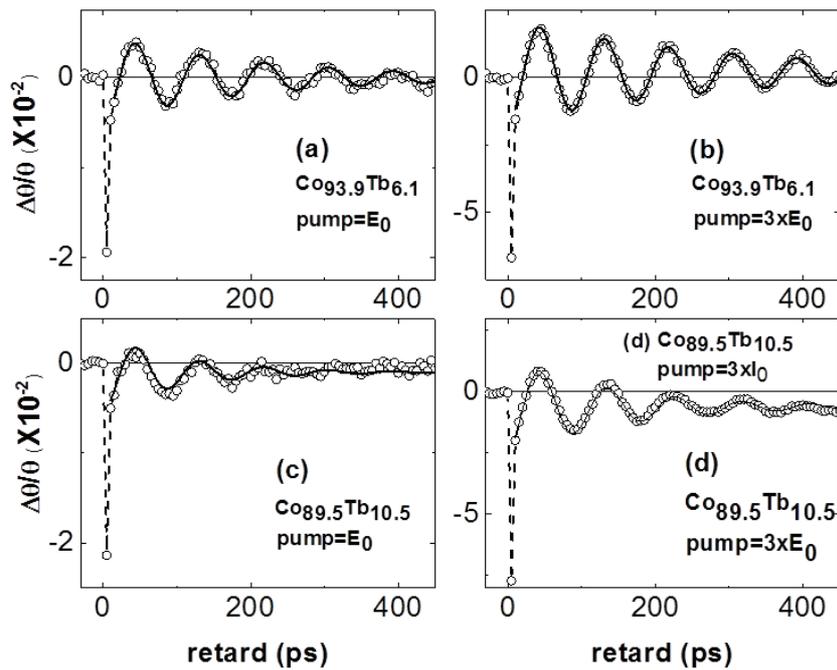


Figure 4.9 : Signaux Kerr Magnéto-Optiques $\Delta\theta/\theta$ pour différentes concentrations de Terbium $x = 6.1$ et $x = 10.5$ et de densité d'excitation laser $E_l = E_0$ et $E_l = 3 \times E_0$.

La figure 4.9 montre l'effet d'une variation du dopage en Tb ($x = 6.1$ fig. 4.9(a) et $x = 10.5$ fig. 4.9(c)) pour une densité d'excitation de pompe $E_l = E_0$ ainsi que l'effet d'une variation de pompe ($E_l = E_0$ fig. 4.9(b) et $E_l = 3 \times E_0$ fig. 4.9(d)) pour un dopage constant $x = 6.1$. Une augmentation du dopage correspond à une diminution du temps d'amortissement $\eta(\text{Co}_{93.9}\text{Tb}_{6.1}) = 295 \text{ ps}$ et $\eta(\text{Co}_{89.5}\text{Tb}_{10.5}) = 149 \text{ ps}$. Ce scénario est conforme à l'idée intuitive que la précession s'amortit plus rapidement lorsque les événements de diffusion magnétique des électrons d itinérants du cobalt avec les électrons f localisés du Tb sont plus fréquents, processus que l'on peut assimiler à une diffusion des magnons avec les impuretés magnétiques. Lorsque la densité d'excitation augmente, le temps de relaxation de la précession augmente et ceci pour les deux concentrations : $\eta(E_0) = 215 \text{ ps}$ et $\eta(3 \times E_0) = 295 \text{ ps}$ pour $x = 6.1$ et $\eta(E_0) = 111 \text{ ps}$ et $\eta(3 \times E_0) = 149 \text{ ps}$ pour $x = 10.5$. Cette variation pourrait être a priori contre intuitive si l'on considère qu'une densité de puissance plus importante correspond à une température plus élevée et donc un amortissement de précession plus rapide. Mais comme nous le verrons au prochain paragraphe cet effet nouveau peut être expliqué avec un modèle de Landau-Lifschitz étendu, prenant en compte une modification du module de l'aimantation. Ce comportement est d'ailleurs tout à fait général et ne dépend pas du type d'impureté comme le montre la figure 4.10 dans le cas d'un dopage avec 1% de dysprosium $\text{Co}_{99}\text{Dy}_1$ où nous avons représenté non pas η mais

l'amortissement de Gilbert α d'après relation (4.8) avec $\gamma = 2.4 \times 10^5 A^{-1} s^{-1} m$ et $M_s = 0.9 \times 10^6 Am^{-1}$ en fonction de E_l .

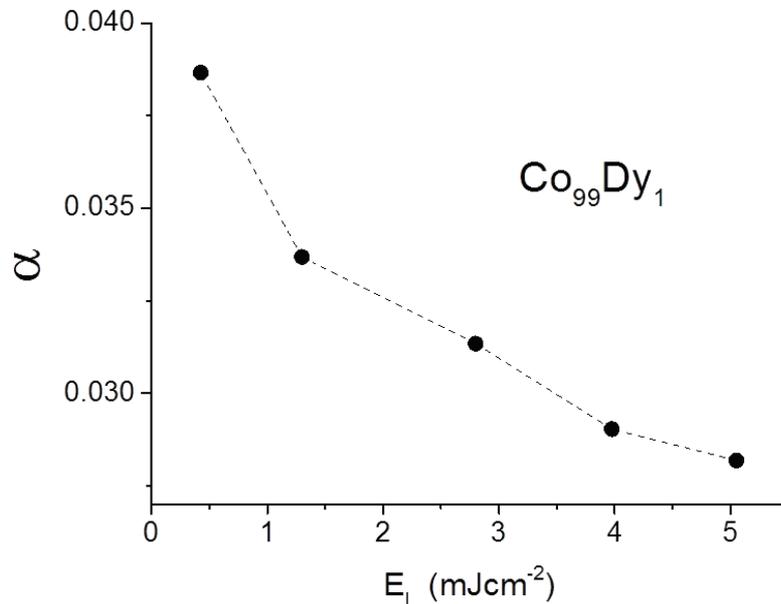


Figure 4.10 : Amortissement de Gilbert en fonction de la densité de puissance des impulsions pompe dans le cas du cobalt dopé avec 1% de dysprosium $x = 1$.

A ce stade nous pouvons déjà donner une indication forte sur le fait que le modèle de « spin-flip » n'est pas adéquat pour des températures élevées. En effet une augmentation de la densité d'énergie des impulsions pompe a pour effet d'augmenter la température T_e des électrons, en équilibre avec celle du réseau. Or dans le modèle « spin-flip » il est prédit que l'amortissement α doit augmenter avec la température [104]. Le mécanisme associé correspond au fait que la probabilité de spin-flip est proportionnelle à un paramètre qui caractérise le mélange des états de spins. Il a été suggéré que les ondes de spins activées thermiquement induisent un couplage entre spins « up » et « down » et par conséquent favorisant l'amortissement de la précession. Les résultats qui précèdent sont clairement en contradiction avec cette prédiction puisque α diminue lorsque E_l augmente ainsi que la température moyenne d'équilibre du système ferromagnétique.

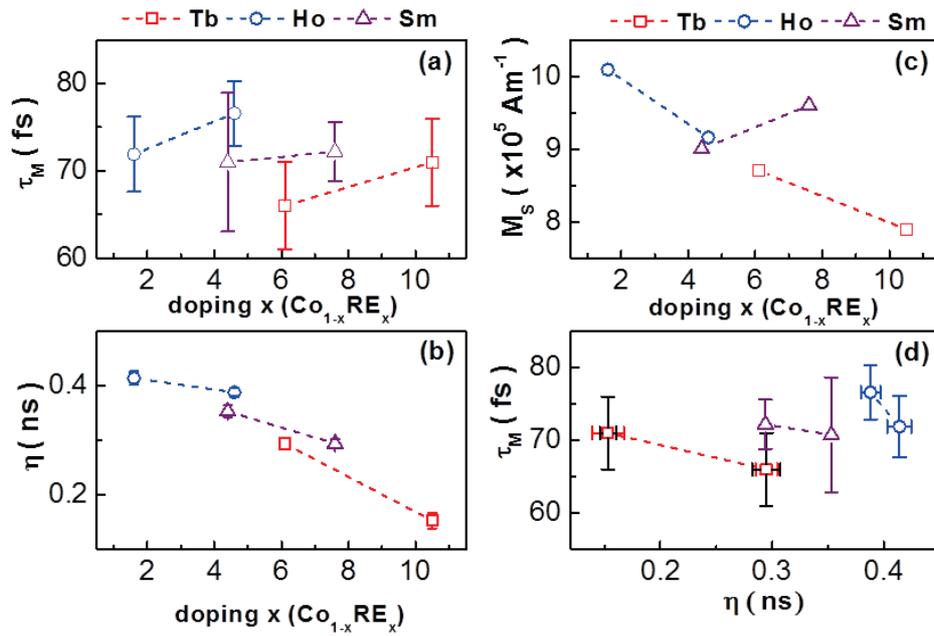


Figure 4.11 : Variations des temps de désaimantation τ_M (a) , de l'amortissement de la précession η (b) et de l'aimantation à saturation M_s (c) en fonction du dopage x des éléments de terre rares Tb, Ho, Sm. Comparaison entre les deux temps caractéristiques τ_M et η (d).

La figure 4.11 est un résumé de plusieurs mesures effectuées sur différents échantillons dopés soit avec du terbium, de l'holmium ou du samarium. D'une façon générale le temps de désaimantation τ_M ne dépend pas beaucoup du dopage x ni du type de terre rare avec une valeur moyenne de $\sim 70 \text{ fs}$. Par contre η varie entre 150 et 420 ps. Cela montre que la relation (1.7) obtenue dans le cas du modèle « spin-flip » n'est pas conforme à nos résultats.

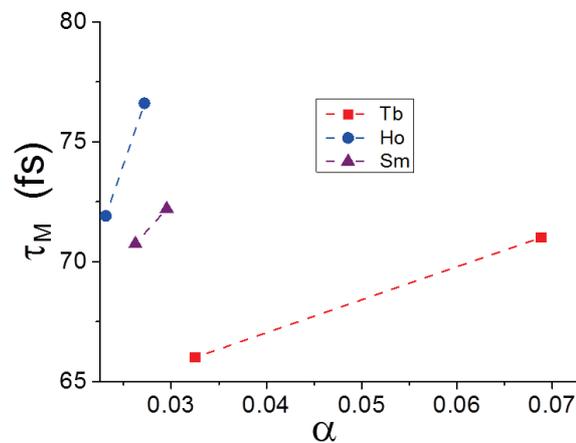


Figure 4.12 : Variation de τ_M en fonction de α en utilisant la relation (4.8) pour différentes concentration de Tb, Ho et Sm.

Comme le modèle « spin-flip » équation (1.7) fait intervenir α et non pas η , nous pouvons utiliser la relation (4.8) qui fait aussi intervenir l'aimantation à saturation M_s , dont la variation en fonction du dopage est donnée par la figure 4.11c. Comme le montre la figure 4.12 la loi $\tau_M(\alpha)$ n'est pas du tout compatible avec l'équation (1.7) et il ne semble pas y avoir de corrélation entre ces deux quantités dynamiques, au moins dans le régime d'intensité laser exploré, qui d'un point de vue de la température électronique en équilibre avec le réseau (après 5 ps) est de l'ordre de 330 à 600 K.

Nous pouvons conclure en fin de ce paragraphe 2 que le mécanisme de « spin-flip » du type Elliot-Yafet ne permet pas d'expliquer la désaimantation en termes de diffusion des spins avec les phonons. Bien entendu, une diffusion d'un spin avec un phonon n'est pas identique à celle qui se produit avec une impureté de terre rare. On peut argumenter que le couplage des électrons itinérants d du cobalt peuvent se coupler de manière ferro ou antiferromagnétique. Cependant cela n'explique toujours pas l'inadéquation du modèle « spin-flip » car dans le cas de la figure 4.12 nous avons justement choisi les terres rares pour explorer cette situation, l'interaction Co-Sm étant ferromagnétique alors que Co-Tb et Co-Ho est une interaction antiferromagnétique. Par ailleurs nos mesures en fonction de l'intensité de pompe montrent également que l'amortissement de précession diminue en fonction de la densité d'excitation et donc de la température ce qui n'est pas conforme avec les prédictions d'un couplage hybride entre « spins up » et « spins down » lorsque la température augmente. Au contraire nous observons que l'amortissement est moindre à « température plus élevée ». Comme nous allons le voir dans le prochain paragraphe cela est dû à une diminution du module de l'aimantation lorsque la température des spins augmente.

4.2.3. Modèle de précession avec non conservation du module d'aimantation, en fonction de la densité d'excitation : explication du comportement de η en fonction de la « température » des spins.

Revenons au modèle de Landau-Lifschitz-Gilbert (LLG) décrit au chapitre 1. Le modèle à trois températures (équations (1.8) à (1.10) du chap. 1) s'est avéré être efficace pour expliquer phénoménologiquement la désaimantation induite par laser. Cela suppose bien entendu de prendre en compte les autres variables du système magnétique. En premier lieu bien sûr le module de l'aimantation qui n'est pas conservé pendant le processus de désaimantation. L'anisotropie du matériau est aussi une quantité dépendante de la température. Non seulement l'anisotropie magnéto-cristalline mais aussi le champ démagnétisant (l'anisotropie de forme) qui dépend de l'aimantation elle-même. Cela a déjà été brièvement évoqué au paragraphe 1.2.3, équations (1.23-1.25). Dans ce paragraphe nous voulons examiner en détail les effets de température sur la précession d'aimantation mais aussi revenir sur la désaimantation.

On peut prendre en compte un modèle de température à 3 bains et y ajouter une population d'électrons non-thermalisée. Le système à résoudre est alors :

$$C_i(T_i) = \frac{\partial T_i(\vec{r}, t)}{\partial t} = \sum_{j \neq i} G_{ij} (T_j(t) - T_i(t)) + \frac{\delta_{ij} N(t)}{\alpha_N} - \vec{\nabla} k_i(\vec{r}, t) \vec{\nabla} T_i(\vec{r}, t)$$

avec $i, j = e, s, l$ et $\frac{dN}{dt} = -\frac{N(t)}{\alpha_N} + P_{laser}(t)$ (4.9)

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{M} \times \vec{H}_{eff} (T_s(t), T_e(t), \vec{M}(t)) - \left(\frac{d\vec{M}}{dt}\right)_{relax} \quad (4.10)$$

où les variables ont la même signification que celles du chapitre 1, k_i est la « constante » de diffusion thermique et $N(t)$ la population électronique hors équilibre qui est supposée relaxer avec une constante de temps α_N . Soulignons au passage qu'il est tentant de passer dans un référentiel de coordonnées polaires comme c'est habituellement le cas pour résoudre l'équation LLG, en ne gardant que les variables angulaires de la direction d'aimantation (θ, Φ) comme c'est souvent le cas en micromagnétisme. Mais ici le module d'aimantation n'est pas conservé et il faut donc s'assurer de la consistance des équations (4.9) et (4.10) associées à l'équation suivante :

$$|\vec{M}(T_s)| = M_s \sqrt{1 - \left(\frac{T_s}{T_c}\right)^2} ; T_s \leq T_c (= 0 \text{ si non}) \quad (1.11)$$

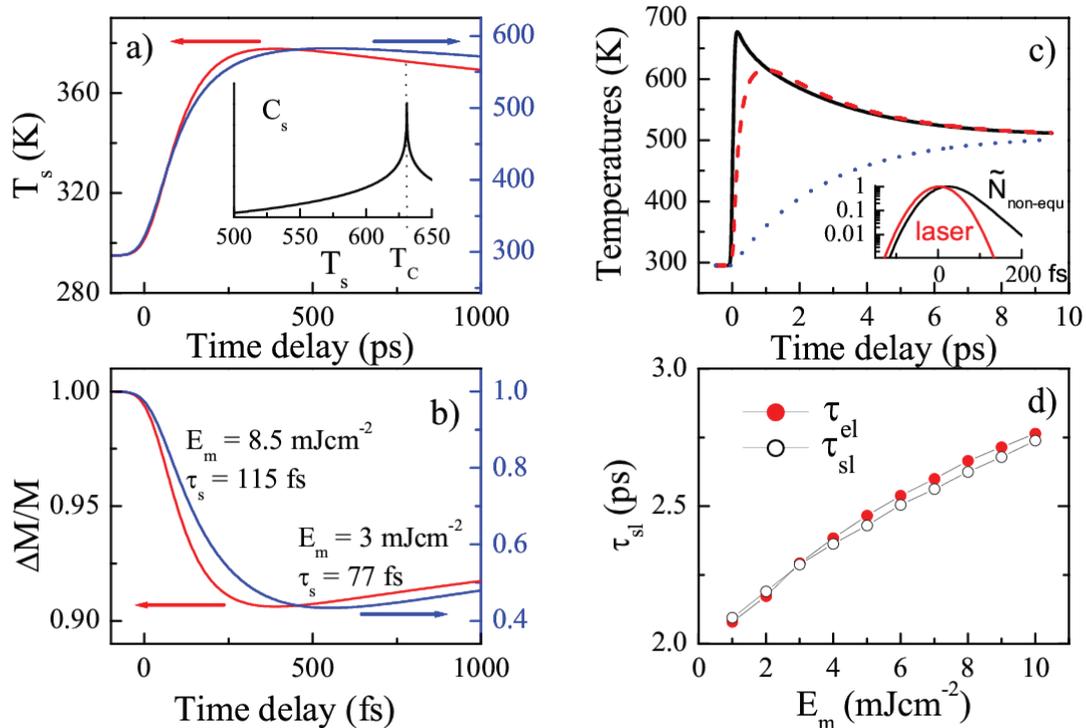


Figure 4.13 : Dynamique de désaimantation du Nickel et relaxation dans le cas d'un modèle à 3 bains avec population électronique non-thermalisée (a) température des spins aux temps court pour deux densités d'énergie de pompe $E_l = 3$ et 8.3 mJcm^{-2} , encart : dépendance en température de la chaleur spécifique des spins. (b) Variation du module de l'aimantation. (c) Variation temporelle de T_e, T_s, T_l , encart : populations non thermalisées comparées à l'impulsion laser. (d) Temps de relaxation au réseau des spins τ_{sl} et des charges τ_{el} .

La figure 4.13 représente la dynamique de l'aimantation dans le cas du Nickel en utilisant ce modèle avec populations non-thermalisées. La figure 4.13(a) montre l'augmentation de température de spins pour deux densités de pompe avec en encart la chaleur spécifique de spin qui diverge à T_c . La figure 4.13(b) montre la désaimantation correspondante et 4.13(c) l'évolution des trois températures T_e en noir, T_s en tirets rouges et T_l en pointillés bleus. La figure 4.13(d) représente la variation des temps de relaxation au réseau et des spins. Rappelons qu'ici τ_{sl} correspond au refroidissement des spins qui se réalignent sous champ externe. Il s'agit d'une ré-aimantation contrairement au temps τ_M qui correspond à la désaimantation et qui dans le modèle « spin-flip » s'appelle aussi τ_{sl} . Nous attirons l'attention sur le fait que la relaxation de l'aimantation n'est pas purement exponentielle surtout pendant la durée de l'impulsion comme on le voit sur la figure 4.13(a) où $\Delta M/M$ est représenté en échelle logarithmique aux temps courts. Pour obtenir τ_M il faut prendre en compte le fait que l'on a une fonction causale du temps. Une façon rapide d'évaluer la variation de τ_M en fonction de la densité d'excitation pompe E_l est de prendre la valeur temporelle $\tau(\Delta M/M)_{max}$ pour laquelle se produit le maximum de désaimantation. La

figure 4.14(b) compare τ_M et cette valeur temporelle. Même si les valeurs absolues sont différentes, elles ont la même variation.

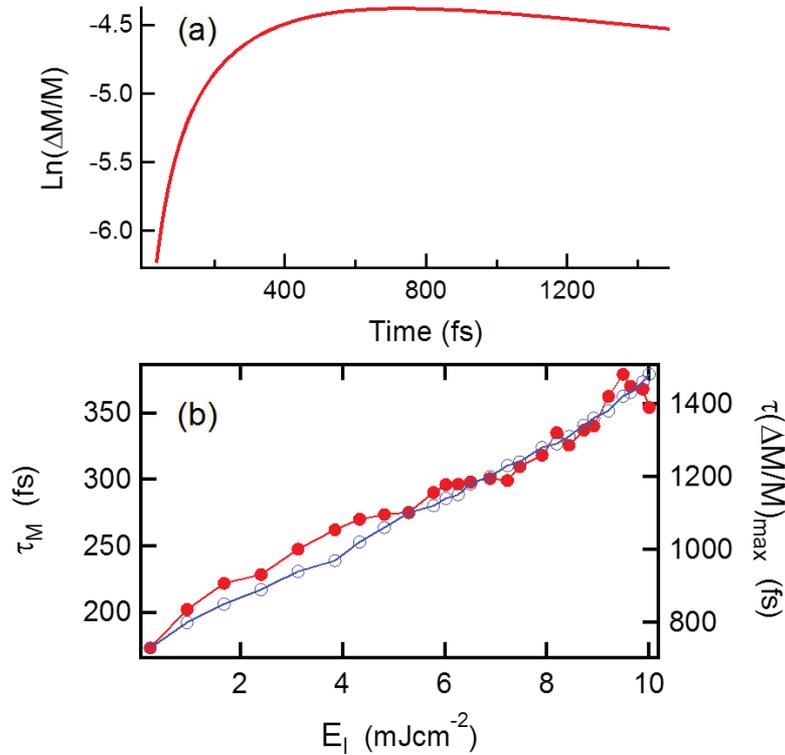


Figure 4.14 : Obtention du temps de désaimantation τ_M . (a) $\Delta M/M$ aux temps courts pendant la désaimantation. (b) comparaison entre τ_M et $\tau(\Delta M/M)_{\text{max}}$.

Examinons maintenant le comportement de la précession d'aimantation. La figure 4.15 montre la composante polaire de l'aimantation à une échelle de temps longue. Le signal au voisinage de $t = 0$ correspond à la désaimantation puis ré-aimantation partielle due au champ externe appliqué et les oscillations correspondent à la précession et son amortissement. Les deux quantités intéressantes sont la période de précession T_{prec} ainsi que l'amortissement η que l'on peut aisément extraire par transformée de Fourier et ajustement correspondant avec une Lorentzienne comme indiqué dans l'insert de la figure 4.15.

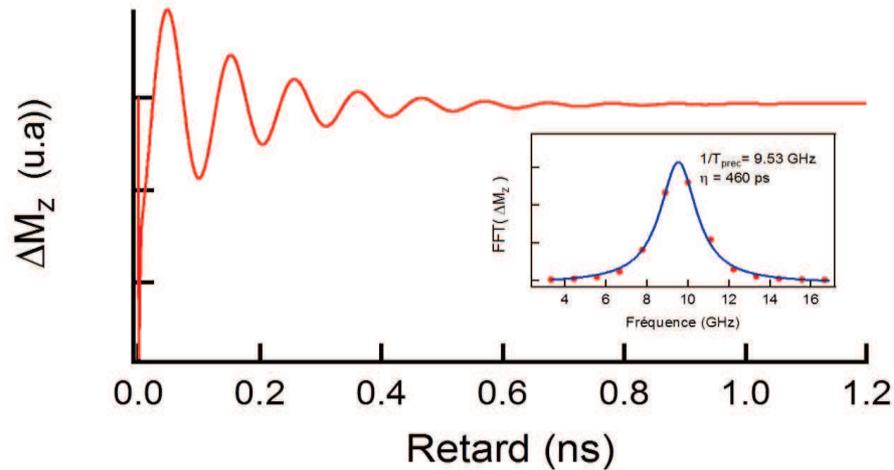


Figure 4.15 : Précession d’aimantation dans un film de Nickel. Encart : obtention de la fréquence de résonance ferromagnétique induite optiquement et de l’amortissement de la précession η .

La figure 4.16 montre la variation de T_{prec} et de η en fonction de la puissance laser. Nous obtenons bien une augmentation de la période et une diminution de l’amortissement (augmentation de η). Une étude détaillée montre que les oscillations de η sont dues à une double contribution : d’une part la chaleur spécifique diverge à T_c et d’autre part le module de l’aimantation diminue lorsque l’on s’approche de T_c . Notons que ces oscillations sont de relativement faible amplitude et difficiles à mettre en évidence expérimentalement compte tenu du rapport signal/bruit. Néanmoins ce modèle d’amortissement montre clairement l’effet que nous appelons « amortissement modifié par la diminution du torque » et qui va à l’encontre du modèle « spin-flip ».

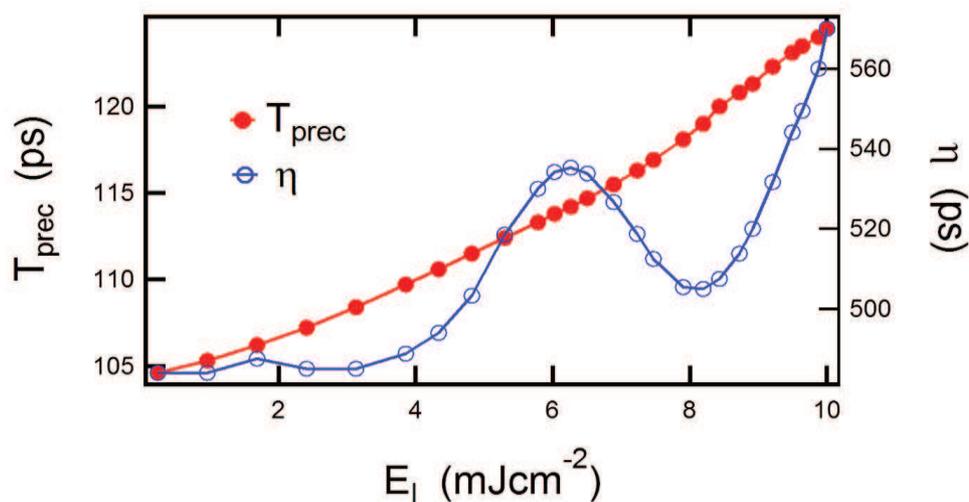


Figure 4.16 : Précession d’aimantation en fonction de la densité d’énergie laser E_l : période de précession T_{prec} (cercles pleins) et amortissement η (cercles vides).

4.3. Etude des films de cobalt au seuil M : expériences Kerr magnéto-optiques à 60 eV.

- Etat d'avancement des expériences dans le domaine spectral autour de 60 eV avec la génération d'harmoniques élevés.

A ce stade de notre travail de thèse, nous avons pu développer la source de rayons x et nous sommes en mesure d'étudier la dynamique d'aimantation au seuil du cobalt des échantillons dopés en mesurant la thermalisation des spins ainsi que la précession d'aimantation avec une signature clairement due au cobalt. Les expériences, difficiles à réalisées compte tenu des faibles signaux et du rapport signal à bruit sont en cours. Voici leur état d'avancement.

La configuration expérimentale est illustrée sur la figure 4.17. La sortie de la chaîne laser est divisée en deux parties : une ligne sonde XUV obtenue par génération d'harmoniques d'ordre élevé dans un gaz rare et une ligne pompe qui présente 10 % du faisceau fondamental et passant par une ligne à retard. Ensuite, les deux faisceaux pompe et sonde se recouvrent à l'endroit de l'échantillon et sont focalisés sur la fente du spectromètre. L'angle d'incidence est d'environ 45° par rapport au plan de l'échantillon. Un deuxième filtre Al (200 nm) est installé devant la fente du Spectro afin de bloquer le faisceau infrarouge. La polarisation des deux faisceaux est *P* (dans le plan d'incidence).

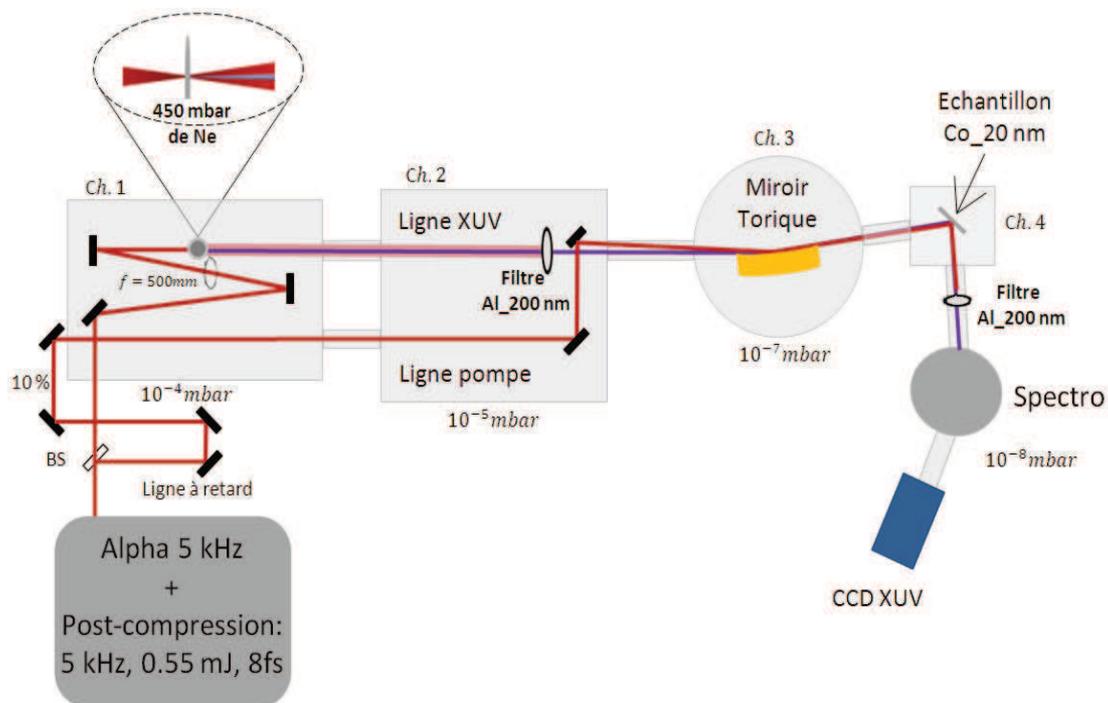


Figure 4.17 : Schéma de l'expérience pompe (800 nm) sonde (RX).

Une fois l'échantillon mis en place, nous avons commencé par optimiser le signal harmonique, généré dans 450 mbar de néon et avec un éclairage laser estimé à $\sim 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

La figure 4.18 montre le spectre harmonique réfléchi par un échantillon de cobalt de 20 nm d'épaisseur déposé sur du SiO₂. On observe une chute du spectre HHG à partir de 30 eV jusqu'à une valeur minimale à 56.7 eV. Cette énergie correspond au seuil d'absorption M du Co. Elle correspond à l'énergie nécessaire pour exciter un électron 3p à un niveau 3d. Ensuite le signal ré-augmente jusqu'à $\sim 63 \text{ eV}$. Cette évolution est confirmée par la figure en insert, obtenu sur le site CXRO [87], qui correspond à la réflectivité de Co dans la gamme 30 – 100 eV, pour une épaisseur de 20 nm déposé sur du SiO₂, 45° comme angle d'incidence et pour une polarisation *P*.

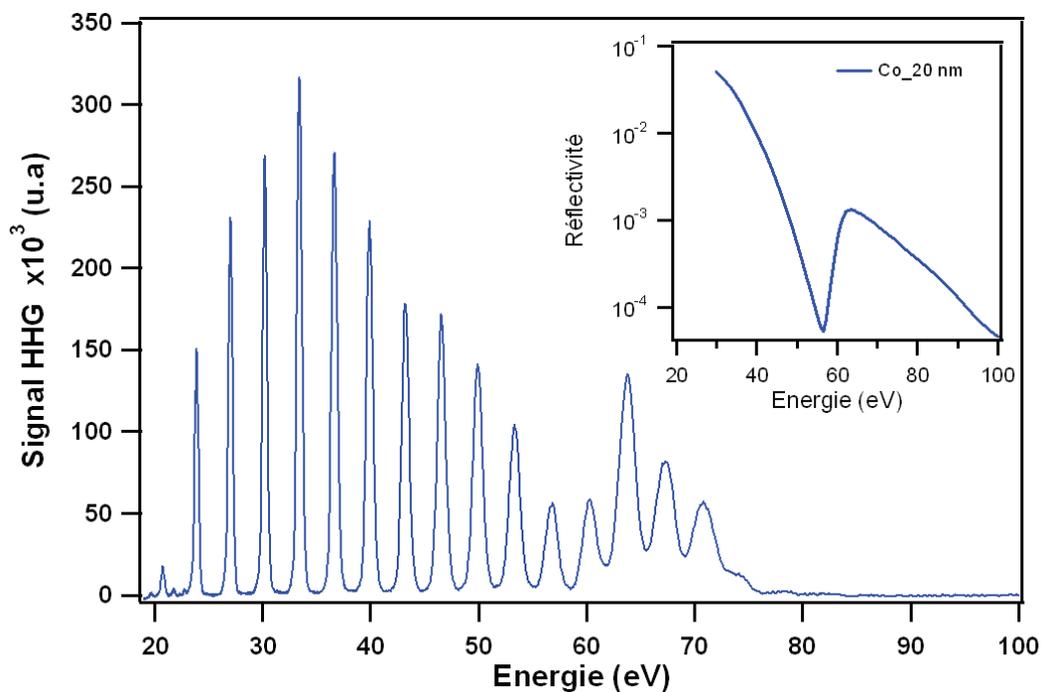


Figure 4.18 : Spectre harmonique obtenu dans le néon ($p = 450 \text{ mbar}$, $I \approx 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$), réfléchi par un échantillon de Cobalt (20 nm) et avec un angle d'incidence $i = 45^\circ$. La figure en insert présente la réflectivité de 20 nm de cobalt déposé sur un substrat de SiO₂.

Dans la suite du travail, nous allons mesurer dans un premier temps la variation de réflectivité en fonction du retard pompe sonde avec et sans champ magnétique (expériences en cours).

Conclusions et perspectives

Ce travail de thèse porte sur le développement d'une source XUV (10-100 eV) permettant l'étude de la dynamique des charges et des spins des métaux de transition tels que le cobalt, le nickel et le fer, des métaux de transition dopés terres rares ou des alliages de métaux de transition avec des terres rares. L'objectif principal est de pouvoir réaliser des expériences de dynamique d'aimantation en configuration magnéto-optiques Kerr transverse dans le domaine spectral XUV (sonde XUV (10-100 eV), pompe 800 nm) afin de vérifier l'inadéquation de la relation $\tau_{sl} \propto 1/\alpha$ donné par le modèle de « spins-flips » du type Elliot-Yafet. Dans un premier lieu, nous avons montré l'inadéquation de ce dernier par des expériences pompe-sonde dans le proche infrarouge sur des échantillons de cobalts dopés terres rares. L'importance de réaliser cette expérience dans le domaine spectral XUV est de sonder d'une manière sélective la dynamique associée à l'élément chimique (dont le seuil d'absorption est couvert par la gamme spectrale de la source). Cela permet, par exemple de bien vérifier l'effet du dopage.

Pour confirmer les résultats obtenus dans le proche infrarouge, nous avons développé une source XUV. Cette source repose sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans une cible de gaz rare à partir d'une source laser basée sur la technique d'amplification à dérive de fréquence et suivie d'un système de post-compression à quelques cycles optiques dans une fibre creuse remplie de gaz rare.

Tout d'abord, nous avons commencé par travailler sur la source laser qui constitue l'outil de base des expériences envisagées. En effet, nous avons adapté une chaîne laser amplifiée fonctionnant à 5 kHz. Cette dernière présentait des problèmes de stabilité (puissance, mode spatial) ce qui n'est pas favorable pour des expériences nécessitant une très grande sensibilité telle que la HHG. Après une période assez longue de mise au point sur les différents étages d'amplification et surtout sur l'amplificateur multi-passage, nous avons réussi à obtenir des impulsions avec une stabilité assez bonne ($\leq 1.3\%$), de 30 fs de durée, avec une énergie optimale ~ 3 mJ par impulsion et un bon mode spatial, ce qui est primordial pour la partie de post-compression (couplage avec la fibre). Nous avons ensuite travaillé sur la post-compression des impulsions à quelques cycles optiques, en utilisant la technique d'élargissement spectral dans une fibre creuse remplie de gaz rare suivie d'un système de compression permettant la compensation de la dérive de fréquence. Le choix de la compression à quelques cycles optiques était à l'origine de pouvoir à terme produire des impulsions attosecondes uniques. Les caractéristiques de la source après la fibre et la recompression sont les suivantes : 0.55 mJ et ~ 8 fs.

En deuxième lieu, nous avons mis en œuvre une ligne harmonique afin de générer des impulsions dont la gamme d'énergie s'étend jusqu'à 100 eV, incluant les seuils d'absorption M des métaux de transitions. Nous avons commencé par l'optimisation du signal harmonique dans l'argon puisqu'il présente une conversion de deux ordres de

grandeurs meilleures que celle du néon. Avec l'argon, le spectre obtenu s'étend de l'harmonique 17 à 37 correspondant à une gamme d'énergie entre 26.5 et 58.2 eV tandis qu'avec le néon nous avons obtenu un spectre allant de l'harmonique 23 à 47 correspondant à (35-72 eV), le spectre est limité à l'harmonique 47 car on utilise un filtre Al dont la coupure correspond à l'harmonique maximale observé. Dans la suite, nous avons mis en place une expérience pompe (800nm) sonde (XUV) en configuration MOKE transverse pour étudier la dynamique des charges et des spins dans des films de cobalt dopée terres rares (Tb). Ces expériences sont en cours.

En ce qui concerne les expériences menées dans le domaine spectral proche infrarouge, nous avons effectué des expériences pompe-sonde en configuration magnéto-optique Kerr sur des échantillons de cobalt dopés terres rares. Les résultats expérimentaux permettant de déterminer la désaimantation et la précession de l'aimantation sont présentés. L'étude de la variation du temps de désaimantation τ_M et du temps d'amortissement η pour différentes concentrations de dopages et différentes densités d'excitations ont permis de montrer l'inadéquation du modèle « spins-flips » du type Elliott-Yafet. Nous avons montré aussi à partir d'un modèle de précession avec non conservation du module d'aimantation, en fonction de la densité d'excitation, que le modèle « spins-flips » du type Elliott-Yafet ne permet pas d'expliquer la désaimantation en termes de diffusions des spins avec les phonons.

Bibliographie

- [1] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, et J.-Y. Bigot, « Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, n° 22, p. 4250-4253, mai 1996.
- [2] L. Guidoni, E. Beaurepaire, et J.-Y. Bigot, « Magneto-optics in the Ultrafast Regime: Thermalization of Spin Populations in Ferromagnetic Films », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 89, n° 1, p. 017401, juin 2002.
- [3] J.-Y. Bigot, « Femtosecond magneto-optical processes in metals », *Comptes Rendus Académie Sci. - Ser. IV - Phys.*, vol. 2, n° 10, p. 1483-1504, déc. 2001.
- [4] J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, et K. H. Bennemann, « Nonequilibrium Magnetization Dynamics of Nickel », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 78, n° 25, p. 4861-4864, juin 1997.
- [5] A. Scholl, L. Baumgarten, R. Jacquemin, et W. Eberhardt, « Ultrafast Spin Dynamics of Ferromagnetic Thin Films Observed by fs Spin-Resolved Two-Photon Photoemission », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 79, n° 25, p. 5146-5149, déc. 1997.
- [6] G. P. Zhang et W. Hübner, « Laser-Induced Ultrafast Demagnetization in Ferromagnetic Metals », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, n° 14, p. 3025-3028, oct. 2000.
- [7] J.-Y. Bigot, M. Vomir, et E. Beaurepaire, « Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses », *Nat. Phys.*, vol. 5, n° 7, p. 515-520, juill. 2009.
- [8] M. Cinchetti, M. Sánchez Albaneda, D. Hoffmann, T. Roth, J.-P. Wüstenberg, M. Krauß, O. Andreyev, H. C. Schneider, M. Bauer, et M. Aeschlimann, « Spin-Flip Processes and Ultrafast Magnetization Dynamics in Co: Unifying the Microscopic and Macroscopic View of Femtosecond Magnetism », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 97, n° 17, p. 177201, oct. 2006.
- [9] C. Boeglin, E. Beaurepaire, V. Halté, V. López-Flores, C. Stamm, N. Pontius, H. A. Dürr, et J.-Y. Bigot, « Distinguishing the ultrafast dynamics of spin and orbital moments in solids », *Nature*, vol. 465, n° 7297, p. 458-461, mai 2010.
- [10] D. Strickland et G. Mourou, « Compression of amplified chirped optical pulses », *Opt. Commun.*, vol. 55, n° 6, p. 447-449, oct. 1985.
- [11] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, et C. K. Rhodes, « Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases », *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 4, n° 4, p. 595-601, avr. 1987.
- [12] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, et C. Manus, « Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases », *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 21, n° 3, p. L31, févr. 1988.
- [13] G. L. Eesley, « Observation of Nonequilibrium Electron Heating in Copper », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 51, n° 23, p. 2140-2143, déc. 1983.
- [14] R. W. Schoenlein, W. Z. Lin, J. G. Fujimoto, et G. L. Eesley, « Femtosecond studies of nonequilibrium electronic processes in metals », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 58, n° 16, p. 1680-1683, avr. 1987.
- [15] R. H. M. Groeneveld, R. Sprik, et A. Lagendijk, « Effect of a nonthermal electron distribution on the electron-phonon energy relaxation process in noble metals », *Phys. Rev. B*, vol. 45, n° 9, p. 5079-5082, mars 1992.
- [16] J. Hohlfeld, J. G. Müller, S.-S. Wellershoff, et E. Matthias, « Time-resolved thermorefectivity of thin gold films and its dependence on film thickness », *Appl. Phys. B*, vol. 64, n° 3, p. 387-390, mars 1997.
- [17] J.-Y. Bigot, V. Halté, J.-C. Merle, et A. Daunois, « Electron dynamics in metallic nanoparticles », *Chem. Phys.*, vol. 251, n° 1-3, p. 181-203, janv. 2000.
- [18] J.-Y. Bigot, J.-Y. Merle, O. Cregut, et A. Daunois, « Electron Dynamics in Copper Metallic Nanoparticles Probed with Femtosecond Optical Pulses », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 75, n° 25, p. 4702-4705, déc. 1995.

- [19] C. Voisin, D. Christofilos, N. Del Fatti, F. Vallée, B. Prével, E. Cottancin, J. Lermé, M. Pellarin, et M. Broyer, « Size-Dependent Electron-Electron Interactions in Metal Nanoparticles », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, n° 10, p. 2200-2203, sept. 2000.
- [20] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, et T. L. Perelman, « Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses », *Zh Eksp Teor Fiz*, vol. 66, n° 776, p. 375–7, 1974.
- [21] P. B. Allen, « Theory of thermal relaxation of electrons in metals », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 59, n° 13, p. 1460-1463, sept. 1987.
- [22] C. Suárez, W. E. Bron, et T. Juhasz, « Dynamics and Transport of Electronic Carriers in Thin Gold Films », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 75, n° 24, p. 4536-4539, déc. 1995.
- [23] S. D. Brorson, A. Kazeroonian, J. S. Moodera, D. W. Face, T. K. Cheng, E. P. Ippen, M. S. Dresselhaus, et G. Dresselhaus, « Femtosecond room-temperature measurement of the electron-phonon coupling constant γ in metallic superconductors », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 64, n° 18, p. 2172-2175, avr. 1990.
- [24] J.-Y. Bigot, M. Vomir, L. H. F. Andrade, et E. Beaurepaire, « Ultrafast magnetization dynamics in ferromagnetic cobalt: The role of the anisotropy », *Chem. Phys.*, vol. 318, n° 1-2, p. 137-146, nov. 2005.
- [25] W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom, et J. Bokor, « Direct measurement of nonequilibrium electron-energy distributions in subpicosecond laser-heated gold films », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 68, n° 18, p. 2834-2837, mai 1992.
- [26] C.-K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli, E. P. Ippen, et J. G. Fujimoto, « Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold », *Phys. Rev. B*, vol. 50, n° 20, p. 15337-15348, nov. 1994.
- [27] H. Vonesch et J.-Y. Bigot, « Ultrafast spin-photon interaction investigated with coherent magneto-optics », *Phys. Rev. B*, vol. 85, n° 18, p. 180407, mai 2012.
- [28] Y. Hirschberger et P.-A. Hervieux, « Classical modeling of ultrafast coherent magneto-optical experiments », *Phys. Rev. B*, vol. 88, n° 13, p. 134413, oct. 2013.
- [29] A. Kirilyuk, A. V. Kimel, et T. Rasing, « Ultrafast optical manipulation of magnetic order », *Rev. Mod. Phys.*, vol. 82, n° 3, p. 2731-2784, sept. 2010.
- [30] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin, *Physique des solides*. EDP Sciences, 2012.
- [31] C. Kittel et E. Kolb, *Physique de l'état solide*. Dunod, 1998.
- [32] L. D. Landau et E. Lifshitz, « On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies », *Phys Z Sowjetunion*, vol. 8, n° 153, p. 101–114, 1935.
- [33] T. L. Gilbert, « Range of excited electron in metals », *Phys Rev*, vol. 100, p. 1243, 1955.
- [34] F. Bloch, « Nuclear Induction », *Phys. Rev.*, vol. 70, n° 7-8, p. 460-474, oct. 1946.
- [35] « The Physical Principles of Magnetism by Allan H. Morrish: John Wiley & Sons, Inc., New York / London / Sydney Hard Cover, 1st Edition - Alexandria Books ». [En ligne]. Disponible sur: <http://www.abebooks.co.uk/Physical-Principles-Magnetism-Allan-H-Morrish/991321077/bd>.
- [36] E. Beaurepaire, M. Maret, V. Halté, J.-C. Merle, A. Daunois, et J.-Y. Bigot, « Spin dynamics in CoPt3 alloy films: A magnetic phase transition in the femtosecond time scale », *Phys. Rev. B*, vol. 58, n° 18, p. 12134-12137, nov. 1998.
- [37] J. Kessler, *Polarized electrons*, vol. 1. Springer Science & Business Media, 1985.
- [38] E. C. Stoner, *Proc Roy Soc*, vol. A, n° 165, p. 372, 1938.
- [39] J.-W. Kim, M. Vomir, et J.-Y. Bigot, « Ultrafast Magnetoacoustics in Nickel Films », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 109, n° 16, p. 166601, oct. 2012.
- [40] E. Beaurepaire, G. M. Turner, S. M. Harrel, M. C. Beard, J.-Y. Bigot, et C. A. Schmuttenmaer, « Coherent terahertz emission from ferromagnetic films excited by femtosecond laser pulses », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 84, n° 18, p. 3465-3467, mai 2004.
- [41] A. Zagdoud, « Dynamique d'aimantation des système ferromagnétiques induite par des impulsions laser femtoseconde dans le domaine spectral infrarouge », phdthesis, université de Strasbourg, 2011.
- [42] M. Faraday, « Experimental researches in electricity. Nineteenth series », *Philos. Trans. R. Soc. Lond.*, vol. 136, p. 1–20, 1846.

- [43] J. Kerr, « XLIII. On rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet », *Philos. Mag. Ser. 5*, vol. 3, n° 19, p. 321-343, mai 1877.
- [44] S.-C. S. Chun-Yeol You, « Derivation of simplified analytic formulae for magneto-optical Kerr effects », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, n° 9, p. 1315-1317, 1996.
- [45] Z. J. Yang et M. R. Scheinfein, « Combined three-axis surface magneto-optical Kerr effects in the study of surface and ultrathin-film magnetism », *J. Appl. Phys.*, vol. 74, n° 11, p. 6810-6823, déc. 1993.
- [46] R. P. Hunt, « Magneto-Optic Scattering from Thin Solid Films », *J. Appl. Phys.*, vol. 38, n° 4, p. 1652-1671, mars 1967.
- [47] Š. Višňovský, « Magneto-optical ellipsometry », *Czechoslov. J. Phys. B*, vol. 36, n° 5, p. 625-650, mai 1986.
- [48] C. La-O-Vorakiat, M. Siemens, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, S. Mathias, M. Aeschlimann, P. Grychtol, R. Adam, C. M. Schneider, J. M. Shaw, H. Nembach, et T. J. Silva, « Ultrafast Demagnetization Dynamics at the $\{111\}$ Edges of Magnetic Elements Observed Using a Tabletop High-Harmonic Soft X-Ray Source », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 103, n° 25, p. 257402, déc. 2009.
- [49] P. Bruno, Y. Suzuki, et C. Chappert, « Magneto-optical Kerr effect in a paramagnetic overlayer on a ferromagnetic substrate: A spin-polarized quantum size effect », *Phys. Rev. B*, vol. 53, n° 14, p. 9214-9220, avr. 1996.
- [50] P. F. Moulton, « Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al₂O₃ », *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 3, n° 1, p. 125-133, janv. 1986.
- [51] D. E. Spence, P. N. Kean, et W. Sibbett, « 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser », *Opt. Lett.*, vol. 16, n° 1, p. 42-44, janv. 1991.
- [52] T. Fuji, A. Apolonski, et F. Krausz, « Self-stabilization of carrier-envelope offset phase by use of difference-frequency generation », *Opt. Lett.*, vol. 29, n° 6, p. 632-634, mars 2004.
- [53] F. Ple, « Etude du lasage transverse dans les cristaux de Ti: Sa de grandes dimensions. Application à la réalisation de l'amplificateur petawatt haute énergie du laser pilote de la station LASERIX », phdthesis, Université Paris Sud - Paris XI, 2007.
- [54] G. Cheriaux, B. Walker, L. F. Dimauro, P. Rousseau, F. Salin, et J. P. Chambaret, « Aberration-free stretcher design for ultrashort-pulse amplification », *Opt. Lett.*, vol. 21, n° 6, p. 414-416, mars 1996.
- [55] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, et P. Tournois, « Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping », *Opt. Lett.*, vol. 25, n° 8, p. 575-577, avr. 2000.
- [56] L. M. Frantz et J. S. Nodvik, « Theory of Pulse Propagation in a Laser Amplifier », *J. Appl. Phys.*, vol. 34, n° 8, p. 2346-2349, août 1963.
- [57] S. Ferré, « Caractérisation expérimentale et simulation des effets thermiques d'une chaîne laser ultra-intense à base de saphir dopé au titane », phdthesis, Ecole Polytechnique, 2002.
- [58] N. G. Basov, R. V. Ambartsumyan, V. S. Zuev, P. G. Kryukov, et V. S. Letokhov, « Nonlinear amplification of light pulses », *Sov Phys JETP*, vol. 23, n° 1, p. 16-22, 1966.
- [59] A. Trisorio, « Développement d'une source laser femtoseconde de quelques cycles optiques pour la génération d'harmoniques sur cible solide », phdthesis, Ecole Polytechnique X, 2008.
- [60] M. Nisoli, S. D. Silvestri, et O. Svelto, « Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 68, n° 20, p. 2793-2795, mai 1996.
- [61] S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, G. Tempea, C. Spielmann, F. Krausz, et K. Ferencz, « Generation of 0.1-TW 5-fs optical pulses at a 1-kHz repetition rate », *Opt. Lett.*, vol. 22, n° 20, p. 1562-1564, oct. 1997.
- [62] J. Y. P. J. H. Sung, « Generation of 0.2-TW 5.5-fs optical pulses at 1 kHz using a differentially pumped hollow-fiber chirped-mirror compressor », vol. 82, n° 1, p. 5-8, 2005.
- [63] E. a. J. Marcatili et R. A. Schmeltzer, « Hollow Metallic and Dielectric Waveguides for Long Distance Optical Transmission and Lasers », *Bell Syst. Tech. J.*, vol. 43, n° 4, p. 1783-1809, juill. 1964.

- [64] R. K. Nubling et J. A. Harrington, « Launch conditions and mode coupling in hollow-glass waveguides », *Opt. Eng.*, vol. 37, n° 9, p. 2454-2458, 1998.
- [65] H. Nakatsuka, D. Grischkowsky, et A. C. Balant, « Nonlinear Picosecond-Pulse Propagation through Optical Fibers with Positive Group Velocity Dispersion », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 47, n° 13, p. 910-913, sept. 1981.
- [66] R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becker, et C. V. Shank, « Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation », *Opt. Lett.*, vol. 12, n° 7, p. 483-485, juill. 1987.
- [67] J. S. Robinson, C. A. Haworth, H. Teng, R. A. Smith, J. P. Marangos, et J. W. G. Tisch, « The generation of intense, transform-limited laser pulses with tunable duration from 6 to 30 fs in a differentially pumped hollow fibre », *Appl. Phys. B*, vol. 85, n° 4, p. 525-529, août 2006.
- [68] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press, 2007.
- [69] M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania, et F. Krausz, « Compression of high-energy laser pulses below 5 fs », *Opt. Lett.*, vol. 22, n° 8, p. 522-524, avr. 1997.
- [70] R. Szipöcs, C. Spielmann, F. Krausz, et K. Ferencz, « Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers », *Opt. Lett.*, vol. 19, n° 3, p. 201-203, févr. 1994.
- [71] P. B. Corkum, « Plasma perspective on strong field multiphoton ionization », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 71, n° 13, p. 1994-1997, sept. 1993.
- [72] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, et P. B. Corkum, « Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields », *Phys. Rev. A*, vol. 49, n° 3, p. 2117-2132, mars 1994.
- [73] S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S. L. Chin, et J. H. Eberly, « Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 63, n° 20, p. 2212-2215, nov. 1989.
- [74] L. Keldysh, « Ionization in the field of a strong electromagnetic wave », *Sov. Phys. JETP*, vol. 20, p. 1307-1314, mai 1965.
- [75] N. Thiré, « Photodynamiques moléculaires sondées par imagerie de vecteurs vitesses et génération d'harmoniques d'ordre élevé », phdthesis, Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2011.
- [76] k. l. ishikawa, « high-harmonic generation ». [Enligne]. Disponible sur: [https://www.google.fr/search?q=K.+L.+Ishikawa,+%22High-harmonic+generation,%22+in+%22Advances+in+SolidState+Lasers:+Development+and+Applications,%22+ed.+by+M.+Grishin,+INTECH,+439-464+\(2010\).&ie=utf-8&oe=utf8&gws_rd=cr&ei=gkvwVPfRIZLLaPTBgIqH#q=K.+L.+Ishikawa%2C+High-harmonic+generation%2C](https://www.google.fr/search?q=K.+L.+Ishikawa,+%22High-harmonic+generation,%22+in+%22Advances+in+SolidState+Lasers:+Development+and+Applications,%22+ed.+by+M.+Grishin,+INTECH,+439-464+(2010).&ie=utf-8&oe=utf8&gws_rd=cr&ei=gkvwVPfRIZLLaPTBgIqH#q=K.+L.+Ishikawa%2C+High-harmonic+generation%2C).
- [77] C. Winterfeldt, C. Spielmann, et G. Gerber, « Colloquium: Optimal control of high-harmonic generation », *Rev. Mod. Phys.*, vol. 80, n° 1, p. 117-140, janv. 2008.
- [78] P. Salières, B. Carré, L. L. Déroff, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, D. B. Milošević, A. Sanpera, et M. Lewenstein, « Feynman's Path-Integral Approach for Intense-Laser-Atom Interactions », *Science*, vol. 292, n° 5518, p. 902-905, avr. 2001.
- [79] M. Lewenstein, P. Salières, et A. L'Huillier, « Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation », *Phys. Rev. A*, vol. 52, n° 6, p. 4747-4754, déc. 1995.
- [80] P. Antoine, A. L'Huillier, et M. Lewenstein, « Attosecond Pulse Trains Using High-Order Harmonics », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 77, n° 7, p. 1234-1237, août 1996.
- [81] Y. Mairesse, « Génération et caractérisation d'impulsions attosecondes », phdthesis, Université Paris Sud - Paris XI, 2005.
- [82] K. Varjú, Y. Mairesse, B. Carré, M. B. Gaarde, P. Johnsson, S. Kazamias, R. López-Martens, J. Mauritsson, K. J. Schafer, P. Balcou, A. L'Huillier, et P. Salières, « Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses », *J. Mod. Opt.*, vol. 52, n° 2-3, p. 379-394, janv. 2005.
- [83] T. Popmintchev, M.-C. Chen, P. Arpin, M. M. Murnane, et H. C. Kapteyn, « The attosecond nonlinear optics of bright coherent X-ray generation », *Nat. Photonics*, vol. 4, n° 12, p. 822-832, déc. 2010.

- [84] P. Balcou, P. Salières, A. L'Huillier, et M. Lewenstein, « Generalized phase-matching conditions for high harmonics: The role of field-gradient forces », *Phys. Rev. A*, vol. 55, n° 4, p. 3204-3210, avr. 1997.
- [85] P. Salières, A. L'Huillier, et M. Lewenstein, « Coherence Control of High-Order Harmonics », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 74, n° 19, p. 3776-3779, mai 1995.
- [86] S. Daboussi, « Accord de phase et quasi-accord de phase en generation d'harmoniques d'ordres élevés : effet de la pression et du guidage laser », phdthesis, Université Paris Sud, 2013.
- [87] « CXRO - The Center for X-ray Optics ». [En ligne]. Disponible sur: <http://www.cxro.lbl.gov/>.
- [88] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, C. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, et P. Agostini, « Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 82, n° 8, p. 1668-1671, févr. 1999.
- [89] A. L'Huillier et P. Balcou, « High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 70, n° 6, p. 774-777, févr. 1993.
- [90] C.-G. Wahlström, J. Larsson, A. Persson, T. Starczewski, S. Svanberg, P. Salières, P. Balcou, et A. L'Huillier, « High-order harmonic generation in rare gases with an intense short-pulse laser », *Phys. Rev. A*, vol. 48, n° 6, p. 4709-4720, déc. 1993.
- [91] I. P. Christov, J. Zhou, J. Peatross, A. Rundquist, M. M. Murnane, et H. C. Kapteyn, « Nonadiabatic Effects in High-Harmonic Generation with Ultrashort Pulses », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 77, n° 9, p. 1743-1746, août 1996.
- [92] G. Zhang, W. Hübner, E. Beaupaire, et J.-Y. Bigot, « Laser-Induced Ultrafast Demagnetization: Femtomagnetism, a New Frontier? », in *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures I*, P. B. Hillebrands et D. K. Ounadjela, Éd. Springer Berlin Heidelberg, 2002, p. 245-289.
- [93] P. M. Oppeneer et A. Liebsch, « Ultrafast demagnetization in Ni: theory of magneto-optics for non-equilibrium electron distributions », *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 16, n° 30, p. 5519, août 2004.
- [94] Y. Hirschberger et P.-A. Hervieux, « Foldy-Wouthuysen transformation applied to the interaction of an electron with ultrafast electromagnetic fields », *Phys. Lett. A*, vol. 376, n° 6-7, p. 813-819, janv. 2012.
- [95] B. Koopmans, J. J. M. Ruigrok, F. D. Longa, et W. J. M. de Jonge, « Unifying Ultrafast Magnetization Dynamics », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, n° 26, p. 267207, déc. 2005.
- [96] M. Fähnle, J. Seib, et C. Illg, « Relating Gilbert damping and ultrafast laser-induced demagnetization », *Phys. Rev. B*, vol. 82, n° 14, p. 144405, oct. 2010.
- [97] R. J. Elliott, « Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors », *Phys. Rev.*, vol. 96, n° 2, p. 266-279, oct. 1954.
- [98] Y. Yafet, *Solid State Phys*, vol. 14, p. 1, 1963.
- [99] K. Krieger, J. K. Dewhurst, P. Elliott, S. Sharma, et E. K. U. Gross, « Laser induced ultrafast demagnetization: an *ab-initio* perspective », *ArXiv14066607 Cond-Mat*, juin 2014.
- [100] P. N. Argyres, « Theory of the Faraday and Kerr Effects in Ferromagnetics », *Phys. Rev.*, vol. 97, n° 2, p. 334-345, janv. 1955.
- [101] M. Barthelemy, M. Vomir, M. S. Piaia, H. Vonesch, P. Molho, B. Barbara, et J.-Y. Bigot, « Coherent Magnetism and Spin-Orbit Interaction in Garnet Films Probed with Femtosecond Magneto-Optical Four Wave Mixing », *SciRate*, nov. 2013.
- [102] M. SANCHES PIAIA, « Mélange à quatre ondes magnéto-optique femtoseconde dans les films de Grenat », phdthesis, université de Strasbourg, 2014.
- [103] T. J. Silva, C. S. Lee, T. M. Crawford, et C. T. Rogers, « Inductive measurement of ultrafast magnetization dynamics in thin-film Permalloy », *J. Appl. Phys.*, vol. 85, n° 11, p. 7849-7862, juin 1999.
- [104] D. Steiauf et M. Fähnle, « Elliott-Yafet mechanism and the discussion of femtosecond magnetization dynamics », *Phys. Rev. B*, vol. 79, n° 14, p. 140401, avr. 2009.



Génération d'harmoniques d'ordre élevé pour l'étude de la dynamique des charges et de l'aimantation de films de cobalt

Résumé

L'objectif de cette est de développer une source harmonique permettant de couvrir la gamme d'énergie 50 -70 eV du spectre électromagnétique par la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans un gaz rare. Cette source appelée "tabletop" est obtenue à partir d'un système laser femtoseconde basé sur la technique d'amplification à dérive de fréquence. Une telle source permet de réaliser des expériences de dynamique des charges et de l'aimantation aux seuils M des métaux de transition. L'intérêt de sonder la dynamique de l'aimantation dans le domaine des rayons X est la sélectivité chimique sur les éléments. Grâce à la sélectivité chimique, on peut sonder la dynamique des spins des espèces chimiques qui sont responsables du magnétisme. Par exemple, dans un système contenant plusieurs éléments, on peut accéder aux propriétés magnétiques de chacun de ses composants en ajustant l'énergie des photons au seuil d'absorption de l'élément choisi.

Résumé en anglais

The goal of this thesis is to develop an harmonic source to cover the energy range of 50-70 eV of the electromagnetic spectrum by high harmonic generation in a rare gas. This source called "tabletop" is obtained from a femtosecond laser system based on the chirped pulse amplification technique. Such source allows probing the magnetization dynamics at the M-edges of transition metals. The interest to probe the magnetization dynamics with X-rays is the chemical selectivity on the elements. This, one can probe the spin dynamics of the chemical element which are responsible for magnetism. For example, in a system containing several elements, one can reach the magnetic properties of each one of its components by adjusting the photon energy to the absorption edge of the element.