

Centre Énergie Matériaux Télécommunications

## **SOURCES DE LUMIÈRE APPLIQUÉES À L'ÉTUDE DE LA DÉSAIMANTATION ULTRARAPIDE**

Par

**Katherine Légaré**

Thèse présentée pour l'obtention du grade de  
Philosophiae Doctor (Ph.D.)  
en sciences de l'énergie et des matériaux

### **Jury d'évaluation**

Président du jury et examineur interne	Tsuneyuki Ozaki INRS - EMT
Examineur externe	Éric Constant Institut Lumière Matière CNRS, Université Lyon 1
Examineur externe	Jean-Yves Chauleau SPEC CEA, CNRS, Université Paris-Saclay
Directeur de recherche	François Légaré INRS - EMT

## REMERCIEMENTS

---

La réalisation des travaux présentés dans cette thèse n'aurait pas été possible sans la collaboration précieuse de nombreuses personnes. Je profite de cette page pour en nommer les principaux acteurs sans toutefois prétendre que cette liste soit exhaustive.

Je dois d'abord remercier mon directeur de recherche, le professeur François Légaré, pour sa grande confiance, son empathie, sa sincérité, son optimisme et la liberté qu'il m'a offerte dans mes travaux de recherche. Il m'a confié un projet ambitieux, m'a fourni les ressources pour réussir, et m'a simplement permis de m'épanouir à mon rythme. Il m'a encouragé à prendre part à des congrès et à visiter des collaborateurs. Il m'a permis non seulement de découvrir le monde de la recherche académique, mais aussi de me découvrir moi-même en tant que scientifique. Merci.

Lors de mon arrivée à l'INRS, j'ai été placée sous la supervision de Vincent Cardin, qui était alors étudiant au doctorat. C'est lui qui m'a appris les rouages du travail dans un laboratoire d'optique. Je le remercie pour son ouverture, sa rigueur et la confiance qu'il m'a accordée. J'espère avoir retenu un peu de sa persévérance.

Pendant mon parcours, j'ai eu la chance de passer quelques mois à Paris sous la tutelle d'Emmanuelle Jal et de Boris Vodungbo. J'aimerais les remercier pour leur accueil, leur bienveillance et leur confiance.

Je ne peux omettre les autres membres du groupe de recherche à l'INRS, étudiants ou professionnels, qui ont tous contribué au succès de ces travaux d'une manière ou d'une autre. Je désire mentionner en particulier, mais sans ordre précis, les quelques noms qui suivent. Antoine Laramée, qui a offert un support phénoménal au laboratoire afin d'assurer le bon fonctionnement des montages et des outils de travail. Son attitude positive est contagieuse. Philippe Lassonde, dont les vastes connaissances ont été essentielles à toutes les étapes de ces travaux de recherche. Carol Morissette, qui a su machiner presque n'importe quelle pièce à partir de simples descriptions. Heide Ibrahim, avec qui chaque conversation m'a fourni un regain de confiance. Loïc Arias, qui a toujours entrepris son travail avec soin. Elissa Haddad, toujours disponible, avec qui j'ai eu de nombreuses discussions enrichissantes. Je vous remercie.

Pour terminer, je remercie mes proches qui m'ont soutenue et encouragée tout au long de mon parcours même s'ils ne pouvaient pas toujours en comprendre les détails. Odette, Richard, Marie-Pier, je n'aurais jamais pu compléter ces longues études sans votre appui. Marc-Olivier, pour avoir partagé ma vie malgré mes longues absences, pour ta patience, pour avoir célébré mes succès et pour m'avoir fait réaliser l'étendue de mon cheminement, je te suis tout particulièrement reconnaissante.



## RÉSUMÉ

---

Une avenue prometteuse pour le futur des technologies de stockage de données est d'utiliser la lumière pour contrôler l'aimantation de façon ultrarapide, soit sur des échelles de temps femtoseconde à picoseconde ( $10^{-15}$  à  $10^{-12}$  s). Pour développer de telles technologies, il faut étudier l'interaction entre la lumière et les matériaux magnétiques. Un phénomène d'intérêt est la désaimantation ultrarapide, c'est-à-dire la chute de l'aimantation se produisant dans un matériau lorsque celui-ci est excité par une impulsion laser femtoseconde. Bien que ce phénomène soit connu depuis 1996, certains mystères subsistent quant aux mécanismes qui en sont responsable.

Plusieurs méthodes permettant d'étudier la désaimantation ultrarapide existent. La plupart requièrent des sources de rayonnement ultraviolet extrême ou de rayons X qui sont dispendieuses et peu accessibles telles que les synchrotrons et les lasers à électrons libres. Ici, nous présentons plutôt des méthodologies basées sur des sources de petite envergure disponibles en laboratoire. De plus, nous étudions comment les caractéristiques de l'impulsion laser utilisée pour exciter l'échantillon peuvent affecter les dynamiques ultrarapides de la désaimantation.

La méthode conventionnellement utilisée pour produire des impulsions courtes dans l'ultraviolet extrême en laboratoire est la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Toutefois, ce processus ne permet généralement pas d'obtenir un flux élevé de photons. Dans ce document, nous présentons d'abord une source d'harmoniques basée sur des impulsions laser ultracourtes à une longueur d'onde de 1030 nm. Cette source offre un flux élevé de photons autour de 155 eV, ce qui permet de sonder la désaimantation ultrarapide du terbium dans un alliage.

Nous présentons également l'effet de la longueur d'onde d'excitation sur la désaimantation dans des échantillons multicouches contenant du cobalt. Nous observons que l'efficacité de la désaimantation augmente avec la longueur d'onde dans le proche infrarouge, mais que cette tendance ne semble pas s'étendre à l'infrarouge moyen. Nous constatons également que les caractéristiques temporelles de l'impulsion d'excitation ont un effet important sur les dynamiques de la désaimantation.

Ces mesures reposent sur deux méthodes expérimentales. La première exploite une source harmonique offrant un flux élevé de photons à 60 eV. À ce sujet, nous proposons une technique pour contrôler les caractéristiques spatio-temporelles des impulsions laser utilisées pour la génération d'harmoniques, ce qui permet d'adapter la source de photons aux spécificités requises par une application donnée. La seconde est basée sur l'effet Kerr magnéto-optique. Une

optimisation analytique de la configuration du montage permet d'en maximiser l'efficacité.

Mots-clés : Désaimantation ultrarapide; génération d'harmoniques d'ordres élevés; diffusion magnétique résonante de rayons X; effet Kerr magnéto-optique; expérience pompe-sonde; infrarouge moyen; états solitoniques multidimensionnels; compression d'impulsions; terres rares; métaux de transition.

## ABSTRACT

---

A promising avenue for future data storage technologies is to use light to control magnetization on the femtosecond to picosecond timescales ( $10^{-15}$  to  $10^{-12}$  s). To develop such technologies, the interaction between light and magnetic materials must be studied. One phenomenon of interest is ultrafast demagnetization, which is a drop in magnetization that occurs in a material when it is excited by a femtosecond laser pulse. Although this phenomenon has been known since 1996, some mysteries remain as to the mechanisms that are responsible for it.

Several methods exist to study ultrafast demagnetization. Most of them require sources of extreme ultraviolet radiation or X-rays that are expensive and not very accessible such as synchrotrons and free electron lasers. Here, we present instead methodologies based on small-scale sources available in the laboratory. In addition, we study how the characteristics of the laser pulse used to excite the sample can affect the ultrafast dynamics of demagnetization.

The conventional method used to produce extreme ultraviolet, ultrashort pulses in the laboratory is high harmonic generation. However, this process does not generally yield a high photon flux. Here, we first present a harmonic source based on ultrashort laser pulses at a wavelength of 1030 nm. This source provides a high photon flux around 155 eV, which allows to probe the ultrafast demagnetization of terbium in an alloy.

We also present the effect of the excitation wavelength on demagnetization in multilayer samples containing cobalt. We observe that the demagnetization efficiency increases with wavelength in the near-infrared, but that this trend does not appear to extend to the mid-infrared. We also find that the temporal characteristics of the excitation pulse have a significant effect on the demagnetization dynamics.

These measurements are based on two experimental methods. The first one exploits a harmonic source offering a high photon flux at 60 eV. In this regard, we propose a technique that allows to control the spatio-temporal characteristics of the laser pulses used for the generation of harmonics, thus allowing to adapt the photon source to the specificities required for a given application. The second one is based on the magneto-optical Kerr effect. An analytical optimization of the configuration of the experimental setup allows to maximize its efficiency.

Keywords: Ultrafast demagnetization; high harmonic generation; X-ray resonant magnetic scattering; magneto-optical Kerr effect; pump-probe experiment; mid-infrared; multidimensional solitary states; pulse compression; rare-earths; transition metals.



# TABLE DES MATIÈRES

---

REMERCIEMENTS.....	III
RÉSUMÉ.....	V
ABSTRACT.....	VII
TABLE DES MATIÈRES.....	IX
LISTE DES FIGURES.....	XIII
LISTE DES TABLEAUX.....	XVII
LISTE DES ABRÉVIATIONS.....	XIX
<b>1 INTRODUCTION.....</b>	<b>23</b>
1.1 MÉTHODOLOGIE.....	24
1.1.1 <i>Expérience pompe-sonde</i> .....	24
1.1.2 <i>Caractéristiques de la sonde</i> .....	25
1.2 OBJECTIFS ET RÉALISATIONS.....	26
1.3 CHRONOLOGIE.....	29
1.3.1 <i>Mesures de la diffusion magnétique résonante</i> .....	29
1.3.2 <i>Optimisation de la méthodologie</i> .....	30
1.3.3 <i>Mesures par effet Kerr magnéto-optique</i> .....	31
1.4 DIVISION DES CHAPITRES.....	31
<b>2 MAGNÉTISME ET DÉSAIMENTATION ULTRARAPIDE.....</b>	<b>33</b>
2.1 ORIGINE DE L'AIMANTATION.....	33
2.1.1 <i>Magnétisme dans l'atome</i> .....	33
2.1.2 <i>Magnétisme dans les solides</i> .....	35
2.1.3 <i>Sources d'ordre magnétique</i> .....	37
2.1.4 <i>Phases magnétiques</i> .....	41
2.2 DYNAMIQUES DE L'AIMANTATION.....	42
2.3 DÉSAIMENTATION ULTRARAPIDE.....	45
2.3.1 <i>Découverte</i> .....	45
2.3.2 <i>Diffusion avec renversement du spin</i> .....	49
2.3.3 <i>Transport de spins</i> .....	54
2.3.4 <i>Effets attendus de la longueur d'onde d'excitation</i> .....	58
2.4 COMMENT SONDER LA DÉSAIMENTATION ULTRARAPIDE.....	61
2.4.1 <i>Effet Kerr magnéto-optique</i> .....	62
2.4.2 <i>Dichroïsme magnétique circulaire de rayons X</i> .....	67
2.4.3 <i>Diffusion magnétique résonante de rayons X</i> .....	70
<b>3 SOURCES DE LUMIÈRE.....</b>	<b>75</b>

3.1	OPTIQUE NON-LINÉAIRE DANS LES CRISTAUX.....	76
3.1.1	<i>Polarisation non-linéaire</i> .....	76
3.1.2	<i>Phénomènes non-linéaires de second ordre</i> .....	78
3.1.3	<i>Domaine des fréquences</i> .....	82
3.1.4	<i>Accord de phase</i> .....	83
3.2	GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS .....	87
3.2.1	<i>Principes microscopiques</i> .....	87
3.2.2	<i>Considérations macroscopiques</i> .....	94
3.2.3	<i>Accord de phase</i> .....	96
3.2.4	<i>Efficacité de conversion</i> .....	99
<b>4</b>	<b>ARTICLE 1 – XRMS DANS UN ÉCHANTILLON DE TERRE RARE.....</b>	<b>103</b>
4.1	ABSTRACT.....	105
4.2	INTRODUCTION .....	105
4.3	RESULTS.....	109
4.3.1	<i>Development of the High-Brightness Soft X-Ray HHG Source</i> .....	110
4.3.2	<i>First tr-XRMS Measurement Covering the N Edge of RE</i> .....	113
4.4	DISCUSSION AND CONCLUSION .....	119
4.5	FUNDING.....	120
4.6	ACKNOWLEDGMENTS .....	120
<b>5</b>	<b>ARTICLE 2 – DÉSAIMENTATION DANS LE PROCHE INFRAROUGE.....</b>	<b>123</b>
5.1	ABSTRACT.....	125
5.2	INTRODUCTION .....	125
5.3	EXPERIMENT & RESULTS .....	126
5.4	DISCUSSION.....	128
5.4.1	<i>Alternative energy gauges</i> .....	128
5.4.2	<i>Drude model with dispersion</i> .....	130
5.4.3	<i>Optical absorption in the multilayers</i> .....	131
5.5	CONCLUSION.....	133
5.6	ACKNOWLEDGMENTS .....	134
<b>6</b>	<b>ARTICLE 3 – COMPRESSEUR À DÉCALAGE VERS LE ROUGE .....</b>	<b>135</b>
6.1	ABSTRACT.....	139
6.2	INTRODUCTION .....	139
6.3	MULTIDIMENSIONAL SOLITARY STATES .....	141
6.4	HIGH HARMONIC GENERATION .....	145
6.5	CONCLUSION.....	149
6.6	ACKNOWLEDGMENTS .....	150

<b>7</b>	<b>ARTICLE 4 – ANALYSE DE MONTAGES MOKE</b>	<b>151</b>
7.1	ABSTRACT	153
7.2	INTRODUCTION	153
7.3	DESCRIPTION OF THE DETECTION SCHEMES	155
7.4	JONES FORMALISM	157
7.4.1	<i>Modulator-analyzer (M-A) setup</i>	158
7.4.2	<i>Modulator-PBS (M-PBS) setup</i>	160
7.4.3	<i>Setups without modulator and lock-in amplifier</i>	161
7.5	EXPERIMENTAL RESULTS	163
7.5.1	<i>Static experiment</i>	163
7.5.2	<i>Time-resolved experiment</i>	165
7.6	CONCLUSION	167
7.7	SUPPLEMENTARY MATERIAL	168
7.8	ACKNOWLEDGMENT	168
7.9	AUTHOR DECLARATIONS	168
7.10	DATA AVAILABILITY	169
<b>8</b>	<b>L'INFRAROUGE MOYEN COMME SOURCE D'EXCITATION DE LA DÉSAIMENTATION ULTRARAPIDE</b>	<b>171</b>
8.1	MONTAGE EXPÉRIMENTAL	171
8.2	RÉSULTATS ET DISCUSSION	174
8.2.1	<i>Temps de désaimantation</i>	177
8.2.2	<i>Désaimantation maximale</i>	178
8.2.3	<i>Effet de la propagation dans l'air</i>	180
8.3	CONCLUSION	184
<b>9</b>	<b>CONCLUSION</b>	<b>185</b>
<b>10</b>	<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	<b>187</b>
<b>11</b>	<b>ANNEXE I : INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR L'ARTICLE 1 – XRMS DANS UN ÉCHANTILLON DE TERRE RARE</b>	<b>203</b>
11.1	HHG GENERATION AND PHOTON FLUX CHARACTERIZATION	203
11.2	PHASE MATCHING OPTIMIZATION IN LOOSE FOCUSING GEOMETRY	204
11.3	PHOTON FLUX COMPARISON OF DIFFERENT DRIVER WAVELENGTHS AND GAS TYPES	204
11.4	MEASUREMENTS ON THE TRANSMISSION AND DIFFRACTION EFFICIENCY AROUND THE TB N-EDGE	207
11.5	MECHANISM OF XRMS	208
11.6	SAMPLE MAGNETIZATION AND XRMS	209
11.7	DATA ANALYSIS FOR TR-XRMS EXPERIMENTS	209
11.8	REPETITION RATE AND PUMP WAVELENGTH SELECTION IN TR-XRMS MEASUREMENTS	210

<b>12 ANNEXE II : INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR L'ARTICLE 2 – DÉSAIMENTATION DANS LE PROCHE INFRAROUGE.....</b>	<b>211</b>
12.1 EXPERIMENTAL DETAILS.....	211
12.2 RESULTS.....	214
12.3 MAXIMUM ELECTRON TEMPERATURE AND SCALING WITH $\lambda^2$ .....	216
12.4 OPTICAL DATA FOR AL, CO AND PT AND EFFECTIVE SCALING WITH $\lambda^2$ .....	217
12.5 FRACTION OF THE ENERGY TRANSFERRED TO CO/PT WITH THE BEER-LAMBERT LAW .....	218
12.6 FRACTION OF THE ENERGY TRANSFERRED TO CO/PT WITH THE THIN-FILM ELECTROMAGNETIC THEORY .....	219
<b>13 ANNEXE III : INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR L'ARTICLE 4 – ANALYSE DE MONTAGES MOKE.....</b>	<b>221</b>
13.1 EXAMPLE OF CALCULATION WITH JONES FORMALISM .....	221
13.2 DEVELOPMENT OF MOKE MEASUREMENTS WITH A QUARTER WAVEPLATE .....	223
13.3 EFFECT OF MIRROR REFLECTIONS .....	224

## LISTE DES FIGURES

---

FIGURE 1.1	EXPÉRIENCE POMPE-SONDE.....	25
FIGURE 2.1	FORMATION DES BANDES $D$ ET $F$ DANS UN MÉTAL.....	36
FIGURE 2.2	FONCTIONS D'ONDE SPATIALES D'UN SYSTÈME À DEUX ÉLECTRONS.....	39
FIGURE 2.3	ÉCHELLES DE TEMPS DES DYNAMIQUES MAGNÉTIQUES.....	43
FIGURE 2.4	COURBE D'HYSTÉRÉSIS MAGNÉTIQUE.....	44
FIGURE 2.5	PREMIÈRE OBSERVATION DE LA DÉSAIMANTATION ULTRARAPIDE.....	46
FIGURE 2.6	MODÈLE À TROIS TEMPÉRATURES.....	48
FIGURE 2.7	DIFFUSION ELLIOT-YAFET.....	49
FIGURE 2.8	TRANSPORT DE SPINS ENTRE DEUX COUCHES FERROMAGNÉTIQUES.....	54
FIGURE 2.9	APPLICATION DU MODÈLE DE TRANSPORT DE SPIN SUPER-DIFFUSIF.....	56
FIGURE 2.10	ÉLECTRON DANS UN CHAMP LASER DE POLARISATION CIRCULAIRE.....	63
FIGURE 2.11	TYPES D'EFFETS KERR MAGNÉTO-OPTIQUES.....	66
FIGURE 2.12	DICHROÏSME MAGNÉTIQUE CIRCULAIRE DE RAYONS X.....	69
FIGURE 2.13	DIFFUSION MAGNÉTIQUE RÉSONANTE DE RAYONS X.....	70
FIGURE 3.1	GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE.....	80
FIGURE 3.2	GÉNÉRATION PAR SOMME DE FRÉQUENCES.....	80
FIGURE 3.3	GÉNÉRATION PAR DIFFÉRENCE DE FRÉQUENCES.....	81
FIGURE 3.4	ACCORD DE PHASE DE LA SFG.....	86
FIGURE 3.5	MODÈLE EN TROIS ÉTAPES.....	89
FIGURE 3.6	TRAJECTOIRES POSSIBLES D'UN ÉLECTRON DANS UN CHAMP LASER.....	92
FIGURE 3.7	INTENSITÉ DE LA HHG EN FONCTION DE LA LONGUEUR D'ONDE.....	94
FIGURE 3.8	SPECTRE HARMONIQUES.....	96
FIGURE 4.1	SCHEMATICS OF THE EXPERIMENT.....	109
FIGURE 4.2	DRIVER PULSE COMPRESSION AND HHG CHARACTERIZATION.....	110
FIGURE 4.3	HHG FROM DIFFERENT SOURCES.....	112
FIGURE 4.4	PHYSICAL MECHANISM OF XRMS.....	114

FIGURE 4.5	XRMS MEASUREMENTS AND SIMULATIONS .....	116
FIGURE 4.6	TIME-RESOLVED XRMS MEASUREMENTS.....	117
FIGURE 5.1	CONCEPTUALIZATION OF THE PUMP-PROBE XRMS TECHNIQUE.....	126
FIGURE 5.2	DEMAGNETIZATION CURVES FOR THREE PUMP WAVELENGTHS .....	127
FIGURE 5.3	WAVELENGTH DEPENDENCE OF $B$ WITH TWO ENERGY GAUGES .....	129
FIGURE 5.4	OPTICAL ABSORPTION DATA .....	132
FIGURE 6.1	EXPERIMENTAL SETUP .....	142
FIGURE 6.2	MDSS PULSES.....	143
FIGURE 6.3	HHG SPECTRA .....	146
FIGURE 6.4	XRMS RESULTS.....	149
FIGURE 7.1	EXPERIMENTAL SETUP .....	156
FIGURE 7.2	MOKE MEASUREMENTS.....	163
FIGURE 7.3	EXPERIMENTAL TIME-RESOLVED MOKE SETUP .....	165
FIGURE 7.4	TIME-RESOLVED MOKE MEASUREMENTS .....	167
FIGURE 8.1	SCHÉMA DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL .....	172
FIGURE 8.2	TACHES FOCALES DE LA SONDÉ ET DE LA POMPE.....	173
FIGURE 8.3	DÉSAIMANTATION À DIFFÉRENTES LONGUEUR D'ONDE .....	175
FIGURE 8.4	TEMPS DE DÉSAIMANTATION.....	177
FIGURE 8.5	DÉSAIMANTATION MAXIMALE .....	178
FIGURE 8.6	RÉSOLUTION TEMPORELLE.....	179
FIGURE 8.7	EFFET DE LA PROPAGATION SUR LE MOKE.....	181
FIGURE 8.8	PRINCIPE DU FROST.....	182
FIGURE 8.9	PROFIL TEMPOREL DES IMPULSIONS À 5.9 $\mu\text{m}$ .....	183
FIGURE 11.1	HHG SPECTRA AND SIMULATION.....	206
FIGURE 11.2	HHG SPECTRA IN THE LITERATURE.....	207
FIGURE 11.3	XRMS IN $\text{Co}_{0.88}\text{Tb}_{0.12}$ .....	208
FIGURE 11.4	DATA ANALYSIS OF XRMS DATA.....	210
FIGURE 12.1	EXPERIMENTAL PUMP-PROBE LINE.....	211

FIGURE 12.2	THERMALIZATION TIME $\tau_1$ .....	215
FIGURE 12.3	INTERDEPENDENCE OF THE ALTERNATIVE ENERGY GAUGES .....	216
FIGURE 12.4	ENERGY DENSITY TRANSFERRED TO THE MATERIAL .....	218



## LISTE DES TABLEAUX

---

TABLEAU 2.1	OCCUPATION DES ORBITALES.....	35
TABLEAU 2.2	MOMENTS MAGNÉTIQUES ATOMIQUES ET TEMPÉRATURES DE CURIE.....	51
TABLEAU 3.1	CONTRIBUTIONS AU DÉSACCORD DE PHASE.....	99
TABLEAU 3.2	EFFICACITÉ DE CONVERSION.....	100
TABLEAU 8.1	ABSORBANCE DE L'ÉCHANTILLON.....	176
TABLEAU 11.1	LASER PARAMETERS.....	206



## LISTE DES ABRÉVIATIONS

---

3T	Modèle à trois températures
ALLS	Advanced Laser Light Source
BBO	Cristal de $\beta$ -borate de baryum
BW	Largeur de bande (de l'anglais <i>Bandwidth</i> )
CCD	Dispositif de charges couplées (de l'anglais <i>Charge-Coupled Device</i> )
CEA	Commissariat à l'énergie atomique
CMOS	Semi-conducteur à oxyde métallique complémentaire (de l'anglais <i>Complementary Metal-Oxide-Semiconductor</i> )
CNRS	Centre national de la recherche scientifique
DFG	Génération par différence de fréquences (de l'anglais <i>Difference Frequency Generation</i> )
ESP	Électrons, spins et phonons
EWP	Paquet d'onde électronique (de l'anglais <i>Electron Wave Packet</i> )
FEL/XFEL	Laser à électrons libres (de l'anglais <i>Free Electron Laser</i> ) / Laser à électrons libres générant des rayons X
FROG	Autocorrélation résolue en fréquence (de l'anglais <i>Frequency-Resolved Optical Gating</i> )
FROSt	Commutation optique résolue en temps (de l'anglais <i>Frequency-Resolved Optical Switching</i> )
HCF	Fibre à cœur creux (de l'anglais <i>Hollow-Core Fiber</i> )
HHG	Génération d'harmoniques d'ordres élevés (de l'anglais <i>High Harmonic Generation</i> )

HOM	Mode d'ordre élevé (de l'anglais <i>High-Order Mode</i> )
IFWM	Mélange à quatre ondes intermodal (de l'anglais <i>Intermodal Four-Wave Mixing</i> )
INRS-EMT	Institut national de la recherche scientifique, centre énergie matériaux télécommunications
IR	Infrarouge
LOA	Laboratoire d'optique appliquée
M3T	Modèle microscopique à trois températures
M-A	Montage modulateur/analyseur
MDSS	États solitoniques multidimensionnels (de l'anglais <i>Multidimensional Solitary States</i> )
MFM	Microscope à force magnétique
MOKE	Effet Kerr magnéto-optique (de l'anglais <i>Magneto-Optical Kerr effect</i> )
M-PBS	Montage modulateur/séparateur de polarisations
OISTR	Transfert de spin induit optiquement (de l'anglais <i>Optically Induced Spin Transfer</i> )
OPA	Amplification paramétrique optique (de l'anglais <i>Optical Parametric Amplification</i> )
PBS	Séparateur de polarisation (de l'anglais <i>Polarization Beam Splitter</i> )
PEM	Modulateur photoélastique (de l'anglais <i>Photoelastic Modulator</i> )
RE	Terre rare (de l'anglais <i>Rare-Earth</i> )
RKKY	Ruderman, Kittel, Kasuya et Yosida
SFG	Génération par somme de fréquences (de l'anglais <i>Sum Frequency Generation</i> )
SHG	Génération de second harmonique (de l'anglais <i>Second Harmonic Generation</i> )

SNR	Ratio signal sur bruit (de l'anglais <i>Signal-to-Noise Ratio</i> )
SPEC	Service de physique de l'état condensé
SPM	Automodulation de phase (de l'anglais <i>Self-Phase Modulation</i> )
SRS	Diffusion Raman stimulée (de l'anglais <i>Stimulated Raman Scattering</i> )
TDSE	Équation de Schrödinger dépendante du temps (de l'anglais <i>Time-Dependent Schrödinger Equation</i> )
TM	Métaux de transition (de l'anglais <i>Transition Metals</i> )
XMCD	Dichroïsme magnétique circulaire de rayons X (de l'anglais <i>X-ray Magnetic Circular Dichroism</i> )
XMLD	Dichroïsme magnétique linéaire de rayons X (de l'anglais <i>X-ray Magnetic Linear Dichroism</i> )
XRMS	Diffusion magnétique résonante de rayons X (de l'anglais <i>X-ray Resonant Magnetic Scattering</i> )
XUV/EUV	Ultraviolet extrême



# 1 INTRODUCTION

---

En 2012, environ 2.5 milliards de milliards d'octets de données étaient générés à chaque jour, et ce chiffre doublait à tous les 40 mois [1]. Dix ans plus tard, la gestion de toutes ces données semble représenter un défi technologique sans bornes. Tous ces zéros et ces uns sont transcrits dans d'innombrables dispositifs d'entreposage de données sous forme, entre autres, d'orientation de l'aimantation dans un matériau magnétique. Afin de palier à ces besoins, énormément de recherche est réalisée afin non seulement d'améliorer la capacité d'entreposage des technologies informatiques, mais aussi de développer des technologies qui permettront d'accélérer le transfert de données. Une avenue consiste à perfectionner en particulier la vitesse d'écriture des bits. Les technologies de disques durs courantes permettent l'inscription d'un bit en environ une nanoseconde, ce qui correspond à un milliardième de seconde ou  $10^{-9}$  s [2]. L'amélioration de ce temps d'écriture passe par la découverte de nouvelles méthodes plus rapides pour inverser l'aimantation.

La manière classique de manipuler l'aimantation consiste à plonger le matériau dans un champ magnétique puissant et de laisser l'aimantation se réordonner en conséquence. Ainsi, il est possible d'inverser l'orientation de l'aimantation en quelques nanosecondes [3]. Cette durée peut être réduite à moins de 200 picosecondes (une picoseconde correspond à un millième de nanoseconde, ou  $10^{-12}$  s) par l'utilisation d'impulsions de champ magnétique bien choisies, mais il s'agit là d'une limite fondamentale à la vitesse de l'inversion par l'application d'un champ magnétique [4]. Dans les dernières années, une nouvelle méthode reposant sur l'utilisation d'impulsions de courant électrique a été proposée. Bien que cette méthode offre des avantages technologiques considérables, la durée de l'inversion de l'aimantation par courant électrique est également limitée à quelques centaines de picosecondes [5,6]. Pour accélérer encore le processus, il faut donc s'affranchir de cette limite fondamentale.

La découverte en 1996 de la désaimantation ultrarapide a chamboulé notre compréhension de l'aimantation [7]. Les auteurs de cet article ont appliqué des impulsions laser ultracourtes de quelques dizaines de femtosecondes sur un échantillon magnétique (une femtoseconde correspond à un millième de picoseconde, ou  $10^{-15}$  s) et ont démontré qu'il est possible d'induire une diminution importante de l'aimantation en moins d'une picoseconde! Par la suite, d'autres études ont permis de démontrer que cette durée peut être réduite à une centaine de femtosecondes [8]. Cette découverte a fait voir le jour à un tout nouveau domaine de recherche : le magnétisme ultrarapide [9]. D'ailleurs, quelques années plus tard, l'inversion de l'orientation de

l'aimantation à l'aide d'impulsions laser a été démontrée [10]. Ce phénomène, quoiqu'intimement lié à la désaimantation ultrarapide, est plus lent et à ce jour, l'inversion de l'aimantation reste limitée au régime picoseconde [6].

Depuis la découverte de la désaimantation ultrarapide, de nombreuses études ont été complétées dans le but d'en comprendre les mécanismes sous-jacents. Tel que détaillé à la section 2.3, plusieurs hypothèses ont été proposées, mais à ce jour, les processus exacts qui gouvernent la désaimantation restent mystérieux. Il est donc souhaitable de poursuivre la recherche pour mieux comprendre le phénomène afin, éventuellement, de pouvoir le contrôler de façon assez fiable pour qu'il soit possible de l'intégrer à des technologies de stockage de données.

Ici, nous cherchons à étudier la désaimantation ultrarapide dans des conditions inédites grâce à des sources de lumières couvrant une large gamme spectrale qui peuvent être générées en laboratoire. Ajoutées à la masse d'information existante, ces nouvelles données contribueront à définir quels mécanismes offrent la meilleure explication du phénomène.

## **1.1 Méthodologie**

### **1.1.1 Expérience pompe-sonde**

Il existe plusieurs méthodes pour étudier les dynamiques ultrarapides de l'aimantation. La plupart d'entre elles reposent sur le principe de l'expérience pompe-sonde, qui est représenté à la Figure 1.1. Ce principe requiert deux impulsions ultracourtes (femtosecondes). D'abord, la première impulsion (la « pompe ») sert à déposer de l'énergie dans l'échantillon pour l'exciter et ainsi initier les dynamiques à étudier. Puis, une seconde impulsion (la « sonde »), généralement moins intense, est utilisée pour sonder l'état du matériau. En répétant ce procédé avec des délais différents entre les impulsions puis en remettant les données obtenues en ordre chronologique, il est possible de reconstituer l'ensemble des dynamiques ultrarapides. Toutefois, il y a une limitation majeure; les impulsions utilisées doivent être plus courtes que les dynamiques à observer. En effet, l'information concernant tout ce qui s'est passé dans le matériau pendant son illumination par la sonde sera superposée dans les données recueillies. Si le matériau est illuminé trop longtemps, il ne sera donc pas possible de discerner les dynamiques ultrarapides, tout comme une photographie devient floue lorsque le sujet bouge alors que l'obturateur est ouvert. Pour l'étude de la désaimantation ultrarapide, il convient donc d'utiliser des impulsions d'une durée d'au plus quelques dizaines de femtosecondes.

Il existe différentes méthodes pour générer des impulsions aussi courtes. La plus courante et

accessible est l'utilisation de lasers à verrouillage de modes, par exemple les lasers titane-saphir [11]. Il est également possible d'utiliser des sources basées sur l'accélération d'électrons telles que les lasers à électrons libres (FEL, de l'anglais *Free Electron Laser*) et les sources de radiation synchrotron. Traditionnellement, les sources basées sur l'utilisation du rayonnement synchrotron offrent des impulsions plus longues (dizaines de picosecondes), mais afin de répondre au besoin grandissant d'impulsions ultracourtes, différentes technologies ont été développées pour réduire la durée de ces impulsions, qui peuvent maintenant être aussi courtes que 50 fs [12].

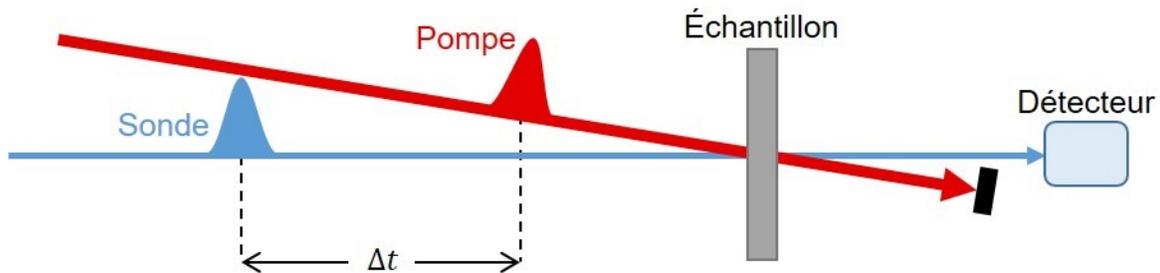


Figure 1.1 Expérience pompe-sonde

Principe de l'expérience pompe-sonde. L'impulsion de pompe excite l'échantillon. Après un délai connu, l'impulsion de sonde interagit avec l'échantillon excité. Cette interaction change certaines caractéristiques de la sonde, souvent son intensité ou sa polarisation. Le détecteur permet d'enregistrer ces changements, qui dépendent de l'état du matériau au moment de l'interaction. L'expérience est répétée pour différents délais  $\Delta t$  jusqu'à ce que la reconstitution complète des dynamiques soit possible.

### 1.1.2 Caractéristiques de la sonde

Le choix du type de lumière à utiliser pour sonder l'aimantation est également important. En effet, on n'obtient pas le même genre d'information en sondant le matériau dans le visible ou en utilisant des rayons X, par exemple. De plus, tel que présenté dans le chapitre 2, certaines techniques permettant de mesurer l'aimantation nécessitent que la sonde soit composée de rayonnement ultraviolet extrême (XUV) ou de rayons X. Généralement, les techniques compatibles avec la lumière visible sont favorisées car elles sont plus accessibles et plus faciles à implémenter. Cependant, les régions spectrales de l'ultraviolet extrême et des rayons X offrent certains avantages.

D'abord, grâce à leur longueur d'onde de petite dimension, les rayonnements XUV et X peuvent être utilisés pour observer des structures nanométriques. En effet, les techniques de mesures liées au phénomène de diffraction permettent de résoudre des structures de taille comparable à la longueur d'onde du rayonnement utilisé. Le rayonnement XUV couvre les longueurs d'ondes de 10 à 124 nm tandis que deux types de rayons X peuvent être distingués, soit les rayons X

mous (de 0.1 à 10 nm) et les rayons X durs (sous 0.1 nm). Avec les rayons X, il est donc possible d'observer la disposition des atomes dans une molécule ou un matériau solide, par exemple. Ces gammes spectrales peuvent également être employées pour résoudre les domaines magnétiques nanométriques qui existent dans certains échantillons.

Par ailleurs, l'énergie des photons contenus dans le rayonnement XUV et les rayons X donne accès à la structure électronique des matériaux, qui contient de l'information importante pouvant être reliée aux caractéristiques physiques du matériau. En effet, l'énergie des photons dans ces gammes spectrales correspond aux énergies des transitions électroniques dans les atomes. En sondant un matériau magnétique avec des photons dont l'énergie correspond aux transitions entre des niveaux électroniques responsables du magnétisme, par exemple, il est possible d'obtenir de l'information sur l'aimantation du matériau. En outre, ces méthodes de mesures, dites « résonantes », n'incluent que les contributions des éléments qui participent à la transition interrogée et ce, même si l'échantillon est un alliage ou une superposition de couches minces de différentes compositions. Elles peuvent donc être utilisées pour séparer les contributions de différents éléments dans un matériau complexe.

Puisque les sources synchrotrons et les FELs produisent des impulsions de rayon X ultracourtes et intenses, elles sont souvent sollicitées pour l'étude de la désaimantation ultrarapide. Toutefois, elles comportent certains désavantages. Ce type de source requiert des infrastructures de grande envergure qui sont dispendieuses et donc rares. Très en demande, elles sont peu accessibles. Heureusement, d'autres méthodes de génération d'impulsions XUV et X ont été développées à partir des technologies laser existantes. La génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG, de l'anglais *High Harmonic Generation*) est sans doute la plus populaire. Bien que cette méthode ne puisse rivaliser avec le flux de photons offert par les sources synchrotrons et les FELs, l'accessibilité et la possibilité de produire des impulsions de durée allant jusqu'à la sous-femtoseconde (attoseconde) en font une source de rayonnement de choix pour la science ultrarapide. La génération d'harmoniques d'ordres élevés est introduite en détail au chapitre 3.

## **1.2 Objectifs et réalisations**

L'objectif global des travaux présentés dans ce document est de faire usage des caractéristiques uniques des différentes sources de lumière déployées au laboratoire pour observer la désaimantation ultrarapide dans des conditions inexplorées. Plus précisément, l'objectif directeur qui a porté ces travaux est l'étude de l'effet de la longueur d'onde de l'impulsion de pompe sur les dynamiques de la désaimantation ultrarapide dans le cobalt, un métal de transition. L'atteinte

de cet objectif est rendue possible grâce aux infrastructures du laboratoire Advanced Laser Light Source (ALLS), où différents procédés permettent de générer des impulsions femtosecondes sur une vaste gamme spectrale, de l'infrarouge moyen aux XUV.

La plupart des études publiées sur la désaimantation ultrarapide sont limitées à une seule longueur d'onde de pompe et s'attardent plutôt aux caractéristiques de la sonde et des matériaux étudiés. Souvent, les chercheurs emploient un système laser titane-saphir et par conséquent, la pompe a une longueur d'onde de 800 nm. Pourtant, certaines études ont démontré que les dynamiques de la désaimantation peuvent être affectées par la longueur d'onde de la pompe lorsque cette dernière est dans le visible ou dans le proche infrarouge (longueur d'onde entre 400 nm et 1800 nm) [13–16]. Qu'est-ce qui explique cette dépendance? Que se passe-t-il dans l'infrarouge moyen, où les longueurs d'ondes sont encore plus grandes? Ce sont les questions auxquelles nous tentons de répondre.

De façon intuitive, on peut croire que des longueurs d'onde élevées mènent à une désaimantation plus prononcée dans les premières centaines de femtosecondes après l'excitation. En effet, la forme de la distribution électronique excitée par la pompe dans le matériau dépend de la longueur d'onde. En approximant les électrons de la bande de conduction comme étant libres, il est possible de montrer que la température électronique transitoire augmente avec la longueur d'onde. Ceci devrait favoriser les processus microscopiques responsables de la désaimantation et conduire à une désaimantation transitoire plus marquée. Nos résultats expérimentaux présentés au chapitre 5 semblent confirmer cette hypothèse lorsque la pompe est dans le proche infrarouge. Pourtant, dans l'infrarouge moyen, cette tendance ne semble pas être maintenue (voir le chapitre 8). Nous concluons que les mécanismes par lesquels l'énergie de la pompe est transférée au système magnétique dans le matériau dépendent seulement en partie de la distribution énergétique transitoire du système électronique. Cet objectif est donc partiellement atteint; la mesure de données expérimentales est complétée, mais un modèle théorique expliquant les résultats reste à réaliser. L'accomplissement de cet objectif est discuté plus en détail au chapitre 8.

En cours de route, plusieurs objectifs secondaires ont vu le jour qui s'inscrivent toujours dans l'objectif global de mesurer la désaimantation ultrarapide en laboratoire dans des conditions inédites. D'abord, une opportunité s'est présentée de sonder pour la première fois la désaimantation au seuil N d'absorption du terbium dans un alliage ferrimagnétique composé d'une terre rare et d'un métal de transition. En effet, nos collaborateurs ont développé une source XUV intense offrant des photons jusqu'à 200 eV basée sur la génération d'harmoniques d'ordres

élevés. Cette source permet de sonder directement les niveaux électroniques inférieurs des terres rares, ce qui était jusque-là réservé aux sources de grande envergure telles que les FELs. En combinant cette source avec un montage expérimental permettant de mesurer la diffusion résonante de rayons X (voir le chapitre 2), il nous a été possible d'isoler les dynamiques de l'aimantation du terbium dans un alliage et même d'observer des changements dans la distribution spatiale des domaines magnétiques. Cet objectif a été atteint avec succès et il est présenté au chapitre 4.

Afin d'assurer l'atteinte de l'objectif principal, une partie majeure du travail entrepris a visé l'optimisation du contexte expérimental de la prise de mesures. Ainsi, deux autres objectifs secondaires se sont ajoutés, soit (i) l'exploration de nouvelles méthodes pour générer des impulsions XUV à haut flux de photons et (ii) l'optimisation d'un montage basé sur l'effet Kerr magnéto-optique.

Tel que décrit dans le chapitre 6, l'objectif (i) a mené au développement d'une nouvelle méthode d'optimisation du spectre XUV généré par HHG. Cette méthode consiste à façonner les impulsions servant à générer les harmoniques en les faisant interagir avec un gaz moléculaire dans une fibre à cœur creux, une technique récemment développée au laboratoire ALLS [17]. Ainsi, il est possible de manipuler le spectre du faisceau et de compresser les impulsions jusqu'à quelques cycles optiques, ce qui représente un atout pour la génération d'harmoniques. Cette méthode comporte des avantages intéressants pour le développement de futures sources XUV. Comparativement à la méthode de génération utilisée préalablement pour étudier la désaimantation ultrarapide dans le cobalt, elle a d'ailleurs permis de générer un flux important de photons à partir d'impulsions moins énergétiques et en générant les harmoniques dans l'argon, un gaz commun et abordable, plutôt que dans le néon. En définitive, ces améliorations ont toutefois été jugées insuffisantes pour assurer la complétion de l'objectif principal dans un délai respectable.

Comme les résultats de l'objectif (i) n'ont finalement pas permis de faciliter significativement les mesures de désaimantation, nous nous sommes tournés vers une technique expérimentale qui ne requiert pas de rayonnement XUV pour sonder l'aimantation. L'objectif (ii), introduit au chapitre 7, est donc d'optimiser un montage expérimental basé sur l'effet Kerr magnéto-optique en s'assurant que la configuration du montage procure un signal aussi élevé que possible. L'accomplissement de cet objectif a permis de compléter les mesures de la désaimantation en fonction de la longueur d'onde de pompe.

### **1.3 Chronologie**

L'objectif premier de ce projet a toujours été l'étude de la désaimantation en fonction de la longueur d'onde de pompe sur une vaste gamme spectrale. Cependant, certaines contraintes et opportunités ont contribué à l'ajout des objectifs secondaires dénombrés dans la section précédente. Afin de clarifier l'ordre dans lequel les différents objectifs ont été accomplis, voici une description de la chronologie des événements. Le travail peut être séparé en trois grandes sections.

#### **1.3.1 Mesures de la diffusion magnétique résonante**

Lors de mon arrivée à l'INRS, je me suis jointe au projet de recherche du Dr. Vincent Cardin, qui avait comme objectif principal d'étudier la désaimantation ultrarapide du terbium dans un alliage. Son projet exigeait de sonder l'aimantation de façon résonante, c'est-à-dire en utilisant des photons dont l'énergie correspond à une transition électronique du matériau magnétique. Plus précisément, la technique expérimentale utilisée était la diffusion magnétique de rayons X, décrite plus en détail au chapitre 2. Afin de sonder le seuil d'absorption N du terbium, il était donc nécessaire d'avoir accès à une source intense de photons à 155 eV. Cependant, il s'est avéré que le laboratoire ALLS ne pouvait offrir une source avec un flux de photons suffisant par génération d'harmonique d'ordres élevés. Le projet a donc été réorienté vers l'étude de la désaimantation ultrarapide au seuil d'absorption M du cobalt, à 60 eV. C'est à ce moment que j'ai rejoint le groupe.

Afin d'atteindre les nouveaux objectifs, la source d'harmoniques a d'abord été optimisée pour produire un flux élevé de photons à 60 eV, ce qui a permis de sonder la désaimantation ultrarapide dans le cobalt. De plus, afin d'étudier l'effet de la longueur d'onde d'excitation, diverses techniques d'optique non-linéaire (décrites dans le chapitre 3) ont été exploitées pour générer des impulsions de 400 nm à 1800 nm. Bien que le montage expérimental ait permis l'acquisition de mesures de bonne qualité, il restait complexe et devait être régulièrement maintenu afin d'offrir des performances suffisantes pour l'observation de la désaimantation ultrarapide. Conséquemment, il était mal adapté pour une utilisation routinière. Avant de pousser l'exploration de l'effet de la longueur d'onde de pompe vers l'infrarouge moyen, une entreprise qui apporte son lot de défis, un travail d'optimisation de la méthodologie était donc de mise.

En parallèle à ces travaux, des campagnes expérimentales ont été complétées à l'Institut de Photonique de l'Université Technique de Vienne afin de finalement mesurer la désaimantation ultrarapide au seuil d'absorption N du terbium, à une énergie de 155 eV. Bien que les mesures

aient été complétées en 2018, certains délais ont fait que l'article correspondant a été publié en 2022. Ces résultats sont présentés au chapitre 4.

### **1.3.2 Optimisation de la méthodologie**

La génération d'impulsions dans l'infrarouge moyen requiert plusieurs étapes d'optique non-linéaire, ce qui implique une certaine complexité du montage. Afin d'étendre les mesures de la désaimantation dans le cobalt à des longueurs d'onde de pompe qui correspondent à l'infrarouge moyen, il est donc préférable de simplifier la prise de mesure. Ainsi, on s'assure qu'il sera possible d'acquérir une grande quantité de données de qualité. La première étape des travaux d'optimisation de la méthodologie a donc visé l'amélioration du flux de photons générés à 60 eV, ce qui aurait facilité l'alignement quotidien du montage et accéléré la prise de mesures. Tel que présenté au chapitre 6, la découverte d'une nouvelle manière de contrôler les caractéristiques spectrales et temporelles d'impulsions laser a permis de développer une nouvelle méthode d'optimisation de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Bien que cette méthode comporte plusieurs avantages, son implémentation n'a ultimement pas été suffisante pour améliorer significativement le flux de photons XUV.

À la suite de cette étude, des contraintes externes nous ont poussés à changer de stratégie. En effet, nous avons dû déménager le laboratoire dans un autre local, ce qui nous a forcé à désassembler entièrement le montage expérimental. Le laboratoire est alors resté inaccessible pendant plusieurs mois. À sa réouverture, le montage a été réinstallé, mais il est demeuré peu accessible car la source laser était en demande par plusieurs utilisateurs du laboratoire ALLS. En effet, comme la génération d'harmoniques requiert un faisceau laser de haute intensité, il n'est pas possible de n'utiliser qu'une partie de l'énergie offerte par le système laser pour cette expérience. Une autre solution, plus simple à implémenter et qui permet de travailler en parallèle avec d'autres utilisateurs, a donc dû être envisagée.

Bien qu'elles comportent certains désavantages, les méthodes de mesure de l'aimantation issues de l'effet Kerr magnéto-optique ont un atout non négligeable; elles sont très simples à implémenter et à utiliser. Cependant, comme le signal magnétique est faible, elles nécessitent d'être optimisées. Lors d'un stage effectué en 2018 au Laboratoire de Chimie Physique – Matière et Rayonnement de la Sorbonne Université, à Paris, une analyse des configurations possible du montage expérimental a été complétée. Cette analyse est décrite dans le chapitre 7. La configuration offrant le signal magnétique le plus intense a ainsi été choisie et le montage a été installé dans le nouvel espace de laboratoire fourni à ALLS.

### 1.3.3 Mesures par effet Kerr magnéto-optique

Finalement, des mesures de la désaimantation dans le cobalt pour de multiples longueurs d'onde de la pompe ont été complétées. Les longueurs d'ondes utilisées avec le montage par effet Kerr magnéto-optique se trouvent dans le proche infrarouge et l'infrarouge moyen, avec un maximum de 8.7  $\mu\text{m}$ . Ces résultats sont présentés au chapitre 8.

## 1.4 Division des chapitres

Au chapitre 2, la théorie entourant le magnétisme est développée. D'abord, la section 2.1 introduit l'origine de l'aimantation dans un atome libre ainsi que dans les solides. La section 2.2 contient une discussion sur les dynamiques de l'aimantation dans les matériaux magnétique, leurs origines et l'échelle de temps sur lesquelles elles se produisent. La section 2.3 contient une revue de littérature sur la désaimantation ultrarapide, sa découverte et les mécanismes microscopiques ayant été proposés pour expliquer son origine. Finalement, la section 2.4 contient une discussion sur les différentes méthodes optiques pouvant être utilisées pour sonder l'aimantation ainsi que la désaimantation ultrarapide.

Les différents procédés d'optique non-linéaire dont découlent les sources de lumières utilisées dans ces travaux sont décrites au chapitre 3. Dans la section 3.1, la génération de sources de différentes longueurs d'ondes à partir de procédés non-linéaires dans des cristaux est présentée. La section 3.2 traite de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, qui permet de produire des photons dans l'ultraviolet extrême à partir de systèmes laser titane-saphir ou ytterbium.

L'article intitulé *Ultrafast magnetic scattering on ferrimagnets enabled by a bright Yb-based soft x-ray source* est introduit au chapitre 4 [18]. Dans cet article, la désaimantation au seuil d'absorption  $N$  du terbium est étudiée.

Au chapitre 5, l'article intitulé *Wavelength scaling of ultrafast demagnetization in Co/Pt multilayers* est introduit [14]. Cet article décrit comment la désaimantation du cobalt dépend de la longueur d'onde dans le visible ainsi que dans le proche infrarouge.

Le chapitre 6 introduit l'article nommé *Raman Red-Shift Compressor: A Simple Approach for Scaling the High Harmonic Generation Cut-Off* [19]. Cet article présente une nouvelle méthode pour concevoir des sources de génération d'harmoniques d'ordres élevés adaptées à des applications spécifiques.

Au chapitre 7, l'article intitulé *Analytic description and optimization of magneto-optical Kerr measurements* est introduit [20]. Cet article contient une description théorique des différentes

configurations possibles pour les montages basés sur l'effet Kerr magnéto-optique.

Le chapitre 8 contient une discussion sur la désaimantation ultrarapide dans l'infrarouge moyen. Les résultats présentés sont mesurés par l'effet Kerr magnéto-optique dans un échantillon multicouche de cobalt/platine entre les mois de juillet 2021 et août 2022. Un manuscrit sur le sujet sera préparé pour la fin de l'année 2022 avec soumission à l'hiver 2023.

Finalement, le chapitre 9 conclut ce document avec une discussion de synthèse ainsi qu'un retour sur les objectifs de ces travaux.

Les annexes I (chapitre 11), II (chapitre 12) et III (chapitre 13) contiennent le matériel supplémentaire associé aux articles présentés aux chapitres 4, 5 et 7, respectivement.

## 2 MAGNÉTISME ET DÉSAIMANTATION ULTRARAPIDE

---

### 2.1 Origine de l'aimantation

#### 2.1.1 Magnétisme dans l'atome

Le moment magnétique d'un atome, une quantité vectorielle qui définit sa tendance à s'aligner avec un champ magnétique, est défini principalement par les électrons qui orbitent le noyau atomique. En effet, la participation du noyau atomique est faible et peut être négligée [21]. Les électrons, quant à eux, apportent deux types de contribution au moment magnétique total : le moment magnétique orbital et le moment magnétique de spin. Le moment magnétique orbital est causé par le mouvement de l'électron, une particule chargée, autour du noyau atomique. Classiquement, on peut considérer qu'un électron en orbite circulaire forme une boucle de courant. Si  $\vec{r}$  représente la position de l'électron et  $\vec{v}$  sa vitesse, le moment magnétique associé à cette boucle de courant est :

$$\begin{aligned}\vec{\mu}_L &= -\frac{g_L e}{2} \vec{r} \times \vec{v} \\ &= -\frac{g_L e}{2m_e} \vec{L}_e,\end{aligned}\tag{2.1}$$

où  $e$  est la charge élémentaire,  $m_e$  est la masse de l'électron,  $\vec{L}_e$  est son moment cinétique et  $g_L$  est le facteur de Landé, une constante sans dimensions qui permet de relier le moment cinétique au moment magnétique et qui est égale à 1 pour le mouvement orbital. En réalité, le moment cinétique d'un électron en orbite autour d'un noyau atomique est quantifié en unités de la constante de Planck  $\hbar$ . En utilisant la définition du magnéton de Bohr  $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e}$ , le moment magnétique orbital devient donc :

$$\vec{\mu}_L = -g_L \mu_B \vec{L}_e.\tag{2.2}$$

Comme son nom l'indique, le moment magnétique de spin provient du spin de l'électron. Il correspond à :

$$\vec{\mu}_s = -g_s \mu_B \vec{S}_e,\tag{2.3}$$

où  $g_s \approx 2$  est le facteur de Landé pour le spin de l'électron et  $\vec{S}_e$  est le spin de l'électron.

Le moment magnétique total d'un atome correspond donc à la superposition des moments magnétiques des électrons individuels :

$$\vec{\mu} = -g_J \mu_B \vec{J}, \quad (2.4)$$

où  $\vec{J}$  est le moment cinétique total de l'atome, soit la somme du moment cinétique orbital total  $\vec{L}$  et du moment cinétique de spin total  $\vec{S}$ , et  $g_J$  est le facteur de Landé correspondant, donné par :

$$g_J = \frac{3}{2} + \frac{S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}. \quad (2.5)$$

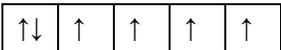
Il existe certaines contraintes sur les valeurs possible de  $J$ . En effet, afin de minimiser l'énergie de l'atome, sa configuration électronique doit tenir compte de l'interaction spin-orbite. Pour un atome dans son état fondamental, la combinaison des moments cinétiques peut être estimée par les règles de Hund, qui définissent également l'ordre de remplissage d'une sous-couche électronique [22]. Les règles de Hund sont définies comme suit :

1. Le spin total  $S$  doit d'abord être maximisé. Puisque des électrons dans le même état de spin ne peuvent partager la même orbitale en vertu du principe d'exclusion de Pauli, il ne peut exister que 2 électrons par orbitale. En plaçant d'abord des électrons de même spin dans des orbitales différentes, les électrons s'évitent et l'interaction de Coulomb est minimisée. Le spin total  $S$  correspond alors à la somme des projections de spins ( $+\frac{1}{2}$  ou  $-\frac{1}{2}$ ) des électrons non-appariés de l'atome.
2. Ensuite, le moment cinétique orbital total  $L$  doit être maximisé. Puisque des électrons orbitant dans la même direction ont moins de chance de se rencontrer, ceci minimise également l'interaction de Coulomb. Le moment cinétique orbital total  $L$  correspond à la somme des projections du moment cinétique orbital de chaque électron, qui peuvent prendre les valeurs suivantes :  $m_l = \{-l, -l+1, \dots, l-1, l\}$ , où  $l$  est déterminé par le nombre quantique secondaire associé à la sous-couche électronique.
3. Finalement, la valeur du moment magnétique total est définie comme suit : Si moins de la moitié de la sous-couche électronique est remplie,  $J$  est minimisé, avec  $J = |L - S|$ . Si plus de la moitié de la sous-couche électronique est remplie,  $J$  est maximisé, avec  $J = |L + S|$ . Si la sous-couche électronique est remplie à moitié,  $L = 0$  et  $J = S$ .

Le Tableau 2.1 présente l'occupation des orbitales de certains atomes magnétiques ainsi que la valeur du moment magnétique total  $J$  calculé à partir des règles de Hund. Par exemple, le cobalt a 7 électrons dans la sous-couche  $d$  ( $l = 2$ ), pour laquelle  $m_l$  peut prendre 5 valeurs différentes. Suivant la première règle, les 5 premiers électrons prennent la valeur maximale de la projection de spin, soit  $+\frac{1}{2}$ , et sont placés dans des orbitales différentes. Il n'est alors plus possible d'ajouter

des électrons avec ce spin. Par conséquent, les deux électrons restants doivent prendre un spin  $-\frac{1}{2}$  et, en accord avec la deuxième règle, être placés dans les orbitales qui permettront de maximiser  $L$ . Ainsi, ils sont placés dans les orbitales pour lesquelles la projection du moment cinétique orbital est  $m_l = 2$  et  $m_l = 1$ . Puisque la sous-couche électronique est plus d'à moitié remplie, on a  $J = |L + S| = \frac{9}{2}$ .

**Tableau 2.1 Occupation des orbitales**

Élément	Configuration électronique	Remplissage de la dernière sous-couche	$S$	$L$	$J$
Fe	[Ar] 4s <sup>2</sup> 3d <sup>6</sup>	$m_l:$ 2 1 0 -1 -2 	2	2	4
Co	[Ar] 4s <sup>2</sup> 3d <sup>7</sup>	$m_l:$ 2 1 0 -1 -2 	3/2	3	9/2
Tb	[Xe] 6s <sup>2</sup> 4f <sup>9</sup>	$m_l:$ 3 2 1 0 -1 -2 -3 	5/2	5	15/2

Remplissage de la dernière sous-couche électronique de certains atomes magnétiques. Les flèches  $\uparrow$  et  $\downarrow$  indiquent la présence d'un électron de spin  $+\frac{1}{2}$  ou  $-\frac{1}{2}$ , respectivement. Les valeurs de  $S$ ,  $L$  et  $J$  prédites par les règles de Hund sont également présentées.

### 2.1.2 Magnétisme dans les solides

La section précédente décrit le moment magnétique d'un atome seul. Toutefois, lorsque l'atome se trouve dans un solide et partage ses électrons via diverses interactions chimiques, son moment magnétique en est affecté. En fait, dans la plupart des matériaux, les moments cinétiques de spin sont compensés lors de la formation des liens interatomiques et le moment magnétique de l'ensemble du solide s'annule. Ce n'est pas le cas pour les métaux de transition et les terres rares dont les sous-couches électroniques 3d et 4f sont incomplètes, respectivement. Néanmoins, même dans ces matériaux, le moment magnétique atomique est réduit par rapport à un atome libre.

Lorsque des atomes sont approchés les uns des autres pour former un solide, les couches électroniques s'élargissent en énergie pour former des bandes électroniques. Dû à des considérations énergétiques qui seront présentées plus loin, la densité électronique de certaines bandes peut dépendre de la configuration de spin des électrons qu'elle contient. Entre deux bandes croisant l'énergie de Fermi et ayant des configurations de spin opposées, celle qui contient le plus d'électrons est définie comme porteuse de spins **majoritaires** alors que la bande

qui contient le moins d'électrons est porteuse de spins dits **minoritaires**.

Pour minimiser l'énergie totale du système, la structure électronique résultant de la formation du solide doit notamment minimiser la répulsion coulombienne entre les électrons associés aux ions voisins. La structure de bande dépend donc sévèrement de l'arrangement des atomes dans le solide. Dans un cristal, certaines orbitales des sous-couches  $d$  et  $f$  possèdent un recouvrement plus fort que d'autres avec les couches électroniques des ions voisins. Alors, l'énergie associée à ces orbitales est plus élevée et la dégénérescence est levée. Prenons l'exemple d'un atome d'un métal de transition avec une sous-couche  $3d$ , dont l'étendue spatiale des orbitales est représentée à la Figure 2.1. Si un tel atome est placé dans un cristal de symétrie octaédrique, les orbitales  $d_{x^2-y^2}$  et  $d_{z^2}$ , aussi nommés niveaux  $e_g$ , ont un recouvrement fort avec les couches électroniques des ions adjacents. Par contraste, les orbitales  $d_{xy}$ ,  $d_{xz}$  et  $d_{yz}$ , aussi nommées niveaux  $t_{2g}$ , chevauchent peu les couches électroniques voisines et sont favorisées énergiquement. Ainsi, il peut être préférable de remplir en priorité les niveaux  $t_{2g}$  plutôt que de maximiser le moment total de spin. Le moment magnétique de l'atome dans le solide est alors réduit par rapport à ce dont on s'attendrait en suivant les règles de Hund.

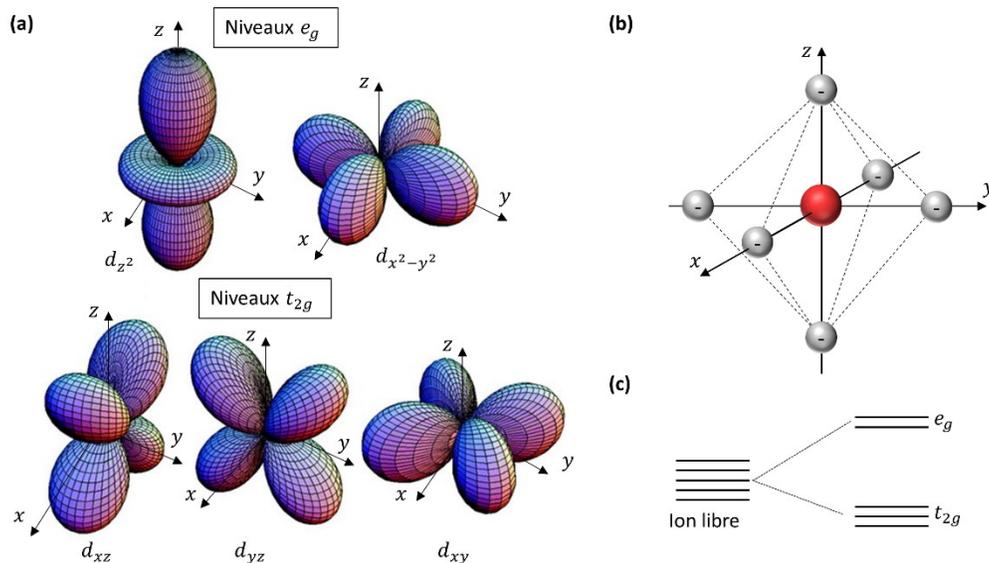


Figure 2.1 Formation des bandes  $d$  et  $f$  dans un métal

(a) Schéma de la distribution angulaire des orbitales de la sous-couche électronique  $d$ . Adapté de Tokura *et al.*, *Science* 288, pp. 462-468 (2000) [23]. Reproduit avec l'autorisation de AAAS. (b) Configuration atomique d'un cristal à symétrie octaédrique. Les orbitales  $e_g$  pointent vers les ions avoisinants. (c) Dégénérescence des orbitales.

Le champ cristallin a une influence importante sur le magnétisme des métaux de transition. En fait, dans ces matériaux, la contribution du champ cristallin est plus forte que celle du couplage

spin-orbite. En conséquence, la configuration préférée par le système ne répond pas aux règles de Hund et le moment magnétique orbital approche souvent zéro [21]. Dans les terres rares, par contre, la sous-couche électronique 4*f* est localisée près du noyau atomique et les électrons qui remplissent ces orbitales participent très peu aux liens interatomiques. En effet, les électrons 4*f* sont protégés par les électrons des sous-couches 5*s*, 5*p* et 6*s*, qui sont plus étendues autour du noyau atomique [22,24]. Pour cette raison, le champ cristallin a beaucoup moins d'influence sur le magnétisme des terres rares. Dans ce type de solide, le moment magnétique des atomes individuels correspond bien aux règles de Hund. Ces considérations ont une incidence importante sur l'ordre magnétique global du solide.

### **2.1.3 Sources d'ordre magnétique**

Dans la section précédente, nous avons examiné le moment atomique d'un atome dans un solide. Pour que le solide présente des caractéristiques magnétiques globales comme l'aimantation, il est nécessaire que l'ensemble des moments magnétiques atomiques soient ordonnés, ce qui implique des interactions entre les moments magnétiques. Il existe plusieurs types d'interactions magnétiques avec une influence plus ou moins importante sur l'ordre magnétique global du solide. Les principales sources d'ordre magnétique sont l'anisotropie magnétique, qui définit l'orientation privilégié des moments magnétiques atomiques dans un cristal, l'interaction d'échange, qui est ultimement responsable pour les états ferromagnétiques et antiferromagnétiques, et l'interaction de Zeeman, qui décrit la réponse du solide à un champ magnétique extérieur.

#### Anisotropie magnétique

L'anisotropie magnétique est le produit d'un ensemble de phénomènes dont le résultat est de privilégier l'alignement de l'aimantation d'un solide parallèlement à un axe, nommé « axe facile ». L'anisotropie magnéto-cristalline et l'anisotropie de forme sont les principaux acteurs de l'anisotropie magnétique, qui est également influencée par les déformations mécaniques et la température.

L'anisotropie magnéto-cristalline est causée par l'interaction spin-orbite. Lors de la formation d'un solide, les moments cinétiques orbitaux s'alignent préférentiellement dans certaines orientations afin d'accommoder le réseau atomique. À travers les interactions spin-orbitales, les spins sont alors couplés au réseau atomique. Certaines orientations du moment magnétique de spin sont ainsi favorisées par le réseau cristallin. Par exemple, dans une monocouche atomique, les orbitales se trouvant dans le plan sont fortement affectées par les interactions coulombiennes avec les

ions voisins alors que les orbitales comprenant des excursions hors-plan ressentent moins ces pressions. Les moments magnétiques orbitaux correspondants aux orbitales hors-plan sont donc favorisés. Dans un système multicouche avec, en alternance, des couches minces de matériau magnétique et non-magnétique, cet effet peut être inversé. Dans de tels systèmes, l'axe facile est orienté perpendiculairement au plan formé par les couches minces [24].

L'anisotropie de forme est un résultat des interactions dipolaires entre les moments magnétiques atomiques. Pour deux moments magnétiques colinéaires (la colinéarité est un résultat de l'interaction d'échange), la configuration la plus favorable énergétiquement est celle pour laquelle les dipôles sont alignés l'un derrière l'autre et orientés dans la même direction. Dans une couche mince, l'anisotropie de forme privilégie donc les moments magnétiques parallèles au plan [22]. Dans un système multicouche, l'anisotropie de forme et l'anisotropie magnéto-cristalline peuvent avoir des effets opposés. L'orientation de l'axe facile dépend alors de l'amplitude de chaque contribution; l'axe facile du système sera hors-plan si l'énergie associée à l'anisotropie magnéto-cristalline est plus grande que l'énergie dipolaire, et vice-versa.

#### Interaction d'échange

L'interaction d'échange est responsable de l'alignement colinéaire des moments de spin dans les matériaux magnétiques. Elle est causée par la répulsion de Coulomb ainsi que par le principe d'exclusion de Pauli, qui stipule que deux électrons ne peuvent être dans des états identiques. Pour un système simple à deux électrons, par exemple une molécule de  $H_2$ , cette condition implique que les électrons ne peuvent se trouver au même endroit s'ils ont le même spin. Mathématiquement, le principe d'exclusion de Pauli impose que la fonction d'onde conjointe des deux électrons soit antisymétrique. La fonction d'onde totale, soit le produit de la fonction spatiale  $\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  et de la fonction de spin  $\chi(s_1, s_2)$ , doit donc respecter :

$$\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\chi(s_1, s_2) = -\phi(\vec{r}_2, \vec{r}_1)\chi(s_2, s_1). \quad (2.6)$$

Ainsi, si les électrons sont échangés, la densité de probabilité  $|\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\chi(s_1, s_2)|^2$  reste la même, tel qu'attendu pour des particules identiques. L'équation (2.6) est validée si  $\phi$  est antisymétrique et  $\chi$  est symétrique, ou vice-versa.

Dans un système à deux électrons, les fonctions de spin symétrique et antisymétrique correspondent à l'état triplet et singulet, respectivement. En effet, le spin total peut être  $S = 0$  ou  $S = 1$ . Lorsque  $S = 0$ , une seule projection de spin est possible, soit  $m_s = 0$ . Cet état correspond à l'état de spin singulet :

$$\chi_S = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow, \downarrow\rangle - |\downarrow, \uparrow\rangle). \quad (2.7)$$

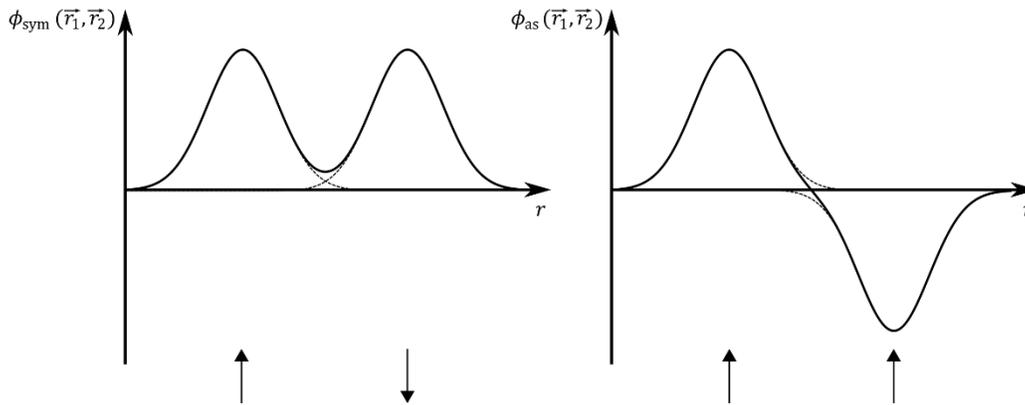
Lorsque  $S = 1$ , trois projections de spin sont possibles, soit  $m_s = \{+1, 0, -1\}$ . Ceci correspond à l'état de spin triplet :

$$\chi_T = \left\{ |\uparrow, \uparrow\rangle, |\downarrow, \downarrow\rangle, \frac{1}{\sqrt{2}} [|\uparrow, \downarrow\rangle + |\downarrow, \uparrow\rangle] \right\}. \quad (2.8)$$

Les fonctions d'onde spatiales symétrique  $\phi_{\text{sym}}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  et antisymétriques  $\phi_{\text{as}}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  du même système à deux électrons sont représentés à la Figure 2.2. Elles sont construites à partir des fonctions d'onde individuelles de chaque électron :

$$\begin{aligned} \phi_{\text{sym}}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\psi_a(\vec{r}_1)\psi_b(\vec{r}_2) + \psi_a(\vec{r}_2)\psi_b(\vec{r}_1)] \\ \phi_{\text{as}}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\psi_a(\vec{r}_1)\psi_b(\vec{r}_2) - \psi_a(\vec{r}_2)\psi_b(\vec{r}_1)]. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Comme la fonction spatiale antisymétrique croise 0, il n'est pas possible que les électrons se retrouvent au même endroit. Au contraire, la fonction spatiale symétrique permet la superposition spatiale des deux électrons, mais dans ce cas les électrons n'ont pas le même spin (état singulet) et le principe d'exclusion de Pauli est respecté.



**Figure 2.2 Fonctions d'onde spatiales d'un système à deux électrons**

**Fonction d'onde spatiale symétrique (à gauche) et antisymétrique (à droite) d'un système à deux électrons tel qu'une molécule de  $H_2$ . Les flèches indiquent une orientation possible des spins pour chaque cas.**

L'énergie associée aux états singulet et triplet peut être calculée à partir de l'Hamiltonien  $\mathcal{H}$  :

$$\begin{aligned}
E_S &= \int \phi_{\text{sym}}^*(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \chi_S^*(s_1, s_2) \mathcal{H} \phi_{\text{sym}}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \chi_S(s_2, s_1) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \\
E_T &= \int \phi_{\text{as}}^*(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \chi_T^*(s_1, s_2) \mathcal{H} \phi_{\text{as}}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \chi_T(s_2, s_1) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2
\end{aligned} \tag{2.10}$$

La différence d'énergie entre les états est donc :

$$E_S - E_T = 2 \int \psi_a^*(\vec{r}_1) \psi_b^*(\vec{r}_2) \mathcal{H} \psi_a(\vec{r}_2) \psi_b(\vec{r}_1) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 = 2J. \tag{2.11}$$

L'intégrale d'échange,  $J$ , reflète la levée de la dégénérescence des états singulet et triplet. Si  $J$  est positif, l'état triplet est favorisé et les spins ont tendance à s'aligner dans la même orientation, ce qui correspond à la phase ferromagnétique. Si  $J$  est négatif, les spins s'alignent de façon antiparallèle, ce qui correspond à la phase antiferromagnétique.

Pour un solide, l'énergie d'échange contient les contributions de chaque paire d'atomes. Elle est donnée sous la forme :

$$E_{ex} = -2 \sum_{i < j} J_{i,j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j, \tag{2.12}$$

où  $\vec{S}_i$  et  $\vec{S}_j$  sont les moments de spins des atomes individuels et  $J_{i,j}$  est la constante d'échange de la paire d'atomes aux sites  $i$  et  $j$ . Il s'agit du modèle de Heisenberg. À partir de l'équation (2.12), il est évident que l'interaction d'échange mène à un ordre magnétique, car les spins doivent être colinéaires pour minimiser l'énergie d'échange. Par contre, l'interaction d'échange est isotrope; elle ne contraint pas l'orientation des spins vers une direction particulière. La définition de l'axe facile ne passe donc pas par l'interaction d'échange.

L'interaction d'échange peut se faire de façon directe entre atomes voisins, ou de façon indirecte, soit par l'entremise d'électrons provenant d'ions voisins ou encore en faisant intervenir des électrons délocalisés de la bande de conduction. Ce dernier type d'interaction est aussi nommé interaction RKKY<sup>1</sup>. Dans les métaux de transition, les orbitales 3d rejoignent suffisamment les orbitales des ions voisins pour que l'échange direct joue un rôle substantiel. Dans les terres rares, étant donné que les orbitales 4f localisées près des noyaux atomiques interagissent peu avec les orbitales des ions voisins, c'est l'interaction RKKY qui domine.

Interaction Zeeman

L'effet Zeeman décrit l'interaction entre un moment magnétique et un champ magnétique externe.

---

<sup>1</sup> En l'honneur aux chercheurs ayant découvert le phénomène : Ruderman, Kittel, Kasuya et Yosida.

C'est ce type d'interaction qui permet d'aligner l'aimantation de matériaux magnétiques dans une direction donnée en les plongeant dans un champ magnétique. Pour un solide d'aimantation  $\vec{M}$  dans un champ magnétique externe  $\vec{H}_{\text{ex}}$ , l'énergie associée à l'interaction Zeeman est [21]:

$$E_Z = -\mu_0 \int \vec{M} \cdot \vec{H}_{\text{ex}} dV. \quad (2.13)$$

L'intégrale est faite sur le volume du solide. L'énergie potentielle du solide est donc minimisée si son aimantation est alignée dans la direction du champ magnétique externe. Si le champ magnétique est suffisamment puissant, il est possible de surmonter les interactions spin-orbite et d'aligner les moments magnétiques parallèlement à l'axe difficile.

#### 2.1.4 Phases magnétiques

Les différents ordres magnétiques possibles peuvent être divisés en cinq catégories : le diamagnétisme, le paramagnétisme, le ferromagnétisme, l'antiferromagnétisme et le ferrimagnétisme.

##### Diamagnétisme

Dans les matériaux diamagnétiques, les moments magnétiques atomiques sont nuls. Par contre, lorsque le matériau est placé dans un champ extérieur, une faible aimantation est générée dans la direction opposée au champ. La plupart des matériaux sont faiblement diamagnétiques.

##### Paramagnétisme

Les matériaux pour lesquels les moments magnétiques atomiques sont non-nuls, mais qui ne présentent pas d'ordre magnétique global sont dits paramagnétiques. C'est le cas par exemple des terres rares à la température de la pièce. Dans ces matériaux, l'interaction entre les moments magnétiques atomiques est trop faible pour compenser les fluctuations thermiques et causer un ordre magnétique, mais l'application d'un champ magnétique extérieur provoque l'alignement graduel des moments magnétiques parallèlement au champ.

##### Ferromagnétisme

Lorsque l'interaction d'échange favorise l'alignement parallèle des moments magnétiques atomiques, le matériau est dit ferromagnétique. Ces matériaux présentent une aimantation forte. Il s'agit par exemple du fer, du cobalt, du nickel et des terres rares sous leur température de Curie. La température de Curie,  $T_C$ , correspond à la température au-dessus de laquelle les fluctuations thermiques deviennent trop forte pour que l'ordre magnétique soit conservé; le

matériau devient alors paramagnétique.

Dans les matériaux ferromagnétiques, l'aimantation est toujours saturée pour une région microscopique. Cependant, il n'est pas toujours énergétiquement favorable d'aligner tous les moments magnétiques d'une région macroscopique du matériau. Le matériau est plutôt divisé en domaines magnétiques microscopiques dans lesquels l'aimantation est saturée et l'aimantation des domaines adjacents prend différentes orientations. La formation de ces domaines permet de minimiser l'énergie magnétostatique, qui est causée par la présence de pôles magnétiques libres à la surface du matériau. La présence de plusieurs domaines réduit la portée du champ magnétique généré, ce qui est énergétiquement avantageux [24,25]. Les domaines sont séparés par des murs de domaines formés de moments magnétiques qui ne sont pas colinéaires et qui ont donc une énergie d'échange élevée. La taille des domaines dépend de la balance entre l'énergie requise pour la formation des murs de domaines et l'énergie magnétostatique qui est épargnée en réduisant la taille des domaines.

Antiferromagnétisme

Lorsque l'interaction d'échange favorise l'alignement antiparallèle des moments magnétiques atomiques, le matériau est dit antiferromagnétique. Dans ces matériaux, le réseau cristallin est divisé en deux sous-réseaux enchevêtrés composés d'atomes ayant des moments magnétiques égaux mais de direction opposée. L'aimantation totale est donc nulle. Similairement aux matériaux ferromagnétiques, les matériaux antiferromagnétiques deviennent paramagnétiques lorsqu'ils sont chauffés au-delà d'une température critique, la température de Néel.

Ferrimagnétisme

Le ferrimagnétisme s'apparente à l'antiferromagnétisme, mais dans le cas où l'aimantation des sous-réseaux n'est pas équivalente. Alors, le matériau a une aimantation totale non-nulle. Les propriétés magnétiques de ces matériaux sont semblables à celles des matériaux ferromagnétiques. Parfois, il existe aussi une température de compensation à laquelle l'aimantation des deux sous-réseaux s'égalise, donc l'aimantation totale s'annule. Les ferrites ainsi que les alliages de métaux de transitions et de terres rares sont des exemples de matériaux ferrimagnétiques.

## **2.2 Dynamiques de l'aimantation**

Plusieurs méthodes peuvent être utilisés pour affecter l'ordre magnétique d'un matériau ferromagnétique ou ferrimagnétique afin de le désaimanter ou d'inverser le sens de son

aimantation. Il est possible de plonger le matériau dans un champ magnétique externe, d'utiliser des impulsions de champ magnétique, des impulsions de courant électrique ou des impulsions de lumière. Les types de dynamiques qui rendent ces méthodes possibles ainsi que les échelles de temps qui y sont associées sont représentées à la Figure 2.3.

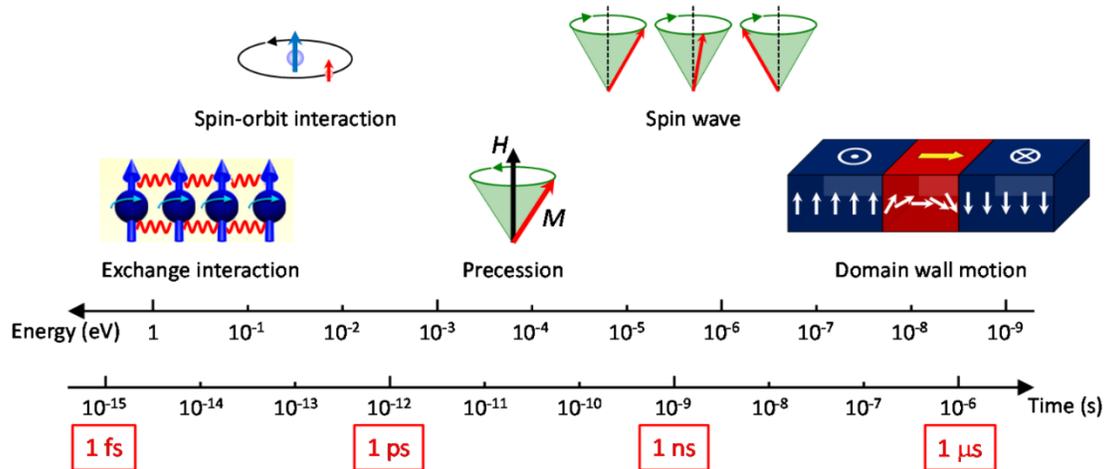


Figure 2.3 Échelles de temps des dynamiques magnétiques

Principaux types de dynamiques et l'échelle de temps qui leur est associée. L'interaction d'échange et l'interaction spin-orbite se produisent en quelques femtosecondes. La précession des moments magnétiques se produit plus lentement, en quelques picosecondes. La formation d'ondes de spins, qui sont intimement liées à la précession, a lieu dans le régime nanoseconde. Le mouvement des murs de domaines nécessite plusieurs nanosecondes. Tiré de Matsubara *et al.*, *Applied Sciences* 9, p. 948 (2019), DOI : 10.3390/app9050948 [26].

Lorsqu'un matériau ferromagnétique ou ferrimagnétique est submergé dans un champ magnétique extérieur, les domaines pour lesquels l'aimantation est orientée dans la direction du champ sont favorisés et s'agrandissent au détriment des autres domaines. Alors, l'aimantation totale du matériau augmente jusqu'à une valeur maximale, soit l'aimantation à saturation. C'est ce qui explique l'hystérésis qui se forme lorsque l'aimantation totale est mesurée en fonction de l'intensité du champ magnétique extérieur (voir la Figure 2.4). Lorsqu'un champ magnétique fort est appliqué, tous les moments magnétiques s'alignent au champ extérieur et l'aimantation totale est saturée. Si le champ est réduit, des domaines magnétiques d'aimantation opposée se forment afin de réduire l'énergie magnétostatique. Cependant, même si le champ est retiré, il n'est pas énergétiquement favorable de former assez de domaines pour annuler l'aimantation totale dans le cas de matériaux fortement magnétiques tels que les métaux de transition. L'aimantation à champ nul est nommée aimantation de rémanence. Finalement, pour inverser l'orientation de l'aimantation, un champ magnétique opposé plus intense que le champ coercitif doit être appliqué. Ces dynamiques reposent en grande partie sur les mouvements des murs de domaines et sont donc confinées aux régimes nanoseconde à microseconde.

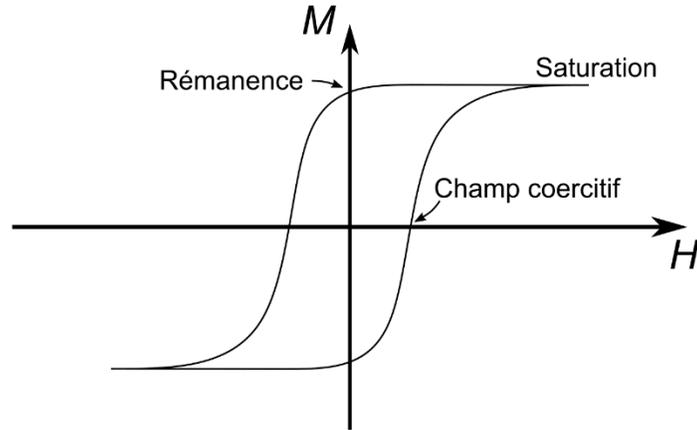


Figure 2.4 Courbe d'hystérésis magnétique

Exemple d'hystérésis magnétique formé par l'aimantation totale du matériau,  $M$ , alors que le champ magnétique externe,  $H$ , varie. L'aimantation de saturation est obtenue lorsque tous les moments magnétiques sont alignés avec le champ magnétique appliqué. Le champ coercitif correspond au champ qui doit être appliqué pour réduire l'aimantation à zéro. La rémanence correspond à l'aimantation qui subsiste lorsque le champ magnétique est retiré.

Alternativement, il est possible d'utiliser des impulsions magnétiques ou de courants électriques pour induire une précession des moments magnétiques [27–30]. Cette précession mène éventuellement à la désaimantation ou à l'inversion de l'aimantation du matériau. Ces méthodes permettent d'influencer l'aimantation dans le régime picoseconde.

En utilisant des impulsions de lumière ultracourtes, il est possible d'induire une perte de l'aimantation globale du matériau en une centaine de femtosecondes seulement [8,31]. C'est la désaimantation ultrarapide. Il s'agit de la seule méthode connue permettant d'influencer l'ordre magnétique macroscopique sur une échelle de temps aussi courte.

En résumé, le mouvement des murs de domaines se produit assez lentement, soit sur une échelle de temps nanoseconde. La précession du moment magnétique est plus rapide, mais ne permet tout de même pas de passer sous la picoseconde. Le mouvement des murs de domaines et la précession correspondent simplement à une réorientation des moments magnétiques. Pour influencer l'aimantation sur des échelles de temps femtoseconde, il faut exploiter des dynamiques associées à une échelle de temps très courte comme l'interaction d'échange, ce qui implique plutôt d'agir directement sur les moments cinétiques de spins.

Les mécanismes microscopiques qui régissent la désaimantation ultrarapide sont encore débattus, mais il est clair que ce phénomène est causée au moins en partie par un déficit de moment cinétique de spin [32,33]. Il est important de noter que le moment cinétique total doit être

conservé. Donc, une perte de moment cinétique de spin doit être compensée par un transfert de moment cinétique vers un autre système. Tel que décrit dans la section suivante, il s'agit là d'un thème central de la recherche portant sur les mécanismes microscopiques de la désaimantation ultrarapide.

## 2.3 Désaimantation ultrarapide

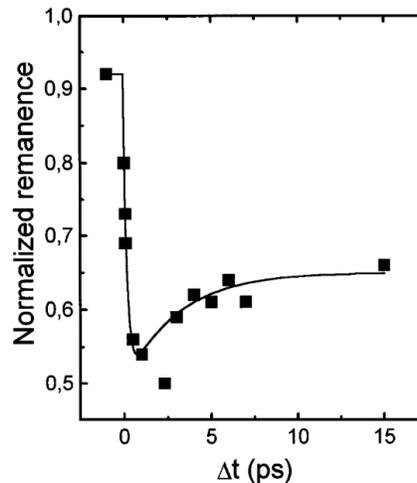
### 2.3.1 Découverte

Avant 1996, la vitesse la plus rapide observée pour la désaimantation d'un matériau ferromagnétique avait été rapportée par Vaterlaus *et al.* [34,35], qui mesurent des dynamiques se produisant en  $100 \pm 80$  ps lorsqu'un échantillon de gadolinium est excité par une impulsion laser nanoseconde. Ces dynamiques sont attribuées au temps de relaxation entre le système de spins et le réseau atomique. À l'époque, on a de bonnes raisons de croire que les dynamiques de l'aimantation doivent nécessairement s'étaler sur plusieurs dizaines de picosecondes, car il s'agit là du temps caractéristique connu de relaxation entre ces deux systèmes [36]. Cependant, toutes les études menées jusque-là exploitent des impulsions laser picoseconde ou nanoseconde. À ces échelles de temps, les électrons ont amplement le temps d'atteindre l'équilibre thermodynamique. Ces études ne peuvent donc pas accéder à l'effet de la relaxation entre les électrons et le système de spin sur les dynamiques de l'aimantation.

En 1996, Beaurepaire *et al.* [7] démontrent pour la première fois que les dynamiques de l'aimantation peuvent se produire sur une échelle de temps femtoseconde. Dans cette expérience, une couche mince de 22 nm de nickel ferromagnétique protégée par une couche de 100 nm de  $MgF_2$  est excitée par une impulsion laser de 60 fs. Une seconde impulsion laser permet de sonder l'aimantation de l'échantillon à différents délais par l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE). Les auteurs observent ainsi la désaimantation de l'échantillon en moins d'une picoseconde (voir la Figure 2.5).

Initialement, la nature de cette observation est débattue, car le signal obtenu par MOKE peut contenir une contribution importante d'effets non magnétiques lorsque le système est loin de l'équilibre, ce qui est le cas pour les premières centaines de femtosecondes après l'excitation [37–39]. Malgré tout, de multiples observations dans différents matériaux corroborent les résultats de Beaurepaire *et al.* Diverses études sont complétées à partir de différentes techniques qui incluent l'effet Kerr magnéto-optique [40,41], mais aussi la détection du signal de second harmonique [42,43], la photoémission à deux photons résolue en spin [44,45], et plus récemment

des techniques résonantes telles que le dichroïsme circulaire magnétique de rayons X [8,46,47], le dichroïsme linéaire magnétique de rayons X [48] et la diffusion magnétique résonante de rayons X [31,49,50]. Les différentes techniques de mesure sont discutées plus en détail à la section 2.4.



**Figure 2.5** Première observation de la désaimantation ultrarapide

Désaimantation ultrarapide dans une couche mince de nickel. Une impulsion de pompe de 60 fs avec une fluence de  $7 \text{ mJ cm}^{-2}$  est appliquée au délai  $\Delta t = 0$ . Chaque point correspond à la rémanence de l'aimantation normalisée par la rémanence de l'échantillon non excité. Figure reproduite avec autorisation de Beaurepaire *et al.*, *Physical Review Letters* 76, pp. 4250-4253 (1996), DOI : 10.1103/PhysRevLett.76.4250 [7]. © 1996 de l'American Physical Society.

Pour expliquer leur observation, les auteurs de [7] présentent un modèle phénoménologique à trois températures (modèle 3T). Ce modèle considère trois systèmes présents dans le solide, soit le système électronique, le système de spin et le réseau atomique. En supposant qu'individuellement, chacun des trois réservoirs est continuellement à l'équilibre, il est possible de leur assigner une température. Tout changement à l'aimantation est alors attribué à la température du système de spins; une température de spins élevée implique un désordre important dans ce système et, donc, une diminution de l'aimantation totale. Après que l'impulsion de pompe ait transféré son énergie au système électronique, un processus qui se produit virtuellement instantanément, le modèle 3T considère l'évolution de la température de spins alors que les trois systèmes échangent de l'énergie. Le modèle 3T étend la portée d'un modèle existant, soit le modèle à deux températures [51], qui décrit la thermalisation du système électronique dans les métaux sans considérer l'effet des spins.

Le modèle qui était préalablement utilisé pour décrire les dynamiques de l'aimantation lors de l'excitation par des impulsions longues (picosecondes à nanosecondes) était également fondé sur le modèle à deux températures [34]. Comme pour le modèle 3T, la température du système

de spins servait de jauge de l'aimantation. Par contre, étant donné que les échelles de temps observées étaient beaucoup plus longues que le temps caractéristique de thermalisation du système électronique, la température de ce système n'était pas incluse dans le modèle. L'ajout de la température électronique est donc une adaptation à l'échelle de temps femtoseconde.

Dans le modèle 3T, l'évolution des températures des différents réservoirs est donnée par trois équations couplées :

$$\begin{aligned}
 C_e(T_e) \frac{dT_e}{dt} &= -G_{el}(T_e - T_l) - G_{es}(T_e - T_s) + P(t) \\
 C_s(T_s) \frac{dT_s}{dt} &= G_{es}(T_e - T_s) - G_{sl}(T_s - T_l) \\
 C_l(T_l) \frac{dT_l}{dt} &= G_{el}(T_e - T_l) + G_{sl}(T_s - T_l).
 \end{aligned} \tag{2.14}$$

où les indices  $e$ ,  $s$  et  $l$  indiquent le système électronique, le système de spins et le réseau atomique<sup>2</sup>, respectivement. Le paramètre  $C_i$  est la contribution à la chaleur spécifique du réservoir dénoté par l'indice  $i$ ,  $T_i$  est la température du réservoir,  $G_{ij}$  est la constante d'interaction qui décrit le taux de transfert d'énergie entre les réservoirs dénotés par les indices  $i$  et  $j$ , et  $P(t)$  est le terme de source qui décrit l'énergie transférée au système électronique par l'impulsion laser. Les constantes d'interaction sont déterminées de façon empirique. La contribution du réservoir électronique à la chaleur spécifique est considérée proportionnelle à la température de ce réservoir, avec  $C_e = \gamma T_e$ . La contribution du réseau  $C_l$  est considérée indépendante de la température du réseau et la contribution du réservoir de spins  $C_s$  est calculée pour satisfaire  $C = C_e + C_l + C_s$ , c'est-à-dire que la chaleur spécifique totale, qui est connue, doit inclure les trois contributions [25]. Le modèle 3T ne tient pas compte de la propagation de la chaleur dans le matériau; on suppose que les températures sont uniformes dans tout l'échantillon.

Chacune des trois équations contient deux termes de la forme  $G_{ij}(T_i - T_j)$  qui décrivent le couplage entre le réservoir en question et les deux autres. Par exemple, la première équation décrit l'évolution de la température électronique. Le premier terme provient du transfert d'énergie entre le système électronique et le réseau. Si  $T_e > T_l$ , ce terme est négatif et contribue à faire diminuer la température électronique. Pour assurer la conservation de l'énergie, ce même terme se retrouve également dans la troisième équation, mais cette fois avec le signe opposé.

La résolution des équations (2.14) permet d'obtenir les dynamiques associées à chaque réservoir. Les différentes interactions entre les réservoirs ainsi que l'évolution de leurs

---

<sup>2</sup> La notation  $l$  provient de l'anglais « *lattice* ».

températures sont représentées à la Figure 2.6. On peut diviser le processus de désaimantation ultrarapide en trois étapes principales : d'abord, le système électronique est chauffé par l'impulsion laser. Ensuite, l'énergie est rapidement transférée au système de spins, dont la température augmente. Cette étape se produit en  $\sim 100$  fs et est associée à une chute abrupte de l'aimantation [52]. Finalement, les systèmes électroniques et de spins s'équilibrent avec le réseau atomique sur plusieurs picosecondes et l'aimantation subit un recouvrement partiel. Sur une échelle de temps beaucoup plus longue, le recouvrement total de l'aimantation peut être observé lorsque toute l'énergie transmise par l'impulsion laser est évacuée hors de l'échantillon.

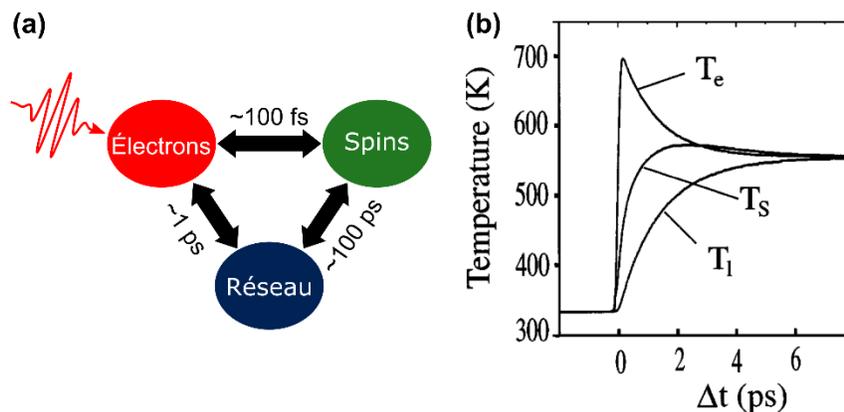


Figure 2.6 Modèle à trois températures

(a) Représentation des interactions entre les réservoirs électroniques, de spins et du réseau ainsi que des échelles de temps qui leur sont associées. (b) Évolution des températures des électrons, des spins et du réseau tel que le prédit le modèle phénoménologique à trois températures. Figure reproduite avec autorisation de Beaurepaire *et al.*, *Physical Review Letters* 76, pp. 4250-4253 (1996), DOI : 10.1103/PhysRevLett.76.4250 [7]. © 1996 de l'American Physical Society.

Le modèle 3T a été le premier modèle permettant de décrire comment l'énergie déposée par l'impulsion laser peut induire la désaimantation ultrarapide du matériau. Par la suite, plusieurs améliorations ont été proposées pour raffiner le modèle [53–57]. Par exemple, en 2010, Koopmans *et al.* présentent le modèle microscopique à trois températures, qui inclut la diffusion électron-phonon afin de tenir compte du transfert de moment cinétique entre les électrons et le réseau [53]. Cet exemple souligne une faiblesse importante du modèle 3T : il ne donne pas de détails quant aux mécanismes microscopiques qui permettent de transférer le moment cinétique de spins vers d'autres réservoirs lors de la désaimantation. Depuis, de nombreuses études se sont attaquées spécifiquement à ce problème.

Les mécanismes microscopiques proposés pour expliquer le comportement des moments cinétiques de spin pendant la désaimantation ultrarapide peuvent être séparés en deux grandes catégories : la diffusion avec renversement du spin et le transport de spins. Les processus de

diffusion avec renversement du spin impliquent une réduction du moment cinétique de spin total et donc de l'aimantation. Par contraste, le transport de spins est un effet local. Par ce processus, les électrons dont le spin est dans l'orientation majoritaire se déplacent en dehors de la région excitée beaucoup plus efficacement que les spins minoritaires, donc l'aimantation est réduite dans cette région. Par contre, l'aimantation totale du solide reste inchangée. Ces deux catégories sont discutées plus en détail dans les sections suivantes.

### 2.3.2 Diffusion avec renversement du spin

Déjà en 1996, Beaurepaire *et al.* [7] suggèrent que les populations de spins majoritaires et minoritaires peuvent être modifiées par la diffusion. En 2005, la diffusion Elliot-Yafet électron-phonon avec renversement du spin est proposée par Koopmans *et al.* [58] comme processus de transfert de moment cinétique du système de spins au réseau. Tel que représenté à la Figure 2.7(a), la diffusion Elliot-Yafet permet d'inverser le spin d'un électron par l'émission ou l'absorption d'un phonon. Ce processus est facilité par l'interaction spin-orbite, qui couple le système de spin au réseau atomique. En effet, lorsque l'interaction spin-orbite est considérée, l'état d'un électron dans le solide est défini par une fonction d'onde qui contient un mélange des spins possibles. Si l'électron est diffusé, il a donc une certaine probabilité que son spin soit renversé [59,60].

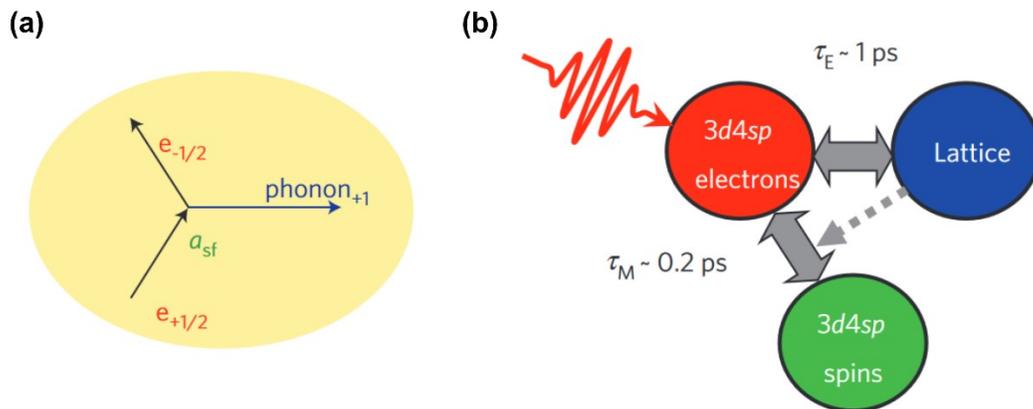


Figure 2.7 Diffusion Elliot-Yafet

(a) Représentation de la diffusion Elliot-Yafet. Le moment cinétique de spin de l'électron, originellement de spin  $+\frac{1}{2}$ , est transféré au phonon par l'interaction. (b) Schéma des interactions du modèle microscopique à trois températures. Les flèches pleines indiquent un transfert d'énergie tandis que la flèche pointillée indique un transfert de moment cinétique. Images reproduites avec l'autorisation de Springer Nature Customer Service Centre GmbH: Springer Nature, Nature Materials, Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization, Koopmans *et al.*, © 2010 [53].

En 2010, Koopmans *et al.* [53] présentent le modèle microscopique à trois températures (M3T), qui est basé sur la diffusion Elliot-Yafet comme mécanisme responsable de la désaimantation.

Comme pour le modèle 3T, le modèle M3T considère que le système électronique est constamment en situation d'équilibre interne. Par contre, la diffusion de la chaleur à travers l'échantillon est maintenant considérée. Les auteurs introduisent aussi une probabilité  $a_{sf}$  que le spin d'un électron soit renversé par la diffusion électron-phonon. Considérant le ratio  $m = M/M_s$  entre l'aimantation du matériau et son aimantation à saturation, l'évolution de l'aimantation est décrite par :

$$\frac{dm}{dt} = AmT_l \frac{a_{sf}T_C}{\mu_{at}} \left(1 - \coth\left(\frac{mT_C}{T_e}\right)\right). \quad (2.15)$$

Ici,  $T_C$  est la température de Curie,  $\mu_{at}$  est le moment magnétique atomique et  $A$  est un facteur qui dépend du matériau. Tel que représenté à la Figure 2.7(b), l'énergie transférée au système de spin provient entièrement du système électronique. Par contre, le transfert de moment cinétique passe uniquement par le réseau via la diffusion électron-phonon.

Une force du modèle M3T est qu'il permet de reproduire les différentes dynamiques de l'aimantation observées dans les métaux de transition et les terres rares. Dans les métaux de transition à température de la pièce, la désaimantation se produit en quelques centaines de femtosecondes et est suivie d'une récupération graduelle de l'aimantation sur plusieurs picosecondes, tel que présenté à la Figure 2.5 [61,62]. Il s'agit de la désaimantation de type I. Dans les terres rares, par contre, la désaimantation se produit plus lentement et deux étapes peuvent être observées [63,64]. D'abord, l'aimantation chute sur une échelle picoseconde. Ensuite, l'aimantation subit une deuxième chute s'étendant sur quelques centaines de picoseconde avant de récupérer plus lentement. C'est la désaimantation de type II.

Dans le modèle M3T, l'existence de ces deux types de désaimantation est expliquée en grande partie par le facteur  $T_C/\mu_{at}$  de l'équation (2.15). Plus ce facteur est grand, plus la variation de l'aimantation est importante dans un temps court. Si la désaimantation est assez efficace pour être complétée avant que le système électronique ait pu s'équilibrer avec le réseau, l'aimantation chute rapidement jusqu'à un minimum qui dépend de la fluence appliquée. Puis, elle récupère partiellement lors de l'équilibration des électrons avec le réseau. Ces dynamiques correspondent à la désaimantation de type I. Si, au contraire, la désaimantation est peu efficace, elle continue à se produire sur une longue période de temps après que les électrons aient atteint l'équilibre avec le réseau. On assiste donc à deux étapes : d'abord, la température électronique élevée supporte une chute rapide de l'aimantation. Puis,  $T_e$  diminue car le système électronique s'équilibre avec le réseau, mais le système de spin n'a pas encore atteint l'équilibre. Alors, l'aimantation continue de diminuer, mais plus lentement, ce qui correspond au type II. Puisque le facteur  $T_C/\mu_{at}$  est

faible pour les terres rares (voir le Tableau 2.2), celles-ci sont associées au type II de désaimantation.

**Tableau 2.2 Moments magnétiques atomiques et Températures de Curie**

Élément	Moment magnétique atomique	$T_c$ (K)
Fe	$2.2 \mu_B$	1044
Co	$1.7 \mu_B$	1360
Gd	$7.6 \mu_B$	293

**Moment magnétique atomique et température de Curie de quelques éléments magnétiques sous forme solide. Dans les métaux de transition comme le fer et le cobalt, le moment magnétique atomique est relativement faible et la température de Curie est élevée [22]. Dans les terres rares, comme le gadolinium, la situation est inversée [65].**

Malgré le succès apparent du modèle M3T, le rôle de la diffusion électron-phonon dans la désaimantation ultrarapide a longtemps été débattu. En 2009, à partir de calculs *ab initio* basés sur la théorie de la fonctionnelle de densité, Steiauf et Fähnle [66] démontrent que la probabilité de renversement du spin par diffusion Elliot-Yafet est plus élevée que prévu dans les métaux de transition et concluent que ce mécanisme est assez important pour expliquer la désaimantation. En 2011, deux autres études théoriques viennent contredire ces résultats. En incluant la dispersion des phonons dans leurs calculs *ab initio*, Carva *et al.* [67] concluent que la diffusion Elliot-Yafet contribue trop faiblement à la désaimantation pour en être l'unique cause et ce, même en considérant une distribution électronique hors équilibre. En étudiant la désaimantation obtenue par des calculs *ab initio* sur un modèle simplifié qui exclue de possibles changements de la structure de bande, Essert et Schneider [68] arrivent à la même conclusion. De plus, leurs résultats indiquent que les dynamiques de la structure de bande, par l'intermédiaires de l'énergie d'échange, influencent la désaimantation. Cette hypothèse est corroborée par les travaux de Mueller *et al.* [69] en 2013. La même année, les calculs de Illg *et al.* [70] montrent encore une fois que la diffusion électron-phonon ne contribue pas suffisamment à la désaimantation pour expliquer les observations expérimentales. Les auteurs soutiennent tout de même que le réseau atomique absorbe le moment cinétique perdu par le système de spins. L'année suivante, ils proposent la diffusion entre les électrons et des ondes de spins comme mécanisme additionnel [71].

Plus récemment, en 2017, Leckron *et al.* [72] soutiennent que les diffusions électron-phonon avec renversement du spin constituent un mécanisme suffisant pour la désaimantation à condition que qu'une précession rapide des spins soit considérée. La même année, Shokeen *et al.* [73]

montrent à partir de calculs *ab initio* que la diffusion électron-phonon joue un rôle important dans la désaimantation du nickel, mais que ce n'est pas le cas pour le cobalt, où le transport de spins est substantiel.

Lors de la diffusion électron-phonon, il est possible que le moment cinétique de spin soit transféré au réseau, mais il pourrait également être transféré vers le moment cinétique orbital. Ce processus est proposé par Zhang et Hübner en 2000 [74]. Parallèlement à la recherche sur l'importance de la diffusion électron-phonon, plusieurs études expérimentales visent à déterminer si le moment cinétique orbital reçoit une partie significative du moment cinétique lors de la désaimantation. En 2007, à partir de mesures de dichroïsme magnétique circulaire de rayons X dans le nickel, Stamm *et al.* [8] démontrent que les orbitales électroniques ne servent pas de réservoir de moment cinétique. En 2010, Boeglin *et al.* [32] observent que le moment cinétique orbital et le moment cinétique de spin varient de façon simultanée pendant la désaimantation, ce qui confirme qu'il n'y a pas un échange significatif de moment cinétique entre les deux. Par conséquent, le seul canal de transfert de moment cinétique disponible lors d'interactions spin-orbite telles que la diffusion électron-phonon est vers le réseau atomique.

Une fois le moment cinétique de spin transféré au réseau, une question subsiste : comment le réseau gère-t-il ce moment cinétique additionnel? Dans les dernières années, des efforts importants ont été déployés pour comprendre les dynamiques du réseau pendant la désaimantation. Deux avenues sont proposées pour le moment cinétique : il peut être transféré directement à l'échantillon entier par l'effet Einstein-de Haas [75,76], ou être transféré à des phonons de polarisation elliptique ou circulaire [77].

L'effet Einstein-de Haas correspond à la réponse mécanique de la masse de l'échantillon entier à un changement de l'aimantation. Toute variation de l'aimantation totale est causée par un changement proportionnel du moment cinétique des électrons. Afin de respecter la conservation du moment cinétique, celui-ci peut être converti en rotation mécanique de l'échantillon entier. Évidemment, si l'échantillon est fixé à un support, le moment cinétique peut être transmis à ce support et éventuellement à la terre entière plutôt que de causer une rotation de l'échantillon. Dans ce cas, le moment cinétique total de l'échantillon seul n'est pas conservé. Pour cette raison, en 2013, Fähnle *et al.* [76] suggèrent que la conservation du moment cinétique de l'échantillon lors de la désaimantation ultrarapide est invalide. Considérant ceci, et supposant que le moment cinétique du réseau est porté par des phonons de polarisation elliptique ou circulaire, Tsatsoulis *et al.* [78] effectuent en 2016 des calculs qui semblent montrer que seule une petite partie du moment cinétique de spins est transférée au réseau lors de la désaimantation. Cependant, ces

calculs sont basés sur un Hamiltonien simplifié qui ne tient pas compte de certains degrés de liberté du système.

En 2019, des mesures expérimentales de l'effet Einstein-de Haas dans un échantillon de fer permettent à Dornes et al. [33] de conclure que le transfert de moment cinétique vers le réseau représente 80% de la perte du moment cinétique de spin. Leurs résultats sont interprétés comme suit : lors de la désaimantation, l'effet Einstein-de Haas induit un couple sur chaque section microscopique de l'échantillon. À l'intérieur du solide uniformément désaimanté, les couples voisins s'annulent, mais pas à la surface. Il se crée alors une onde de déformation se propageant de la surface vers le centre de l'échantillon.

Récemment, en 2022, Tauchert *et al.* [79] proposent que dans les premières centaines de femtosecondes après l'excitation, le moment cinétique de spin est d'abord transmis à des phonons polarisés circulairement avant que la rotation de l'échantillon se produise. En effet, leurs résultats expérimentaux indiquent qu'environ 25% des fluctuations du réseau sont causés par des phonons anisotropes qui ne concordent pas avec une simple augmentation de la température, mais qui correspondent plutôt à un mouvement circulaire des atomes concernés. Selon ce modèle, le temps caractéristique de désaimantation se rapporte au délai requis pour accélérer les atomes du réseau et ainsi amorcer le mouvement des phonons. Le temps nécessaire à la désaimantation est donc fortement dépendant des caractéristiques du matériau, ce qui peut expliquer les différences de dynamiques entre les métaux de transition et les terres rares. Ce modèle offre finalement une nouvelle interprétation de l'effet Einstein-de Haas. Plutôt que d'avoir un transfert direct du moment cinétique de spins vers la rotation de l'échantillon, ce transfert est médié par une étape intermédiaire pendant laquelle le moment cinétique est détenu par les phonons polarisés circulairement.

Bien que le débat persiste sur l'importance de la diffusion électron-phonon avec renversement du spin et sur le rôle du réseau dans la désaimantation, les mécanismes présentés plus haut restent favorisés par la communauté scientifique. Néanmoins, d'autres mécanismes de diffusion ont été proposés pour expliquer le transfert de moment cinétique hors du système de spin. Ceux-ci incluent la diffusion électron-électron de type Elliot-Yafet [69,80], la diffusion électron-magnon [71,81,82], et le transfert direct du moment cinétique entre les électrons et les photons [83]. La plupart des auteurs reconnaissent cependant que la désaimantation ultrarapide est

vraisemblablement causée par une combinaison de plusieurs mécanismes.

### 2.3.3 Transport de spins

Dans les matériaux ferromagnétiques, les spins majoritaires et minoritaires occupent différentes bandes électroniques. En conséquence, leurs propriétés de transport sont distinctes. En effet, les électrons de spin majoritaire restent dans un état excité plus longtemps se déplacent plus rapidement que les électrons de spin minoritaire, ce qui leur permet de se propager plus loin [84,85]. En théorie, il n'est donc pas nécessaire de changer le moment cinétique de spin pour induire la désaimantation d'une région d'un échantillon : il suffit de propager les spins majoritaires en dehors de la région en question. C'est ce qui est suggéré en 2008 par Malinowski *et al.* [86]. Les auteurs démontrent que dans un échantillon multicouche de cobalt/platine ferromagnétique, la désaimantation du cobalt peut être accélérée et amplifiée si les multicouches sont séparées par un conducteur et couplées de façon antiferromagnétique. Tel que représenté à la Figure 2.8, si l'aimantation des deux couches est antiparallèle, chaque couche induit un courant de spins opposés vers l'autre couche. Les deux couches reçoivent alors un afflux de spins dans l'orientation minoritaire et l'aimantation totale diminue. Cet effet est neutralisé si les couches sont séparées par un isolant ou si elles sont couplées de façon ferromagnétique.

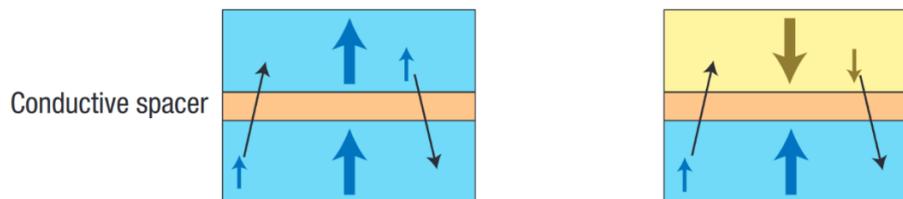


Figure 2.8 Transport de spins entre deux couches ferromagnétiques

**Transport de spins majoritaires entre deux couches ferromagnétiques séparées par un conducteur. À gauche, l'aimantation des couches est parallèle, donc chaque couche perd et reçoit des spins dans l'orientation majoritaire. À droite, l'aimantation des couches est antiparallèle, donc chaque couche perd des spins dans l'orientation majoritaire et reçoit des spins dans l'orientation minoritaire. L'aimantation totale diminue. Figure reproduite avec l'autorisation de Springer Nature Customer Service Centre GmbH: Springer Nature, Nature Physics, Control of speed and efficiency of ultrafast demagnetization by direct transfer of spin angular momentum, Malinowski *et al.*, © 2008 [86].**

Un modèle théorique pour le transport de spins est proposé en 2010 par Battiato *et al.* [87], puis raffiné en 2012 [88]. Le modèle considère le mouvement des électrons excités par l'impulsion de pompe à travers l'échantillon en incluant la diffusion, mais sans tenir compte de la possibilité de renversement du spin. Étant donné que le libre parcours moyen des électrons est beaucoup plus petit que l'étendue transversale de la région excitée par l'impulsion de pompe, seule la propagation en profondeur dans l'échantillon est considérée. Lorsque les électrons sont excités

par l'absorption d'un photon, ils passent de la bande électronique  $d$  à une bande de type  $sp$ . Dans cette bande, au-dessus du niveau de Fermi, les électrons ont une grande mobilité (vitesse d'environ 1 nm/fs [85]). Après l'excitation, le modèle considère que les électrons excités voyagent dans une direction aléatoire jusqu'à ce qu'ils subissent une diffusion. Si la diffusion est élastique, comme c'est approximativement le cas pour la diffusion avec un phonon ou une impureté, l'électron change simplement de direction. Si l'électron subit une diffusion inélastique avec un autre électron, son énergie diminue, ce qui correspond au processus de thermalisation. Le second électron, nouvellement excité, peut alors contribuer au transport de spin. Les électrons de spin majoritaire, en se déplaçant plus loin que les électrons de spin minoritaire, transportent leur moment magnétique hors de la région excitée. Le modèle permet ainsi de calculer la population de spins majoritaires et minoritaires ayant voyagés à une profondeur  $z$  dans l'échantillon un certain temps après l'excitation et de relier cette information à l'aimantation totale.

Les processus de transport avec diffusion peuvent être caractérisés par la variation du déplacement quadratique moyen des particules dans le temps. Si le processus est régi par le mouvement Brownien, le déplacement quadratique moyen augmente linéairement dans le temps. À l'opposé, si le mouvement est balistique, la relation est quadratique. Dans le modèle proposé par Battiato *et al.* [87], le mouvement des spins se trouve entre ses deux extrêmes, ce qui correspond au régime super-diffusif. En outre, la relation entre le déplacement quadratique moyen et le temps n'est pas constante, mais passe plutôt d'un régime presque balistique à un régime correspondant au mouvement Brownien longtemps après l'excitation.

L'utilisation de paramètres réalistes dans le modèle super-diffusif (par exemple pour le taux d'excitation électronique et la durée de vie des états excités) facilite la comparaison avec des résultats expérimentaux. Tel que présenté à la Figure 2.9(a), le modèle permet d'expliquer les observations de Stamm *et al.* [8] dans une couche mince de nickel déposée sur un substrat d'aluminium. Bien que les résultats expérimentaux permettent seulement d'accéder à l'évolution de l'aimantation moyenne dans la couche de nickel, plus de détails quant au profil de l'aimantation calculé en fonction de la profondeur dans l'échantillon sont donnés à la Figure 2.9(b). Après un certain délai, l'aimantation diminue dans le nickel (soit dans les 15 premiers nanomètres), mais augmente dans l'aluminium. Après 300 fs, le modèle prédit aussi une diminution de l'aimantation près de l'interface entre les matériaux. Là, les électrons de spin minoritaire ayant été diffusés à rebours, soit de l'aluminium vers le nickel, sont rapidement désexcités alors que les électrons de spin majoritaire peuvent rester excités assez longtemps dans le matériau ferromagnétique pour s'éloigner de l'interface. Depuis la présentation de ce modèle, plusieurs études expérimentales

ont été menées afin d'en vérifier la validité.

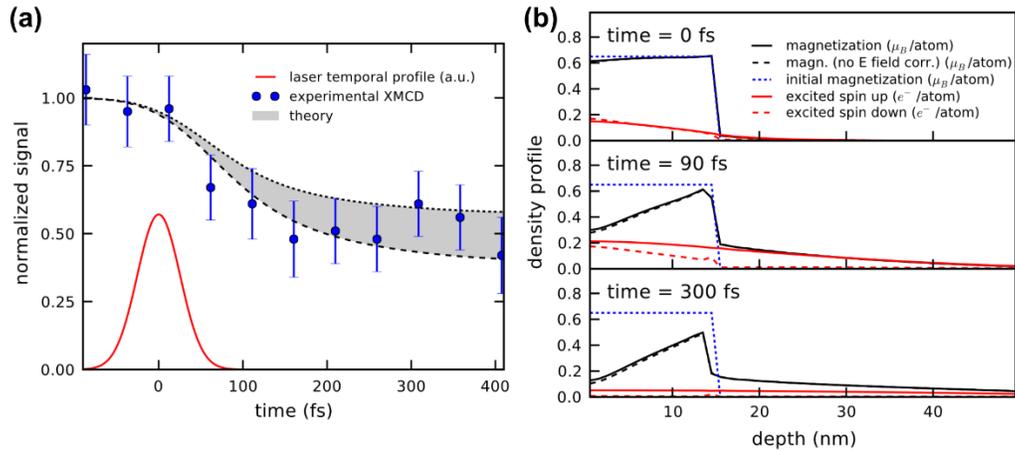


Figure 2.9 Application du modèle de transport de spin super-diffusif

(a) Désaimantation ultrarapide observée par Stamm *et al.* [8] dans une couche de 15 nm de nickel déposée sur un substrat d'aluminium (points bleus) comparée à la désaimantation calculée par le modèle de transport de spin super-diffusif pour le même système (région grise). La courbe rouge représente le profil temporel de l'impulsion de pompe. (b) Profile de l'aimantation calculé en fonction de la profondeur dans l'échantillon pour trois délais après l'excitation. L'aimantation initiale est présentée en bleu. En noir, l'aimantation résultante après l'excitation. En rouge, la population de spins majoritaires excités (trait plein) et la population de spins minoritaires excités (traits tirés). Figure reproduite avec autorisation de Battiato *et al.*, *Physical Review Letters* 105, p. 027203 (2010), DOI : 10.1103/PhysRevLett.105.027203 [87]. © 2010 de l'American Physical Society.

En 2011, Melnikov *et al.* [89] présentent des résultats expérimentaux qui supportent le modèle super-diffusif. Les auteurs mesurent les propriétés magnétiques de la surface d'une couche d'or déposée sur une couche de fer ferromagnétique alors que seul le fer est excité par l'impulsion de pompe. Ils détectent un courant de spin décalé par rapport à l'excitation. Une analyse de la vitesse de propagation des spins permet de déduire qu'effectivement, le transport semble se produire dans un régime super-diffusif.

En 2012, Rudolf *et al.* [90] étudient l'aimantation d'une couche de nickel et d'une couche de fer séparées par une couche de ruthénium. Leur méthodologie, basée sur l'effet Kerr magnéto-optique résonant, permet de mesurer la désaimantation du nickel et du fer de façon indépendante. Le nickel absorbe la majeure partie de l'impulsion de pompe. Lorsque l'aimantation des deux couches est antiparallèle, chaque élément subit la désaimantation ultrarapide. Cependant, lorsque l'aimantation des deux couches est parallèle, l'aimantation du fer **augmente** alors que celle du nickel diminue. Ceci est attribué au transport super-diffusif de spins du nickel vers le fer. En 2013, cette méthodologie est utilisée sur des échantillons semblables, mais avec différentes couches séparatrices, ce qui permet aux auteurs de contrôler l'importance des courants de spins entre le nickel et le fer [91]. Ainsi, il est démontré que les processus de transport de spins et de diffusion avec renversement du spin contribuent tous les deux à la désaimantation. De plus, les

résultats indiquent que la super-diffusion des spins est directionnelle dans les échantillons étudiés; les spins se propagent préférentiellement en profondeur, de la région excitée vers la région non excitée.

La même année, Eschenlohr *et al.* [92] étudient un échantillon composé d'une couche de nickel recouverte d'une couche d'or et déposée sur un substrat conducteur. L'impulsion de pompe excite la couche d'or, mais la couche de nickel reçoit peu d'énergie de la part des photons. Par une méthode résonante qui permet d'isoler l'aimantation de la couche ferromagnétique, les auteurs observent tout de même une forte désaimantation du nickel qui ne peut être expliquée par l'excitation directe des électrons dans cette couche. De plus, la désaimantation est légèrement décalée par rapport au cas où le nickel est directement excité par la pompe. Les auteurs en concluent que la désaimantation est causée par le transport d'électrons chauds de la couche d'or vers la couche de nickel. Une fois dans le nickel, les propriétés de transport des électrons de spin majoritaire et minoritaire sont modifiées. Par transport de spin super-diffusif, les spins majoritaires voyagent jusqu'au substrat et l'aimantation du nickel diminue. Toutefois, cette interprétation des résultats est remise en cause lorsqu'il est démontré que le calcul de l'absorption de la pompe par les différentes couches est inexact [93,94]. En 2016, une expérience similaire menée par Vodungbo *et al.* [95] confirme que la désaimantation peut être excitée de façon indirecte par le transport d'électrons chauds. Cependant, les auteurs précisent que ces résultats ne favorisent pas nécessairement le transport super-diffusif comme processus de désaimantation une fois les électrons chauds dans la couche ferromagnétique.

Au fil des ans, d'autres études indiquent que le transport super-diffusif n'est pas un processus aussi important que le prévoit le modèle de Battiato *et al.* En 2012, Mathias *et al.* [62] observent un délai entre la désaimantation du fer et du nickel dans un alliage de ces deux éléments. Toutefois, ce délai est indépendant de l'intensité de la pompe, ce qui ne devrait pas être le cas si la désaimantation était causée par le transport super-diffusif étant donné que l'intensité de la pompe influence le nombre d'électrons chauds qui sont générés et qui peuvent participer au transport. En 2013, Schelleken *et al.* [96] comparent la désaimantation mesurée sur un échantillon de nickel en sondant l'échantillon par devant, soit sur la surface excitée par la pompe, et par derrière. Comme aucune différence n'est observée, les auteurs concluent que le transport de spin joue un rôle négligeable dans la désaimantation du nickel. En 2015, Wieczorek *et al.* [97] offrent une étude des dynamiques de l'aimantation du cobalt en fonction de la profondeur dans l'échantillon. Leurs résultats indiquent que le transport de spins domine la désaimantation dans la première centaine de femtosecondes après l'excitation, mais que la diffusion avec

renversement du spin devient ensuite le processus le plus important. En 2017, Shokeen et al. [73] confirment que le transport de spin est substantiel dans le cobalt et démontrent que l'importance relative du transport et de la diffusion dépend du matériau.

Récemment, un autre phénomène lié au transport de spin a été découvert et mérite d'être mentionné. Le transfert de spin induit optiquement, ou OISTR (de l'anglais *Optically Induced Spin Transfer*), a été proposé en 2018 par Dewhurst et al. [98], puis démontré expérimentalement en 2019 par Siegrist et al. [99]. Il s'agit d'un phénomène entièrement optique. Dans des systèmes complexes tels que les matériaux avec plusieurs sous-réseaux ou les échantillons multicouches, l'excitation par l'impulsion de pompe peut acheminer un électron de la bande électronique majoritaire à la bande électronique minoritaire d'un site voisin, ou vice-versa. Comme pour le transport super-diffusif, le moment de spin total reste inchangé. Néanmoins, ce phénomène peut altérer la structure magnétique du matériau, par exemple en le faisant passer d'une phase antiferromagnétique à une phase ferromagnétique. Contrairement aux processus de diffusion avec renversement du spin ou de transport super-diffusif décrits plus haut, ces changements sont directement induits par le champ laser. Le OISTR est donc très rapide; il s'agit du seul phénomène magnétique connu qui permet d'accéder à l'échelle de temps attoseconde.

### 2.3.4 Effets attendus de la longueur d'onde d'excitation

La vaste majorité des études expérimentales portant sur la désaimantation ultrarapide sont menées avec une longueur d'onde de pompe fixe qui correspond souvent à la longueur d'onde fondamentale du système laser utilisé. La plupart du temps, la pompe est donc dans le proche infrarouge, par exemple à  $\sim 800$  nm pour un système titane-saphir. Pourtant, on peut s'attendre à ce que le système électronique soit excité différemment si la longueur d'onde d'excitation change, ce qui pourrait mener à des dynamiques variées. Dans la section présente, le modèle à trois températures est utilisé pour formuler une hypothèse quant à l'effet de la longueur d'onde sur la désaimantation ultrarapide.

Dans le modèle 3T, la première étape est l'absorption de l'énergie de l'impulsion de pompe par le système électronique, dont la température augmente. En négligeant les contributions du réseau et des spins, qui prennent plus longtemps à s'instaurer, la variation de la température correspond à :

$$C_e(T_e) \frac{dT_e}{dt} = P(t) \quad (2.16)$$

où, encore une fois, la chaleur spécifique électronique est proportionnelle à la température, avec  $C_e = \gamma T_e$ . Par séparation des variables, on obtient :

$$\begin{aligned}
\int_{T_{e,0}}^{T_{e,0}+\Delta T_e} \gamma T_e dT_e &= \int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt \\
\Rightarrow \frac{\Delta T_e^2}{2} + T_{e,0} \Delta T_e &= \frac{1}{\gamma} \int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt \\
\Rightarrow \Delta T_e &= \sqrt{T_{e,0}^2 + \frac{2}{\gamma} \int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt} - T_{e,0} \\
\Rightarrow \Delta T_e &= T_{e,0} \sqrt{1 + \frac{2}{\gamma T_{e,0}^2} \int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt} - T_{e,0}.
\end{aligned} \tag{2.17}$$

L'intégration est faite sur l'excitation complète. Donc, la température initiale  $T_{e,0}$  est augmentée de  $\Delta T_e$  après le passage de l'impulsion de pompe. Dans le modèle 3T, c'est cette différence de température qui détermine les dynamiques de la désaimantation. Plus  $\Delta T_e$  est élevé, plus on peut s'attendre à une désaimantation forte. Pour un régime d'excitation modérée, on peut considérer que l'énergie totale absorbée par le système est faible, soit  $\int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt \ll \gamma T_{e,0}^2$ . Alors, on a :

$$\Delta T_e \approx T_{e,0} \left( 1 + \frac{1}{\gamma T_{e,0}^2} \int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt \right) - T_{e,0} = \frac{1}{\gamma T_{e,0}^2} \int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt. \tag{2.18}$$

Afin de définir le terme de source  $P(t)$ , il faut pouvoir décrire la réponse du matériau à l'excitation laser. Pour un champ électromagnétique oscillant à basse fréquence, et en considérant une faible excitation, on peut approximer les électrons de la bande de conduction comme étant libres dans le métal. Il s'agit du modèle de Drude [100,101]. Ce modèle ne tient pas compte des transitions électroniques d'une bande à l'autre (transitions inter-bandes). Par contre, il approche les conditions réelles d'excitations électroniques ne causant pas de transitions vers une autre bande (transitions intra-bandes). Le modèle est donc mieux adapté aux excitations par des photons de faible énergie, par exemple dans le régime infrarouge, ce qui correspond au régime de longueurs d'onde utilisé pour exciter l'échantillon.

Le terme de source  $P(t)$  correspond à la puissance laser moyenne absorbée par le matériau. Le taux de travail fait par le champ laser dans une unité de volume du matériau peut être exprimé à partir du champ électrique et du courant induit [102] :

$$\frac{dW}{dt} = \vec{E} \cdot \vec{j}, \tag{2.19}$$

où le champ électrique  $\vec{E}$  et la densité de courant  $\vec{j}$  oscillent dans le temps. La densité de courant  $\vec{j} = \sigma \vec{E}$  est définie à partir de la conductivité  $\sigma$ , en accordance avec la loi d'Ohm. Tel que prescrit par le modèle de Drude,  $\sigma = \frac{\sigma_0}{1-i\omega\tau}$ , où  $\tau$  correspond au temps de parcours moyen des électrons

et où  $\omega = 2\pi c/\lambda$ , avec  $\lambda$  la longueur d'onde du laser de pompe [103]. La puissance moyenne absorbée devient :

$$P(t) = \left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle = \frac{1}{2} \left( \frac{\sigma_0}{1 + \omega^2 \tau^2} \right) E_0^2. \quad (2.20)$$

Ce résultat peut être écrit en fonction de l'intensité de la pompe,  $I = \frac{c\epsilon_0}{2} E_0^2$ . L'intégration dans le temps sur l'impulsion totale permet de considérer plutôt la fluence de l'impulsion  $F$ , soit l'énergie par unité d'aire :

$$\int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt = \frac{1}{c\epsilon_0} \left( \frac{\sigma_0}{1 + \omega^2 \tau^2} \right) F. \quad (2.21)$$

Pour une longueur d'onde de l'ordre du micron, et considérant que  $\tau \sim 10$  fs, on a  $\omega^2 \tau^2 \gg 1$ . On peut alors faire l'approximation suivante :

$$\int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt \approx \frac{1}{c\epsilon_0} \frac{\sigma_0}{\omega^2 \tau^2} F \propto \lambda^2. \quad (2.22)$$

Tel que démontré à l'équation (2.18), (2.18) (2.18) la variation de la température électronique est approximativement proportionnelle à  $\int_{-\infty}^{\infty} P(t) dt$ . Donc, on a également la relation  $\Delta T_e \propto \lambda^2$ . Cette relation quadratique indique que les dynamiques de la désaimantation ont le potentiel de varier de façon significative avec la longueur d'onde de la pompe. En fait, ce résultat n'est pas si surprenant. Dans un nuage d'électrons libres, l'énergie cinétique moyenne accumulée par un électron dans un champ laser est donné par  $U_p$ , l'énergie pondératrice :

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} = \frac{e^2 I}{8\pi^2 m c^3 \epsilon_0} \lambda^2. \quad (2.23)$$

La relation quadratique en longueur d'onde est donc un résultat de l'approximation selon laquelle les électrons sont complètement libres d'osciller dans le champ laser.

Évidemment, ce développement basé sur le modèle de Drude est imparfait. En plus d'ignorer la structure de bande, l'interaction entre les électrons, les spins et les phonons n'est pas tenue en compte. Néanmoins, il permet de poser des hypothèses quant à l'effet de la longueur d'onde sur la désaimantation ultrarapide. Si la température électronique transitoire augmente avec la longueur d'onde, on peut s'attendre à ce que la désaimantation soit plus prononcée pour des longueurs d'onde élevées alors même que la fluence de la pompe est constante. C'est ce qui est démontré au chapitre 5 pour des longueurs d'onde dans le visible et dans le proche infrarouge [14]. Toutefois, tel que présenté au chapitre 8, la tendance ne semble pas se maintenir

dans l'infrarouge moyen. Un modèle théorique plus avancé serait nécessaire pour comprendre les résultats de ce chapitre.

Dans les dernières années, quelques études sur l'effet de la longueur d'onde ont été publiées sans toutefois qu'un consensus ne soit atteint. En 2017, Bierbrauer *et al.* [13] observent des dynamiques qui concordent avec les résultats présentés au chapitre 5 dans un échantillon de nickel. Les auteurs attribuent leurs résultats à la différente profondeur de pénétration de la pompe en fonction de la longueur d'onde. En 2021, Seibel *et al.* [16] observent la même tendance, mais expliquent leurs résultats par le transfert d'énergie dans l'échantillon entre la couche de nickel et le substrat d'or. En 2020, Mertens *et al.* [15] mesurent plutôt des changements non monotones des dynamiques de la désaimantation en variant la longueur d'onde entre 0.4  $\mu\text{m}$  et 1.2  $\mu\text{m}$  dans un échantillon épais de cobalt. En 2022, Stiehl *et al.* [104] mesurent la désaimantation ultrarapide d'une couche mince de nickel déposée sur un substrat isolant, puis comparent des courbes obtenues pour la même quantité d'énergie absorbée en variant la longueur d'onde entre 0.5  $\mu\text{m}$  et 1.77  $\mu\text{m}$ . N'observant pas de changements de dynamiques, les auteurs soutiennent que la forme de la distribution électronique après l'excitation n'influence pas la désaimantation, du moins lorsque les effets de transport non-locaux sont exclus. Une conclusion semblable est atteinte par les auteurs de Chekhov *et al.* [105], en 2021, qui comparent la désaimantation excitée par une impulsion visible et une impulsion térahertz dans une couche mince de fer.

En 2017, Bobowski *et al.* [106] observent une désaimantation légèrement accrue lorsqu'un échantillon de gadolinium est excité par une longueur d'onde plus courte. Les auteurs attribuent leurs résultats à la probabilité accrue de diffusion avec renversement du spin pour des électrons ayant été excités par des photons plus énergétiques. Cependant, les terres rares sont connues pour avoir des dynamiques complexes qui ne concordent pas toujours avec celles observées dans les métaux de transition. Dans ce document, seul l'effet de la longueur d'onde sur les métaux de transition est considéré.

## **2.4 Comment sonder la désaimantation ultrarapide**

Il existe plusieurs méthodes expérimentales permettant de sonder l'aimantation dans un matériau. Toutefois, afin de mesurer la désaimantation ultrarapide, il faut avoir une résolution temporelle de l'ordre de la centaine de femtosecondes ou mieux. Les méthodes optiques sont donc favorisées, d'autant plus que l'excitation de l'échantillon doit de toute façon être induite par une impulsion laser ultracourte. Les méthodes optiques requièrent que l'interaction entre l'impulsion de sonde et le matériau produise un changement mesurable dans les caractéristiques

de la sonde. De plus, ce changement doit pouvoir être quantitativement relié à l'aimantation du matériau.

Il existe plusieurs phénomènes qui répondent à ces critères. Ils peuvent être classés en deux catégories. Les phénomènes non-résonants, tel que les effets magnéto-optiques, sont relativement faciles à mesurer. En effet, les méthodes de détection basées sur ces phénomènes peuvent être implémentées à partir de sources de photons communes et sont donc plus accessibles. Cependant, puisque les méthodes non-résonantes n'offrent pas un accès direct à la structure électronique du matériau, elles ont une utilité limitée. Les phénomènes résonants, comme le dichroïsme magnétique de rayons X ou la diffusion résonante magnétique de rayons X, sont intimement reliés à l'absorption des photons par le matériau magnétique. Ils permettent ainsi d'obtenir de l'information plus précise sur la structure électronique et peuvent être utilisés pour séparer les contributions de différents éléments dans le matériau. Cependant, les méthodes de détection basées sur ces phénomènes sont plus exigeantes en termes de source de photons et sont donc moins accessibles. De plus, elles doivent généralement être implémentées dans un montage sous vide afin d'éviter l'absorption des photons de haute énergie dans l'air, ce qui contribue à complexifier l'expérience.

Dans ce qui suit, trois des méthodes les plus populaires pour sonder la désaimantation ultrarapide sont présentées. Il s'agit de l'effet Kerr magnéto-optique, du dichroïsme circulaire magnétique de rayons X, et de la diffusion résonante magnétique de rayons X.

#### **2.4.1 Effet Kerr magnéto-optique**

L'effet Kerr magnéto-optique (MOKE), découvert en 1877 par John Kerr [107], décrit comment la polarisation de la lumière est affectée lors de sa réflexion par un matériau magnétique. Le MOKE est intimement relié à l'effet Faraday, qui correspond plutôt à la rotation de la polarisation de la lumière lors de sa transmission au travers d'un matériau magnétique. Les effets magnéto-optiques découlent de la réponse des électrons au champ laser en présence d'un champ magnétique. Plus précisément, l'effet Faraday et certains types de MOKE proviennent de la biréfringence circulaire, c'est-à-dire la différence d'indice de réfraction entre la lumière de polarisation circulaire gauche et droite, qui est induite dans le matériau par l'aimantation.

Tel que représenté à la Figure 2.10, un électron libre placé dans un champ laser polarisé circulairement a une trajectoire circulaire, car il subit à tout instant une force parallèle au champ électrique [102] :

$$\vec{F}_E = -e\vec{E}. \quad (2.24)$$

Si un champ magnétique est appliqué, l'électron subit également une force magnétique dont l'orientation dépend de la direction dans laquelle l'électron se propage et de l'orientation du champ magnétique :

$$\vec{F}_{\text{mag}} = -e(\vec{v}_e \times \vec{B}). \quad (2.25)$$

La somme de ces forces correspond à la force de Lorentz. Puisque l'orientation de la force magnétique dépend de la direction dans laquelle l'électron se propage à la vitesse  $\vec{v}_e$ , la trajectoire de l'électron varie selon que la polarisation est circulaire droite ou gauche [108]. Dans un matériau magnétique, le champ magnétique est remplacé par l'aimantation. La trajectoire des électrons est évidemment plus complexe que pour un électron libre, mais elle dépend tout de même du sens de rotation de la polarisation.

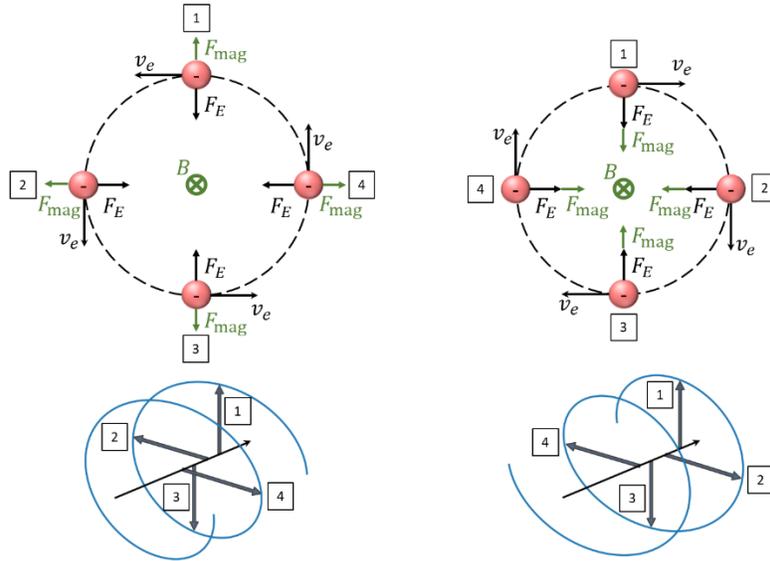


Figure 2.10 Électron dans un champ laser de polarisation circulaire

Trajectoire d'un électron libre dans le champ laser polarisé circulairement d'un faisceau entrant dans l'image. À gauche, la polarisation est circulaire gauche et le champ électrique varie tel que représenté en bas. L'électron tourne alors dans le sens antihoraire. À droite, la polarisation est circulaire droite et l'électron tourne dans le sens horaire. Lorsqu'un champ magnétique  $B$  est appliqué, la force magnétique  $\vec{F}_{\text{mag}}$  agit différemment car son orientation dépend du mouvement de l'électron.

L'indice de réfraction d'un matériau est étroitement lié à la réponse des électrons au champ laser. En effet, pour un matériau isotrope et non-magnétique, le déplacement électrique est donné par :

$$\vec{D} = \epsilon_0\vec{E} + \vec{P} = \epsilon\vec{E}, \quad (2.26)$$

où  $\vec{P} = \epsilon_0\chi\vec{E}$  est le vecteur de polarisation du matériau de susceptibilité électrique  $\chi$  et

$\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi) = \epsilon_0\epsilon_r$  est sa permittivité électrique. Alors, l'indice de réfraction est simplement :

$$n = \sqrt{\epsilon_r}. \quad (2.27)$$

Si le matériau est anisotrope ou en présence d'un champ magnétique, la permittivité électrique doit être décrite par un tenseur, ce qui implique que l'indice de réfraction est également un tenseur [108,109]. Tel que démontré plus loin, les vecteurs propres formant la base des polarisations dans un matériau magnétique correspondent aux polarisations circulaires gauche et droite. L'indice de réfraction associé à ces polarisations de base est différent, ce qui se manifeste comme de la biréfringence circulaire.

Dans un matériau magnétique, la symétrie par renversement du temps est observée si les composants hors-diagonales du tenseur de permittivité électrique respectent  $\epsilon_{ij}(M) = \epsilon_{ji}(-M)$ . Pour le cas particulier où le matériau est isotrope et l'aimantation est parallèle à l'axe de propagation du faisceau laser, soit l'axe  $z$ , on a :

$$\epsilon = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{bmatrix}, \quad (2.28)$$

où toutes les composantes peuvent être complexes. Considérons une onde plane se propageant dans la direction  $z$ , de la forme :

$$\begin{aligned} \vec{E} &= \vec{E}_0 e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}, \\ \vec{H} &= \vec{H}_0 e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}, \end{aligned} \quad (2.29)$$

où le vecteur d'onde  $\vec{k}$  est relié à l'indice de réfraction complexe par  $\vec{k} = n\vec{k}_0$ , avec  $\vec{k}_0$  le nombre d'onde dans le vide. Les équations de Maxwell suivante peuvent être appliquées :

$$\begin{aligned} \nabla \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (\vec{H} + \vec{M}), \\ \nabla \times \vec{H} &= \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J}. \end{aligned} \quad (2.30)$$

Sachant que l'aimantation est constante et considérant une densité de courant nulle ( $\vec{J} = 0$ ), on obtient :

$$\begin{aligned} i\vec{k} \times \vec{E} &= i\mu_0 \omega \vec{H}, \\ i\vec{k} \times \vec{H} &= -i\epsilon \mu_0 \vec{E}. \end{aligned} \quad (2.31)$$

En effet,  $\nabla \times \vec{E} = i\vec{k} \times \vec{E}$  et  $\frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = -i\omega \vec{E}$ , avec un résultat équivalent pour  $\vec{H}$ . En incorporant les équations (2.31) l'une dans l'autre, on obtient :

$$\vec{k} \times (\vec{k} \times \vec{E}) = -\omega^2 \mu_0 \epsilon \vec{E}. \quad (2.32)$$

Avec le double produit vectoriel  $\vec{k} \times (\vec{k} \times \vec{E}) = \vec{k}(\vec{k} \cdot \vec{E}) - k^2 \vec{E}$ , on trouve :

$$\vec{k}(\vec{k} \cdot \vec{E}) - k^2 \vec{E} + \omega^2 \mu_0 \epsilon \vec{E} = 0. \quad (2.33)$$

Pour une onde plane, on a  $\vec{k} \cdot \vec{E} = 0$ . Puisque  $k_0^2 = \omega^2 \mu_0 \epsilon_0$ , on obtient :

$$\begin{aligned} -n^2 k_0^2 \vec{E} + k_0^2 \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \vec{E} &= 0, \\ \Rightarrow n^2 \vec{E} - \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \vec{E} &= 0, \end{aligned} \quad (2.34)$$

$$\Rightarrow \begin{bmatrix} n^2 - \epsilon_{xx} & -\epsilon_{xy} & 0 \\ \epsilon_{xy} & n^2 - \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & n^2 - \epsilon_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ 0 \end{bmatrix} = 0.$$

Le développement matriciel donne les deux équations suivantes :

$$\begin{aligned} n^2 &= \epsilon_{xx} + \epsilon_{xy} \frac{E_y}{E_x}, \\ n^2 &= \epsilon_{xx} - \epsilon_{xy} \frac{E_x}{E_y}. \end{aligned} \quad (2.35)$$

La solution de ces équations permet de trouver les vecteurs propres associés aux polarisations de base du matériau magnétique et les indices de réfractons correspondants. Les solutions non-triviales sont, pour le champ électrique :

$$E_x = \pm i E_y, \quad (2.36)$$

ce qui correspond aux polarisations circulaire gauche et droite. Les indices de réfractons correspondants sont :

$$n^2 = \epsilon_{xx} \pm i \epsilon_{xy}. \quad (2.37)$$

Ainsi, on a bel et bien une biréfringence circulaire.

La biréfringence circulaire implique que dans le matériau, une onde polarisée circulaire gauche se propage à une vitesse différente d'une onde polarisée circulaire droite. Si la polarisation incidente est une combinaison des deux polarisations circulaires, comme c'est le cas pour une polarisation linéaire, cette différence de vitesse mène à un déphasage entre les composantes gauche et droite qui engendre la rotation de la polarisation. Puisque  $n$  est complexe, les deux polarisations circulaires peuvent également subir des taux d'absorption différents, ce qui entraîne un changement à l'ellipticité de la polarisation. Ces effets existent en transmission (effet Faraday) et en réflexion (MOKE).

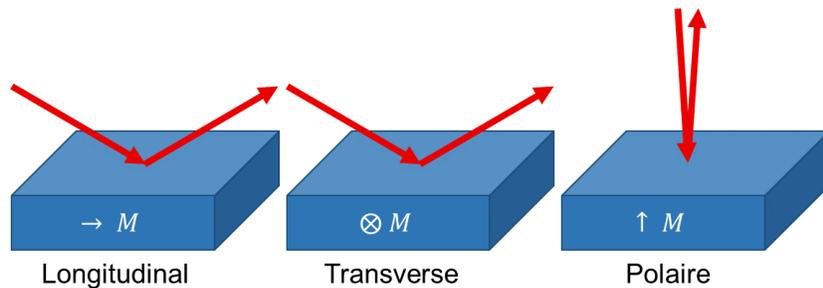
Pour une réflexion avec un angle d'incidence  $\theta_i$  et un angle transmit  $\theta_t$ , les coefficients de Fresnel de la forme  $\tilde{r} = \frac{n_1 \cos \theta_i - n_2 \cos \theta_t}{n_1 \cos \theta_i + n_2 \cos \theta_t}$  définissent la réflectivité de la lumière polarisée selon un des

vecteurs de base, c'est-à-dire une polarisation circulaire [110]. En remettant ces coefficients dans la base des polarisation linéaires  $s$  et  $p$ , soit les polarisations perpendiculaire et parallèle au plan d'incidence, on obtient une matrice qui décrit le champ électrique réfléchi :

$$\begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}^r = \begin{bmatrix} \tilde{r}_{pp} & \tilde{r}_{ps} \\ \tilde{r}_{sp} & \tilde{r}_{ss} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}^i \quad (2.38)$$

Tel que présenté au chapitre 7, on peut alors définir l'angle de Kerr complexe comme  $\Theta_p = \frac{\tilde{r}_{sp}}{\tilde{r}_{pp}} = \theta_p + i\varepsilon_p$ , où  $\theta_p$  est la rotation de Kerr et  $\varepsilon_p$  est l'ellipticité de Kerr. Dans un système à l'équilibre, ces deux quantités sont proportionnelles à l'aimantation [108].

Selon la géométrie du système, trois types d'effets Kerr magnéto-optiques peuvent être identifiés. Ils sont représentés à la Figure 2.11. Le MOKE longitudinal et le MOKE transverse correspondent aux cas où l'aimantation est dans le plan de l'échantillon et, respectivement, parallèle ou perpendiculaire au plan d'incidence. Le MOKE polaire correspond au cas où l'aimantation est perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Tel que décrit plus haut, le MOKE longitudinal et le MOKE polaire ont la même origine que l'effet Faraday, soit la biréfringence circulaire, et sont donc maximisés lorsque l'aimantation est colinéaire à la propagation du faisceau [111]. Contrairement aux deux autres types d'effets Kerr magnéto-optiques, le MOKE transverse n'induit pas de déphasage entre les composantes  $s$  et  $p$  de la polarisation réfléchie, mais entraîne uniquement une variation de la réflectivité de la composante  $p$ .



**Figure 2.11** Types d'effets Kerr magnéto-optiques

**MOKE longitudinal, transverse et polaire.** Le type d'effet Kerr magnéto-optique est déterminé par l'orientation de l'aimantation  $M$  par rapport à la surface de l'échantillon et au plan d'incidence. Expérimentalement, l'angle d'incidence est choisi pour optimiser la mesure. Par exemple, pour maximiser le MOKE polaire, le faisceau incident doit être près de la normale [111].

À cause de sa simplicité, le MOKE est une méthode optique favorite pour l'étude de matériaux magnétiques. D'ailleurs, c'est avec l'effet Kerr magnéto-optique longitudinal résolu en temps que la désaimantation ultrarapide a été démontrée pour la première fois [7]. Depuis, cependant, la validité des mesures MOKE obtenues alors que le système est hors équilibre dans les premières

centaines de femtosecondes après l'excitation a été remise en cause [37,38,61,112–119].

En 2000, Koopmans *et al.* [38] observent des dynamiques différentes pour la rotation et l'ellipticité de Kerr immédiatement après l'excitation d'un échantillon de nickel. Ce résultat est une démonstration indéniable de la présence d'effets non-magnétiques dans les mesures MOKE. En effet, si la rotation et l'ellipticité étaient directement reliées à l'aimantation, ces quantités devraient varier simultanément. Les auteurs attribuent leurs observations au remplissage des états (*state filling effect*). Immédiatement après l'excitation par l'impulsion de pompe, les transitions électroniques correspondants à l'énergie des photons de pompe sont saturés. Ces transitions ne peuvent donc plus être interrogées par une sonde de même longueur d'onde. Il est toutefois possible de réduire cet effet en utilisant différentes longueurs d'onde pour la pompe et la sonde [120]. Pour cette raison, les mesures de MOKE résolues en temps sont souvent réalisées avec la longueur d'onde fondamentale du laser comme pompe et le second harmonique comme sonde. C'est d'ailleurs la stratégie utilisée dans les travaux présentés aux chapitres 7 et 8.

Même si l'effet du remplissage des états peut être minimisé, la distribution transitoire d'électrons chauds créée par la pompe altère tout de même la mesure des effets magnéto-optiques [61,116]. La controverse entourant la relation entre les effets magnéto-optiques et l'aimantation est donc toujours d'actualité. Dans les dernières années, quelques solutions ont été proposées pour extraire l'aimantation de mesures MOKE. Carpenne *et al.* [117,119] proposent qu'une étude complète de la polarimétrie résolue en temps permet de dissocier les contributions magnétiques et non-magnétiques au MOKE en plus de fournir les valeurs absolues des composantes du tenseur de permittivité électrique du matériau. En 2017, Razdolski *et al.* [116] proposent une méthode mathématique qui permet de retrouver l'aimantation à partir de mesures de la rotation et de l'ellipticité de Kerr à condition que le transport de spin soit négligeable. Un avantage de cette méthode est qu'elle ne requiert pas une mesure des valeurs absolues de la rotation et de l'ellipticité, mais uniquement leur variation relative par rapport à la valeur statique, ce qui est plus facilement accessible expérimentalement.

Malgré cette controverse, le MOKE continu à être utilisé pour l'étude de la désaimantation ultrarapide, car cette méthode demeure la plus accessible. Toutefois, les méthodes résonantes ont rapidement gagnées en popularité grâce au développement de sources intenses d'impulsions ultracourtes de rayonnement ultraviolet extrême et de rayons X.

#### **2.4.2 Dichroïsme magnétique circulaire de rayons X**

Le dichroïsme magnétique circulaire de rayons X, ou XMCD (de l'anglais *X-ray Magnetic Circular*

*Dichroism*) est prédit en 1975 par Erskine et Stern [121], puis observé pour la première fois en 1987 par Schütz *et al.* [122]. Il s'agit de la différence d'absorption de rayons X polarisés circulairement par un matériau présentant une aimantation parallèle ou antiparallèle à la direction de propagation du faisceau<sup>3</sup>. L'origine microscopique du XMCD peut être décrite par un modèle en deux étapes [123,124].

La première étape consiste en l'absorption d'un photon. Les photons transportent un moment cinétique  $+\hbar$  pour la polarisation circulaire droite et  $-\hbar$  pour la polarisation circulaire gauche. Lors de l'absorption d'un photon par un électron d'une couche électronique de cœur, ce moment cinétique doit être transféré à l'électron. Sans couplage spin-orbite, le moment cinétique est entièrement transféré au moment cinétique orbital de l'électron. S'il y a couplage spin-orbite, un transfert vers le moment cinétique de spin est possible. Alors, les photoélectrons résultants de l'excitation sont polarisés en spin. Étant donné que les photons transmettent un moment cinétique opposé selon qu'ils aient une polarisation circulaire gauche ou droite, la polarisation des spins des photoélectrons dépend de la polarisation des photons. Par exemple, pour la transition  $L_3$  d'un métal de transition (excitation de la couche électronique  $2p_{3/2}$  vers la bande de valence  $3d$ ), les photons ayant un moment cinétique  $+\hbar$  excitent des électrons de spin  $up$  à 62.5% alors que cette proportion descend à 37.5% pour des photons de moment cinétique  $-\hbar$ . La polarisation des spins est aussi influencée par le signe du couplage spin-orbite. Pour la transition  $L_2$  (excitation de la couche électronique  $2p_{1/2}$  vers la bande de valence  $3d$ ), le couplage spin-orbite est négatif, car le moment cinétique total de la couche  $2p_{1/2}$  est  $J = L - S$  plutôt que  $J = L + S$ . Alors, seulement 25% des électrons excités par des photons ayant un moment cinétique  $+\hbar$  ont un spin  $up$ . Il est important de noter que dans cette étape, la projection des spins est définie en relation avec la direction de propagation des rayons X.

Dans la deuxième étape, les photoélectrons doivent se trouver une place dans la bande de valence au-dessus de l'énergie de Fermi. La densité d'états dans la bande de valence, qui est une fonction du spin, est représentée à la Figure 2.12. Puisque la probabilité de transition dépend du nombre d'états inoccupés accessibles, les transitions des électrons pour lesquels le spin donne accès au plus grand nombre d'états libres sont favorisées. Ainsi, pour la transition  $L_3$  et en considérant qu'il y a plus d'états libres pour les spins  $up$ , on s'attend à avoir plus d'absorption pour les photons de moment cinétique  $+\hbar$ . C'est effectivement ce qui est démontré à la Figure

---

<sup>3</sup> Dans ce qui suit, seuls les rayons X seront mentionnés. Par contre, les méthodes résonantes fonctionnent également avec le rayonnement ultraviolet extrême, à condition que l'énergie des photons corresponde à un seuil d'absorption du matériau étudié.

2.12. Dans cette étape, la bande de valence agit comme un détecteur de spin; la projection des spins est redéfinie en relation avec l'orientation du champ magnétique (c'est-à-dire de l'aimantation). Le XMCD est donc plus intense si l'aimantation est parallèle (ou antiparallèle) à la direction de propagation des rayons X. Pour cette raison, le XMCD peut être mesuré de deux façons, soit en comparant l'absorption des photons de moment cinétique  $\pm\hbar$  ou en utilisant toujours la même polarisation et en changeant plutôt l'orientation de l'aimantation. Cette dernière approche est souvent préférée puisqu'elle garantit que la qualité de la polarisation circulaire et l'intensité du rayonnement restent constantes au long de l'expérience.

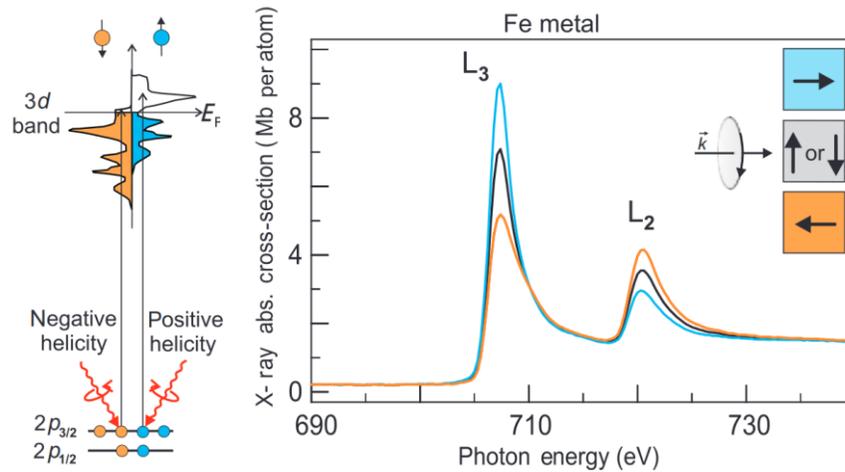


Figure 2.12 Dichroïsme magnétique circulaire de rayons X

(À gauche) Schéma d'une transition électronique donnant naissance au dichroïsme magnétique circulaire de rayons X. La densité d'états de la bande de valence  $3d$ , qui croise l'énergie de Fermi, dépend du spin des électrons. (À droite) Spectre d'absorption résultant. La probabilité de transition vers la bande de valence  $3d$  à partir du niveau  $2p_{3/2}$  (transition  $L_3$ ) ou à partir du niveau  $2p_{1/2}$  (transition  $L_2$ ) dépend de la polarisation des photons ou de l'orientation de l'aimantation. Figure reproduite avec l'autorisation de Springer Nature Customer Service Centre GmbH: Springer, Magnetism: from fundamentals to nanoscale dynamics by Stöhr *et al.*, © 2006 [24].

Une force du XMCD est que cette méthode permet de retrouver expérimentalement le moment cinétique orbital total  $L$  et le spin total  $S$  de la couche recevant le photoélectron. En effet, les règles de somme, développées par Thole *et al.* [125,126], permettent de séparer les contributions des moments cinétiques de spin et orbital à partir de la différence entre le spectre d'absorption obtenu pour les transitions  $L_2$  et  $L_3$  avec les deux polarisations circulaires (ou, alternativement, avec les deux orientations de l'aimantation). L'accès à ces informations a joué un rôle crucial dans notre compréhension de la désaimantation ultrarapide puisqu'il a permis de définir que le moment cinétique orbital ne constitue pas un réservoir transitoire important de moment cinétique [8,32].

Le XMCD comporte des avantages non négligeables. En tant que phénomène résonant, il permet d'isoler les dynamiques individuelles des éléments qui composent l'échantillon. Dans certains

cas, il permet d'extraire le spin ainsi que le moment cinétique orbital par les règles de somme. Par contre, cette méthode requiert une source de rayons X polarisés circulairement, ce qui constitue un défi technologique important. De telles sources sont assez courantes dans les grandes infrastructures comme les sources synchrotrons et les FELs, mais leur implémentation avec des sources de génération d'harmoniques d'ordres élevés reste limitée [127–129]. Le XMCD a tout de même connu beaucoup de succès pour l'étude de la désaimantation ultrarapide [8,32,64,130].

### 2.4.3 Diffusion magnétique résonante de rayons X

La diffusion magnétique résonante de rayons X, ou XRMS (de l'anglais *X-ray Resonant Magnetic Scattering*) est également un phénomène résonant. Le XRMS peut être compris comme une extension du XMCD à un échantillon présentant une structure de domaines magnétiques. À cause du dichroïsme circulaire magnétique, l'indice de réfraction associé aux domaines magnétiques individuels pour une polarisation circulaire donnée dépend de l'orientation relative entre l'aimantation locale et la direction de propagation du faisceau. Alors, les domaines magnétiques sont visibles pour le rayonnement X et l'échantillon agit comme un réseau. Dans le champ lointain, un patron peut être observé (voir la Figure 2.13).

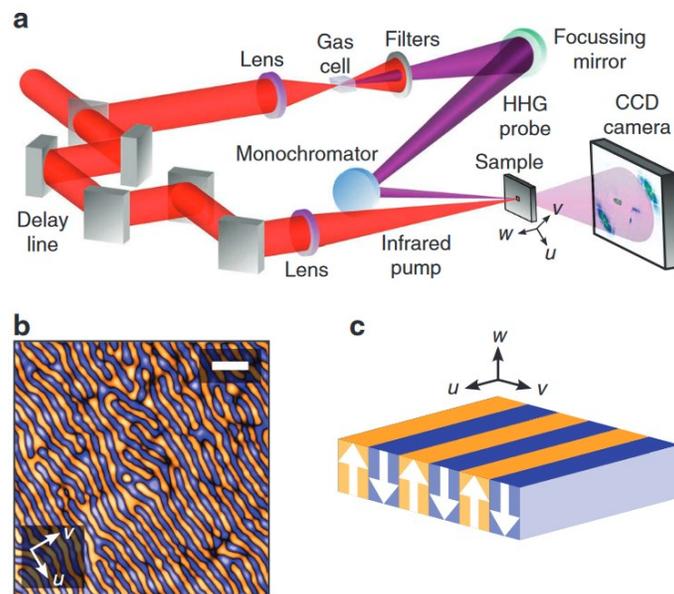


Figure 2.13 Diffusion magnétique résonante de rayons X

(a) Schéma d'un montage de diffusion magnétique résonante de rayons X résolu en temps. La sonde (en violet), qui contient des photons correspondants à un seuil d'absorption de l'échantillon, est transmise au travers de l'échantillon et le patron généré par la diffusion résonante magnétique est capté par une caméra. La pompe (en rouge) excite la désaimantation ultrarapide. (b) Structure des domaines magnétiques de l'échantillon. (c) Pour optimiser le signal XRMS, les domaines magnétiques de l'échantillon sont aimantés hors-plan, c'est-à-

dire parallèlement à la direction de propagation du faisceau. Figure reproduite avec l'autorisation de Springer Nature Customer Service Centre GmbH: Springer Nature, Nature Communications, Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network, Vodungbo *et al.*, © 2012 [31].

La forme du patron peut être reliée aux dimensions et à la distribution spatiale des domaines magnétiques tandis que l'intensité du patron donne de l'information sur le contraste magnétique entre les domaines. Pour maximiser le signal XRMS, une géométrie en transmission à travers un échantillon aimanté hors-plan est généralement utilisée (Figure 2.13(a)). Étant donné que la polarisation linéaire est simplement une superposition des polarisations circulaires gauche et droite, les domaines magnétiques sont également visibles pour le rayonnement X polarisé linéairement. Donc, le XRMS ne nécessite pas de source de rayons X polarisés circulairement, ce qui facilite son implémentation avec les sources obtenues par génération d'harmoniques d'ordres élevés.

La relation entre l'intensité du patron et l'aimantation peut être déduite à partir du tenseur diélectrique [31]. On sait que pour les effets magnéto-optiques, l'indice de réfraction obtenu lorsque le faisceau se propage parallèlement à l'aimantation est donnée par l'équation (2.37), soit  $n^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy}$ . On peut réécrire cette équation sous la forme  $n_{\pm} = 1 - (\delta \pm \Delta\delta) + i(\beta \pm \Delta\beta)$ . Alors, le dichroïsme circulaire est donné par  $\Delta\beta$  et la biréfringence circulaire par  $\Delta\delta$  [131,132]. Ces deux quantités sont proportionnelles à l'aimantation  $M$ . Dans les échantillons magnétiques utilisés pour les travaux présentés dans ce document, les domaines magnétiques sont beaucoup plus larges que les murs de domaines. Donc, les échantillons agissent comme un réseau de transmission carré. Pour un tel réseau de transmission, l'intensité diffractée dans le premier ordre dépend de la différence de transmission entre les domaines [133]:

$$I \propto |T_+ - T_-|^2, \quad (2.39)$$

où  $T_{\pm} = e^{\frac{2\pi id n_{\pm}}{\lambda}}$  est la transmission associé aux domaines pour lesquels l'aimantation est parallèle ou antiparallèle à la direction de propagation du faisceau, respectivement, avec  $d$  l'épaisseur de l'échantillon. On a donc :

$$\begin{aligned} I &\propto \left| e^{\frac{2\pi id n_+}{\lambda}} - e^{\frac{2\pi id n_-}{\lambda}} \right|^2 \\ &= \left| e^{\frac{2\pi id [1-\delta+i\beta]}{\lambda}} e^{\frac{2\pi id [-\Delta\delta+i\Delta\beta]}{\lambda}} - e^{\frac{2\pi id [1-\delta+i\beta]}{\lambda}} e^{\frac{2\pi id [\Delta\delta-i\Delta\beta]}{\lambda}} \right|^2 \\ &= \left| e^{\frac{2\pi id n}{\lambda}} \right|^2 \left| e^{\frac{2\pi id [-\Delta\delta+i\Delta\beta]}{\lambda}} - e^{\frac{2\pi id [\Delta\delta-i\Delta\beta]}{\lambda}} \right|^2. \end{aligned} \quad (2.40)$$

Puisque  $\Delta\delta$  et  $\Delta\beta$  sont petits, on peut développer les exponentielles :

$$\begin{aligned}
 I &\propto \left| 1 - \frac{2\pi d}{\lambda} [-i\Delta\delta - \Delta\beta] - 1 + \frac{2\pi d}{\lambda} [i\Delta\delta + \Delta\beta] \right|^2 \\
 &= \left( \frac{2\pi d}{\lambda} \right)^2 |2i\Delta\delta + 2\Delta\beta|^2 \\
 &= 4 \left( \frac{2\pi d}{\lambda} \right)^2 [\Delta\delta^2 + \Delta\beta^2].
 \end{aligned} \tag{2.41}$$

Finalement, on a donc  $I \propto M^2$ . Ainsi, il suffit de mesurer une variation de l'intensité dans le premier ordre de diffraction afin d'obtenir une mesure relative du changement de l'aimantation dans le temps.

Le XRMS peut également être étudié à partir d'un formalisme différent qui tient explicitement compte du processus de diffusion électron-photon. Dans la limite de l'approximation dipolaire, ce formalisme est équivalent à l'utilisation du tenseur diélectrique [131]. Lors de l'interaction entre des photons X et des atomes magnétiques, l'amplitude de la diffusion élastique est décrite par le facteur de forme suivant :

$$f(\vec{q}, \omega) = f^0(\vec{q}) + f'(\omega) + if''(\omega), \tag{2.42}$$

où  $q = 4\pi \sin \theta / \lambda$  est le vecteur de diffusion,  $f^0$  est le facteur de diffusion des charges, soit la transformée de Fourier de la distribution des charges, et  $f'$  et  $f''$  apportent des corrections au facteur de forme total. Certaines de ces corrections deviennent importantes près des seuils d'absorption. En considérant seulement ces corrections résonantes, le facteur de forme atomique peut être écrit en fonction de la polarisation du rayonnement [134]:

$$f = (\vec{e}_f^* \cdot \vec{e}_i) f_c + i(\vec{e}_f^* \times \vec{e}_i) \cdot \vec{m} f_{m1} + (\vec{e}_f^* \cdot \vec{m})(\vec{e}_i \cdot \vec{m}) f_{m2}, \tag{2.43}$$

où  $\vec{e}_i$  et  $\vec{e}_f$  sont les vecteurs de polarisation du rayonnement incident et diffusé, respectivement, et  $\vec{m}$  est le vecteur unitaire de l'aimantation. Les quantités complexes  $f_c$ ,  $f_{m1}$  et  $f_{m2}$  décrivent l'amplitude de la diffusion pour chaque terme. Le premier terme contient la diffusion des charges résonante et non résonante. Pour des échantillons ayant peu d'hétérogénéité de charge, ce terme peut être négligé. Le second terme provient du dichroïsme magnétique circulaire; il décrit la diffusion d'une polarisation  $\vec{e}_i$  vers une polarisation perpendiculaire  $\vec{e}_f$ . De plus, l'amplitude de ce processus de diffusion est maximisée lorsque le faisceau incident se propage de façon parallèle ou antiparallèle à l'aimantation. Le dernier terme s'annule pour la géométrie présentée à la Figure 2.13.

L'intensité de la diffusion peut être calculée à partir de la transformée de Fourier de l'amplitude de diffusion  $f$ . Pour une distribution de charges homogène illuminée par un rayonnement polarisé linéairement, ce qui correspond aux échantillons utilisés ici, l'intensité est proportionnelle au carré

de la transformée de Fourier de l'aimantation [135], soit  $I(\vec{q}) \propto |M(\vec{q})|^2$ . Ainsi, dans le champ lointain, on obtient bel et bien un patron dont la distribution spatiale informe sur la structure des domaines et dont l'intensité est reliée à l'amplitude de l'aimantation.

Le XRMS offre plusieurs avantages par rapport au XMCD. D'abord, le XRMS peut être utilisé avec du rayonnement X polarisé linéairement, ce qui est idéal pour les sources basées sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés (voir la section 3.2). De plus, Le XRMS donne accès à la distribution spatiale de l'aimantation et permet donc d'étudier d'éventuelles variations de la structure des domaines magnétiques. Enfin, pour le XMCD, deux mesures doivent être effectuées pour pouvoir quantifier l'aimantation, soit une mesure du spectre pour chaque orientation de l'aimantation. L'échantillon doit donc être plongé dans un champ magnétique variable, ce qui contribue à la complexité de l'expérience. Par contraste, une seule mesure est nécessaire pour obtenir une mesure relative de l'aimantation avec le XRMS. Le XRMS comporte également quelques désavantages. Cette méthode ne peut être employée que pour certains échantillons qui doivent présenter un réseau de domaines et une aimantation hors-plan. Le XRMS souffre également d'une faible efficacité : la diffusion magnétique elle-même est peu efficace et les échantillons utilisés ont une faible transmission, donc la source employée doit générer un haut flux de photons. Par exemple, l'efficacité de diffusion de premier ordre d'un échantillon de cobalt est de l'ordre de  $10^{-6}$  [136]. Finalement, comme toutes les méthodes résonantes basées sur le rayonnement XUV ou les rayons X mous, le XRMS doit être utilisé sous vide pour éviter l'absorption des photons dans l'air.



### 3 SOURCES DE LUMIÈRE

---

Les sources de lumières utilisées dans les travaux présentés ici vont de l'infrarouge moyen aux rayons X mous. Ceci correspond à une palette de longueurs d'onde allant de  $\sim 9 \mu\text{m}$  à  $\sim 7 \text{nm}$ , ou à des photons de  $\sim 0.14 \text{eV}$  à  $\sim 155 \text{eV}$ . Pourtant, ces sources sont toutes basées sur des systèmes lasers offrant des impulsions ultracourtes dans le proche infrarouge, soit un système titane-saphir et un système ytterbium. Pour produire les différentes longueurs d'onde utilisées, des procédés d'optique non-linéaire sont utilisés.

L'optique non-linéaire comprend l'ensemble des phénomènes pour lesquels la réponse d'un matériau à l'application d'un champ électromagnétique est modifiée par la présence même du champ. Ces phénomènes se produisent donc lorsque le champ électromagnétique est assez intense pour modifier les propriétés optiques du matériau avec lequel il interagit. Dans ce régime, la réponse du milieu ne peut être décrite qu'en relation avec l'amplitude du champ électrique oscillant. De plus, cette relation n'est pas linéaire, d'où l'appellation « optique non-linéaire ». Puisque l'optique non-linéaire requiert un champ électromagnétique intense, elle est généralement associée à des impulsions laser ultracourtes.

Les phénomènes d'optique non-linéaire offrent une variété de processus par lesquels les impulsions laser peuvent être altérées. Par exemple, si l'intensité du champ laser est suffisamment élevée, l'indice de réfraction peut être modifié par son interaction avec le milieu. Puisque les profils spatial et temporel des impulsions laser ne sont pas uniformes, différentes sections des impulsions subissent des indices de réfraction différents. Ainsi, la propagation de la lumière dans le milieu est affectée. Un autre effet possible des phénomènes non-linéaires est la génération de nouvelles fréquences (ou longueurs d'onde). C'est en utilisant de tels processus qu'il est possible de produire des sources de lumières variées à partir d'impulsions ultracourtes dans le proche infrarouge.

La première démonstration expérimentale de la génération de nouvelles fréquences a été publiée en 1961 par Franken *et al.* [137]. Cette découverte a marqué l'avènement d'un nouveau domaine de recherche avec des retombées en physique, en chimie et en biologie. Au fil des ans, le développement de technologies lasers a offert des sources toujours plus intenses qui permettent de repousser les limites de l'optique non-linéaire. Dans ce chapitre, deux grands thèmes de l'optique non-linéaire sont abordés : la génération de nouvelles fréquences dans le visible et dans l'infrarouge à partir de procédés d'optique non-linéaire dans des cristaux, et la génération de photons de l'ultraviolet extrême aux rayons X mous par génération d'harmoniques d'ordres

élevés.

### 3.1 Optique non-linéaire dans les cristaux

#### 3.1.1 Polarisation non-linéaire

Tous les phénomènes d'origine électromagnétique peuvent être décrits par les équations de Maxwell, qui détaillent les effets macroscopiques de l'interaction entre la matière et les champs électrique et magnétique. Les équations de Maxwell sont :

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0, \quad (3.1)$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho, \quad (3.2)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \quad (3.3)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J}. \quad (3.4)$$

Avec également les relations suivantes :

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}), \quad (3.5)$$

$$\vec{D} = \epsilon_0\vec{E} + \vec{P}. \quad (3.6)$$

Ici, on s'intéresse en particulier aux conditions retrouvées dans un cristal non-linéaire non-magnétique ( $\vec{M} = 0$ ) dans lequel il n'y a ni charges libres ( $\rho = 0$ ), ni courant ( $\vec{J} = 0$ ). C'est de la polarisation  $\vec{P}$  dont découlent les phénomènes d'optique non-linéaire [138].

La polarisation décrit le mouvement du nuage électronique autour des noyaux atomiques dans le matériau. Lorsque le matériau est placé dans un champ électrique oscillant, le nuage électronique se déplace périodiquement. Puisqu'une particule chargée accélérée émet de la radiation, cette réponse du matériau fait elle-même figure de source de rayonnement électromagnétique. Dans le régime linéaire, la polarisation est directement proportionnelle au champ électrique appliqué et la lumière émise par le matériau est de même fréquence que la lumière incidente. Par contre, si l'intensité devient trop forte, les électrons sont entraînés suffisamment loin de leur atome pour que la forme du puit de potentiel influence significativement la polarisation. Par exemple, dans un cristal, les électrons peuvent ressentir la contribution des atomes voisins au potentiel atomique. La polarisation prend alors une forme qui n'est plus directement proportionnelle au champ électrique du laser. Le mouvement du nuage électronique reste périodique, donc il émet encore

de la radiation, mais celle-ci contient de nouvelles composantes. En fait, on peut développer la polarisation totale en série de puissance du champ électrique :

$$\vec{P}(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} : \vec{E}(t) + \epsilon_0 \chi^{(2)} : \vec{E}(t) \times \vec{E}(t) + \epsilon_0 \chi^{(3)} : \vec{E}(t) \times \vec{E}(t) \times \vec{E}(t) + \dots, \quad (3.7)$$

où les  $\chi^{(j)}$  sont les susceptibilités optiques d'ordre  $j$ . Le premier terme de cette équation correspond au cas linéaire. Les termes suivants décrivent le mouvement non-linéaire des électrons du milieu et, donc, les corrections apportées à la radiation émise en réponse. Pour garantir la forme vectorielle de la polarisation,  $\chi^{(1)}$  est un tenseur de rang 2,  $\chi^{(2)}$  est un tenseur de rang 3, etc. Il est important de noter que cette expression considère que la réponse du matériau est instantanée, ce qui n'est pas le cas dans un matériau réel. Par conséquent, l'équation (3.7) ne tient compte ni de la dispersion, ni de l'absorption. Tel que décrit plus loin, ces effets font que les tenseurs de susceptibilité prennent une forme complexe et dépendent de la fréquence du champ électrique appliqué.

On peut séparer les différents termes de l'équation (3.7) comme suit :

$$\vec{P}(t) = \vec{P}^{(1)}(t) + \vec{P}^{(2)}(t) + \vec{P}^{(3)}(t) + \dots, \quad (3.8)$$

ce qui nous permet d'étudier indépendamment l'effet de la polarisation de premier ordre  $\vec{P}^{(1)}$ , de second ordre  $\vec{P}^{(2)}$ , etc. En notation indicielle, chaque composante de la polarisation est donnée par :

$$\begin{aligned} P_i^{(1)} &= \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j, \\ P_i^{(2)} &= \epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k, \\ &\dots \end{aligned} \quad (3.9)$$

Les indices  $i$ ,  $j$  et  $k$  dénotent les composantes cartésiennes du système. Les phénomènes non-linéaires les plus courants peuvent être décrits à partir de la polarisation de second ordre donnée à l'équation (3.9). Considérons un champ électrique incident polarisé linéairement et parallèlement à l'axe  $x$ , de la forme :

$$\vec{E}(t) = E_0 \hat{x} e^{i\omega t} \frac{(e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})}{2}. \quad (3.10)$$

Le terme quadratique du vecteur de polarisation devient :

$$\begin{aligned} P_x^{(2)} &= \epsilon_0 \chi_{xxx}^{(2)} E_0^2 \hat{x} \frac{(e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})^2}{4}, \\ &= \epsilon_0 \chi_{xxx}^{(2)} E_0^2 \hat{x} \frac{(e^{i(2\omega)t} + e^{-i(2\omega)t} + 2)}{4}, \\ &= \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{xxx}^{(2)} E_0^2 \hat{x} + \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{xxx}^{(2)} E_0^2 \hat{x} \frac{(e^{i(2\omega)t} + e^{-i(2\omega)t})}{2}. \end{aligned} \quad (3.11)$$

Ceci correspond à la superposition d'un dipôle de fréquence nulle et d'un dipôle oscillant à la

fréquence  $2\omega$ , soit le double de la fréquence du champ incident. Ainsi, le milieu émet de la radiation au double de la fréquence initiale. C'est la génération de second harmonique.

En considérant plutôt un champ incident composé de deux fréquences, la polarisation de second ordre fait ressortir plusieurs phénomènes non linéaires. Le champ électrique prend la forme :

$$\vec{E}(t) = E_1 \hat{x} \frac{(e^{i\omega_1 t} + e^{-i\omega_1 t})}{2} + E_2 \hat{x} \frac{(e^{i\omega_2 t} + e^{-i\omega_2 t})}{2}. \quad (3.12)$$

La polarisation de second ordre peut être développée comme suit :

$$\begin{aligned} P_x^{(2)} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{xxx}^{(2)} \hat{x} & \left[ E_1^2 + E_1^2 \frac{(e^{i(2\omega_1)t} + e^{-i(2\omega_1)t})}{2} \right. \\ & + E_2^2 + E_2^2 \frac{(e^{i(2\omega_2)t} + e^{-i(2\omega_2)t})}{2} \\ & + E_1 E_2 \frac{(e^{i(\omega_1 + \omega_2)t} + e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t})}{2} \\ & \left. + E_1 E_2 \frac{(e^{i(\omega_1 - \omega_2)t} + e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t})}{2} \right]. \end{aligned} \quad (3.13)$$

Cette expression contient des termes sources de cinq fréquences différentes, soit  $\omega = \{0, 2\omega_1, 2\omega_2, \omega_1 + \omega_2, \omega_1 - \omega_2\}$ . Chaque terme correspond à un phénomène non-linéaire. Les termes de fréquence nulle conduisent au redressement optique, les termes en  $2\omega_1$  ou  $2\omega_2$  représentent la génération de second harmonique, le terme en  $\omega_1 + \omega_2$  mène à la génération par somme de fréquences et le terme en  $\omega_1 - \omega_2$  correspond à la génération par différence de fréquences.

### 3.1.2 Phénomènes non-linéaires de second ordre

Les procédés non-linéaires d'ordre 2 sont ceux qui résultent d'un tenseur  $\chi^{(2)}$  non nul. Pour des raisons de symétrie, ces procédés ne peuvent se produire que dans un milieu non-centrosymétrique. En effet, puisque  $P^{(2)}(t)$  a une dépendance quadratique avec le champ incident, il reste inchangé lorsque le champ électrique est inversé de  $E(t)$  à  $-E(t)$ . Pour garantir cette relation, le potentiel qui maintient le nuage d'électrons autour de chaque atome ne doit pas être symétrique. Donc, le matériau ne peut être isotrope ni posséder de centre d'inversion.

Tels que mentionnés plus haut, les procédés d'ordre 2 incluent le redressement optique, la génération de second harmonique, la génération par somme de fréquences et la génération par différence de fréquences, mais aussi l'effet électro-optique.

Redressement optique

Le redressement optique provient des termes de fréquence nulle de la polarisation non-linéaire. Pour un matériau illuminé par une onde électromagnétique d'amplitude constante, il s'agit donc

d'un changement constant à la polarisation du matériau. Dans ce cas, le redressement optique n'est pas source de radiation puisqu'il ne cause pas d'oscillations du nuage électronique. Cependant, si l'amplitude du signal incident varie dans le temps, comme c'est le cas pour une impulsion ultracourte, la contribution du redressement optique à la polarisation est également dépendante du temps. Cette variation lente de la polarisation correspond à l'émission d'un unique cycle optique de fréquence très basse. Ainsi, le redressement optique peut être utilisé pour générer des impulsions de l'infrarouge lointain au régime térahertz [139,140].

#### Effet électro-optique

Les effets électro-optiques regroupent tous les phénomènes pour lesquels un champ électrique quasi statique dans le matériau induit un changement à l'indice de réfraction du matériau. L'effet électro-optique ayant une non-linéarité de second ordre est nommé « effet Pockels » et correspond à une variation de l'indice de réfraction proportionnelle au champ électrique appliqué. Ainsi, le matériau présente une biréfringence qui peut être contrôlée par l'intensité du champ électrique appliqué. Cet effet est utilisé, entre autres, pour créer des lames à retard variables.

#### Génération de second harmonique

Tel que représenté à la Figure 3.1, la génération de second harmonique (SHG, de l'anglais *Second Harmonic Generation*) est la génération d'une onde électromagnétique de fréquence double par rapport à l'onde incidente. Il existe plusieurs applications de la SHG. En particulier, ce phénomène connaît beaucoup de succès pour la caractérisation de matériaux. La contrainte de non-centrosymétrie fait que la SHG peut avoir lieu à l'interface entre deux milieux et ainsi contenir de l'information sur la qualité de la surface d'un échantillon [141]. De plus, la SHG offre des avantages considérables en microscopie [142]. Comme tous les procédés non-linéaires, la SHG n'est efficace que si le faisceau est suffisamment intense. Donc, seules les régions d'un matériau qui se trouvent près du plan focal participent au signal. Ainsi, la résolution spatiale est accrue. De plus, puisque la longueur d'onde du signal généré est très différente de celle du faisceau incident, le signal peut être aisément isolé. Ceci améliore le ratio de signal sur bruit. En outre, contrairement à d'autres procédés comme la fluorescence, la SHG n'implique aucune absorption d'énergie par l'échantillon. Il s'agit donc d'un processus idéal pour l'étude de matériaux fragiles tels que les matériaux biologiques [143].

La SHG sert également de source de lumière. En effet, il s'agit d'un processus simple qui permet de générer des impulsions ultracourtes dans l'ultraviolet, une région spectrale où il existe peu de milieux permettant l'amplification linéaire d'impulsions femtosecondes. Dans le cadre des travaux

présentés ici, la SHG est utilisée pour générer des impulsions ultracourtes d'une longueur d'onde de  $\sim 400$  nm, soit le double de la fréquence associée à la longueur d'onde centrale d'un laser titane-saphir à  $\sim 800$  nm. Ces impulsions servent ensuite à pomper la désaimantation ultrarapide (chapitre 5) ou à sonder l'aimantation par MOKE (chapitres 7 et 8). Finalement, la SHG est communément utilisée pour caractériser des impulsions ultracourtes par autocorrélation résolue en fréquence (FROG, de l'anglais *Frequency-Resolved Optical Gating*).

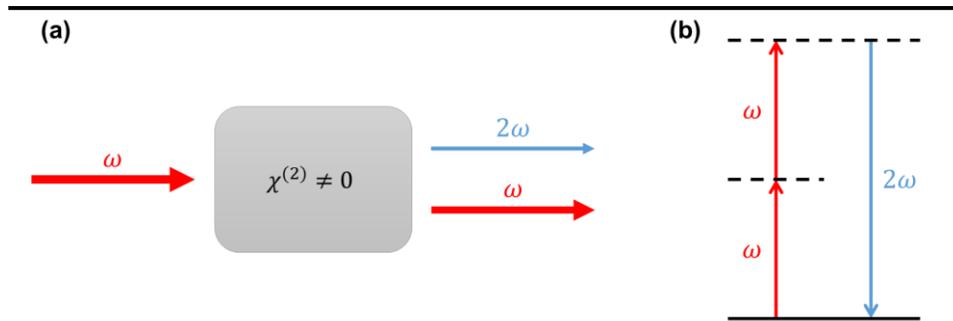


Figure 3.1 Génération de second harmonique

(a) Représentation de la géométrie de la SHG. À la sortie d'un matériau ayant une susceptibilité d'ordre 2 non nulle, le signal contient une faible contribution de fréquence double. (b) Représentation en niveaux d'énergie de la SHG. Deux photons de fréquence  $\omega$  sont absorbés vers des états virtuels (en pointillés) et un photon de fréquence  $2\omega$  est émis.

Génération par somme de fréquences

La génération par somme de fréquences (SFG, de l'anglais *Sum Frequency Generation*) est une généralisation de la SHG. Lorsqu'un matériau non-linéaire est illuminé par deux fréquences incidentes, une fréquence supplémentaire qui correspond à leur somme peut être générée. Ce processus est représenté à la Figure 3.2.

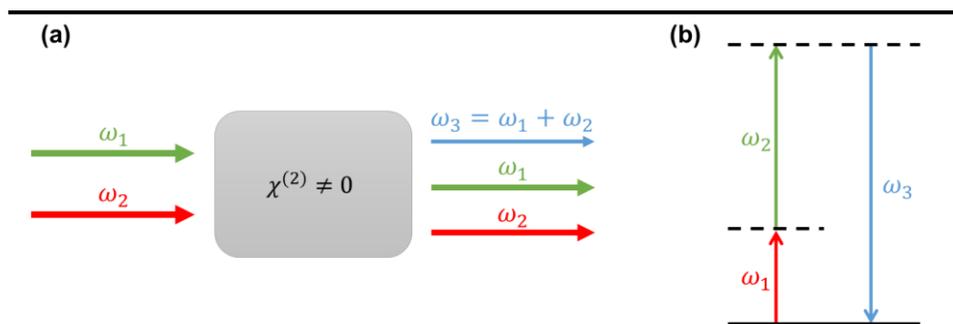


Figure 3.2 Génération par somme de fréquences

(a) Représentation de la géométrie de la SFG. Le signal à la sortie du matériau non-linéaire contient une contribution dont la fréquence correspond à la somme des fréquences incidentes. (b) Représentation en niveaux d'énergie de la SFG. Deux photons de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  sont absorbés vers des états virtuels (en pointillés) et un photon de fréquence  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  est émis.

## Génération par différence de fréquences

La génération par différence de fréquences (DFG, de l'anglais *Difference Frequency Generation*) nécessite également l'application de deux fréquences incidentes. Tel que représenté à la Figure 3.3, le signal résultant contient une troisième fréquence qui correspond à la différence entre les fréquences incidentes. Ce processus est un peu différent de la SFG. Dans le processus de différence de fréquences, un des photons du faisceau incident ayant la plus haute fréquence  $\omega_1$ , aussi nommé la « pompe », est divisé en deux photons de fréquences moindres. Les photons incidents de fréquence  $\omega_2$  servent seulement à guider la différence de fréquences afin que les photons générés aient des énergies qui correspondent aux fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ . À la sortie du matériau non-linéaire, le faisceau de pompe est appauvri, mais le faisceau de fréquence  $\omega_2$ , aussi nommé le « signal », est amplifié. De plus, un nouveau faisceau de fréquence  $\omega_3$ , aussi nommé « l'idler »<sup>4</sup>, est ajouté. Lorsque la DFG est utilisée dans le but d'amplifier le signal plutôt que pour générer une nouvelle fréquence, elle est nommée « amplification paramétrique optique » (OPA, de l'anglais *Optical Parametric Amplification*).

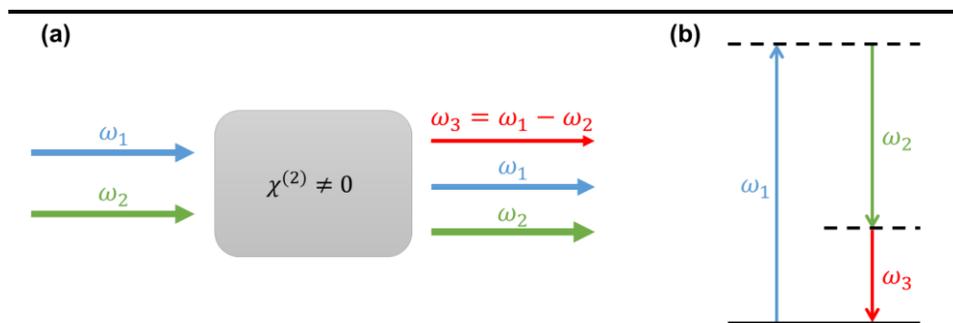


Figure 3.3 Génération par différence de fréquences

(a) Représentation de la géométrie de la DFG. À la sortie du matériau non-linéaire, une contribution dont la fréquence correspond à la différence des fréquences incidentes est générée. (b) Représentation en niveaux d'énergie de la DFG. Un photon de fréquence  $\omega_1$  est absorbé vers un état virtuel (en pointillés). Ensuite, la présence de photons de fréquence  $\omega_2$  stimule la génération d'un nouveau photon à cette fréquence ainsi que celle d'un photon de fréquence  $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ .

La DFG permet de générer des impulsions ultracourtes dans les régions spectrales de l'infrarouge aux térahertz. Dans les travaux présentés ici, c'est ce processus qui est utilisé pour générer toutes les impulsions de longueur d'onde supérieure à celle donnée par le système laser titane-saphir. Souvent, plusieurs étapes non-linéaires consécutives sont nécessaires pour obtenir une source acceptable. Par exemple, au laboratoire ALLS, un système commercial HE-TOPAS (Light Conversion, Inc.) permet de générer des impulsions infrarouges de haute énergie avec des

<sup>4</sup> En français, le mot « complémentaire » est parfois utilisé, mais la version anglaise « *idler* » reste courante.

longueurs d'onde entre 1.25  $\mu\text{m}$  et 2.5  $\mu\text{m}$  à partir d'impulsions centrées à 800 nm. Ce système contient quatre étapes non-linéaires qui sont toutes pompées par des impulsions à 800 nm [144]. D'abord, un spectre large de faible intensité est généré dans une fenêtre de saphir par des procédés non-linéaires qui ne seront pas décrits ici. Ensuite, le faisceau à 800 nm est couplé à une des fréquences contenues dans ce spectre large dans un cristal de  $\beta$ -borate de baryum (BBO), où la génération par différence de fréquences a lieu. Finalement, le faisceau de fréquence désirée, qui peut correspondre au signal ou à l'*idler* provenant de la DFG, est amplifié par deux étapes d'OPA. Pour générer des impulsions dans l'infrarouge moyen, une troisième étape d'amplification est ajoutée [144], puis un cristal de GaSe est utilisé pour faire la DFG entre le signal et l'*idler* issus de la dernière amplification.

### 3.1.3 Domaine des fréquences

L'équation (3.7) décrit la polarisation non-linéaire sous l'approximation selon laquelle la réponse du matériau est instantanée, sans considérer la dispersion ni l'absorption. Dans le cas plus général, la polarisation dépend du champ appliqué dans le passé et dans le présent. On peut écrire [145]:

$$\begin{aligned}\vec{P}^{(1)}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^t \chi^{(1)}(t-t') : E(t') dt', \\ \vec{P}^{(2)}(t) &= \epsilon_0 \iint_{-\infty}^t \chi^{(2)}(t-t_1, t-t_2) : \vec{E}(t_1) \times \vec{E}(t_2) dt_1 dt_2, \\ &\dots\end{aligned}\tag{3.14}$$

Une transformée de Fourier permet de passer dans le domaine des fréquences. Pour des champs incidents monochromatiques, la polarisation non-linéaire d'ordre 2 devient :

$$\vec{P}^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \iint_{-\infty}^{\infty} \chi^{(2)}(\omega, \omega_1, \omega_2) : \vec{E}(\omega_1) \times \vec{E}(\omega_2) \delta(\omega - \omega_1 - \omega_2) d\omega_1 d\omega_2.\tag{3.15}$$

La fonction de Dirac implique que cette relation est non-nulle seulement lorsque  $\omega = \omega_1 + \omega_2$ , en incluant également dans ce calcul les fréquences négatives. En notation indicielle, on obtient :

$$P_i^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(nm)} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n + \omega_m, \omega_n, \omega_m) E_j(\omega_n) E_k(\omega_m),\tag{3.16}$$

où la somme sur les fréquences  $\omega_n$  et  $\omega_m$  doit être maintenue constante de façon à avoir  $\omega = \omega_n + \omega_m$ .

Par exemple, la polarisation non-linéaire de fréquence  $\omega = \omega_1 + \omega_2$ , qui correspond à la génération par somme de fréquences, est :

$$P_i^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \sum_{jk} \left[ \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) + \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_2, \omega_1) E_j(\omega_2) E_k(\omega_1) \right].\tag{3.17}$$

Cette équation peut être simplifiée en considérant la symétrie de permutation intrinsèque de la

susceptibilité. Cette relation de symétrie provient simplement du fait que la polarisation ne doit pas dépendre de l'ordre dans lequel les champs électriques incidents sont considérés. Alors, on a :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_2, \omega_1), \quad (3.18)$$

et :

$$P_i^{(2)}(\omega) = 2\epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2). \quad (3.19)$$

Dépendamment du système étudié, d'autres symétries peuvent être utilisées pour simplifier encore cette expression [138].

### 3.1.4 Accord de phase

Dans des cristaux non-linéaires réels d'épaisseur non-nulle, les ondes générées à différentes profondeurs peuvent interférer entre elles. Pour s'assurer que les ondes générées près de l'entrée du cristal n'interfèrent pas de façon destructive avec les ondes générées en profondeur, ce qui réduirait l'efficacité du processus non-linéaire, il faut garantir que la relation de phase entre l'onde générée et la polarisation du milieu reste idéale. C'est l'accord de phase.

À partir des équations de Maxwell présentées à la section 3.1.1, il est possible de dériver comment l'amplitude des nouvelles fréquences générées varie pendant la propagation dans le matériau non-linéaire. Le rotationnel de l'équation (3.3) donne :

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\nabla \times \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial t} (\nabla \times \vec{B}). \quad (3.20)$$

Pour un matériau d'aimantation nulle,  $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$ . Le rotationnel de  $\vec{H}$  est donné par l'équation (3.4) avec un courant  $\vec{j} = 0$  :

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \right). \quad (3.21)$$

En séparant la polarisation entre un terme linéaire  $\vec{P}^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$  et un terme non-linéaire  $\vec{P}^{(NL)} = \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots$ , on obtient :

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\epsilon_0 \epsilon_r \vec{E} + \vec{P}^{(NL)}). \quad (3.22)$$

L'identité  $\nabla \times \nabla \times \vec{v} = \nabla(\nabla \cdot \vec{v}) - \nabla^2 \vec{v}$  peut alors être utilisée, avec également  $\epsilon_0 \mu_0 = 1/c^2$  :

$$-\nabla(\nabla \cdot \vec{E}) + \nabla^2 \vec{E} - \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{(NL)}. \quad (3.23)$$

Dans l'approximation de l'enveloppe variant lentement,  $\nabla \cdot \vec{E}$  est négligeable. Cette approximation est valide pour des impulsions longues par rapport à un cycle optique, donc elle peut être

appliquée pour des faisceau de faible bande spectrale. Pour des impulsions ultracourtes avec une bande spectrale très large, il a été démontré qu'une généralisation de cette approximation peut tout de même être utilisée [146]. Sous cette approximation, l'équation d'onde associée au système est donc :

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{(NL)}. \quad (3.24)$$

À titre d'exemple, considérons le cas de la génération par somme de fréquences. L'équation (3.19), qui décrit la polarisation non-linéaire, peut être réécrite sous forme scalaire et sans la somme en considérant que les deux champs électriques ainsi que la polarisation non-linéaire ont une polarisation fixe :

$$P^{(2)}(\omega_3) = 2\epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) E(\omega_1) E(\omega_2). \quad (3.25)$$

Dans ce qui suit, on omettra les fréquences dans la notation de la susceptibilité. Les champs électriques correspondent à des ondes planes monochromatiques de la forme :

$$E(\omega_i) = A_i e^{i(k_i z - \omega_i t)}, \quad (3.26)$$

où on défini  $k_i = n_i \omega_i / c$ , avec  $n_i$  l'index de réfraction correspondant à la polarisation du faisceau.

Le champ généré par SFG est donc décrit par cette équation d'onde :

$$\begin{aligned} \nabla^2 E(\omega_3) - \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(\omega_3) &= \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^{(2)}(\omega_3), \\ \Rightarrow \left[ \nabla^2 A_3 - \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} A_3 \right] e^{i(k_3 z - \omega_3 t)} &= \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} (2\epsilon_0 \chi^{(2)} A_1 A_2 e^{i[(k_1 + k_2)z - \omega_3 t]}). \end{aligned} \quad (3.27)$$

Étant donné que le champ  $E(\omega_3)$  est indépendant des axes  $x$  et  $y$ , on peut remplacer  $\nabla^2$  par une dérivée seconde sur l'axe  $z$  :

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} [A_3 e^{i(k_3 z - \omega_3 t)}] = \left[ \frac{\partial^2}{\partial z^2} A_3 + 2ik_3 \frac{\partial A_3}{\partial z} - k_3^2 A_3 \right] e^{i(k_3 z - \omega_3 t)}. \quad (3.28)$$

Sachant que  $k_3^2 = \frac{n_3^2 \omega_3^2}{c^2} = \frac{\epsilon_r \omega_3^2}{c^2}$ , on obtient :

$$\begin{aligned} \left[ \frac{\partial^2}{\partial z^2} A_3 + 2ik_3 \frac{\partial A_3}{\partial z} \right] e^{i(k_3 z - \omega_3 t)} &= -\frac{2\omega_3^2 \chi^{(2)}}{c^2} A_1 A_2 e^{i[(k_1 + k_2)z - \omega_3 t]}, \\ \Rightarrow \frac{\partial^2}{\partial z^2} A_3 + 2ik_3 \frac{\partial A_3}{\partial z} &= -\frac{2\omega_3^2 \chi^{(2)}}{c^2} A_1 A_2 e^{i(k_1 + k_2 - k_3)z}. \end{aligned} \quad (3.29)$$

Finalement, l'approximation de l'enveloppe variant lentement implique que  $\left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} A_3 \right| \ll \left| k_3 \frac{\partial A_3}{\partial z} \right|$ ,

donc :

$$\frac{\partial A_3}{\partial z} = \frac{i\omega_3^2 \chi^{(2)}}{k_3 c^2} A_1 A_2 e^{i(k_1 + k_2 - k_3)z}. \quad (3.30)$$

La résolution de l'équation (3.30) donne la variation de l'enveloppe du faisceau généré à la fréquence  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  en fonction de la profondeur dans le cristal. Déjà, on peut déterminer que lorsque  $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$  est nul,  $A_3$  augmente linéairement avec la profondeur  $z$ . La condition  $\Delta k = 0$  correspond à un accord de phase parfait : en tout point dans le matériau, l'onde nouvellement générée interfère constructivement avec les ondes générées plus tôt. Évidemment, la génération par somme de fréquences ne peut se produire que si les champs incidents sont suffisamment intenses et ce processus ne peut donc pas continuer infiniment. En fait, il est possible de dériver des équations similaires à l'équation (3.30) pour les amplitudes  $A_1$  et  $A_2$ , qui diminuent avec  $z$ . Néanmoins, si on considère que l'efficacité de la SFG est assez faible pour que l'amplitude des champs incidents demeure presque constante, il suffit d'augmenter l'épaisseur du cristal pour générer plus de puissance dans la fréquence  $\omega_3$ . Dans ce cas, l'amplitude  $A_3$  après une propagation de  $z = 0$  à  $L$  est :

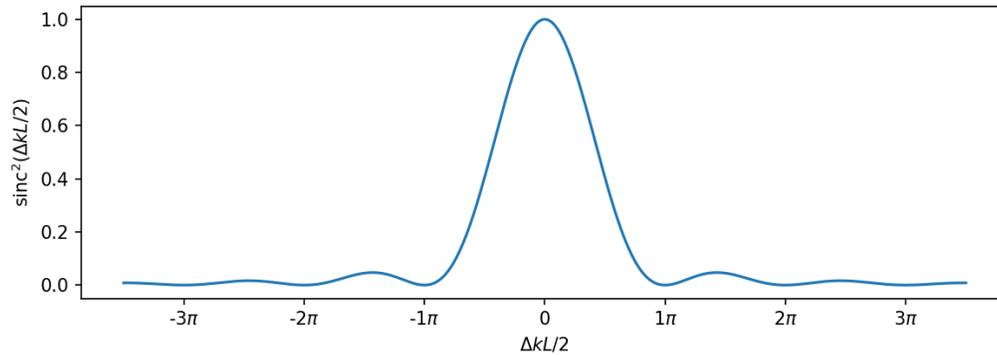
$$A_3(L) = \frac{\omega_3^2 \chi^{(2)}}{k_3 c^2} A_1 A_2 \left( \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \right). \quad (3.31)$$

L'intensité correspondante est proportionnelle au module carré de l'amplitude, soit :

$$\begin{aligned} I_3 &\propto |A_3|^2, \\ &\propto I_1 I_2 L^2 \text{sinc}^2 \left( \frac{\Delta k L}{2} \right). \end{aligned} \quad (3.32)$$

La Figure 3.4 montre que l'intensité de l'onde générée est optimale si le facteur  $\Delta k L/2$  est nul. Puisque l'intensité augmente aussi avec  $L^2$ , il est préférable de réduire  $\Delta k$  pour maximiser  $\text{sinc}^2 \left( \frac{\Delta k L}{2} \right)$  et ainsi optimiser l'efficacité de la génération de nouvelles fréquences. Il est intéressant de noter que dans le cas général,  $\Delta k$  est une quantité vectorielle. Il est donc possible d'utiliser des faisceaux non-colinéaires pour l'optique non-linéaire à condition que la somme

vectorielle des vecteurs d'ondes concernés soit minimisée.



**Figure 3.4 Accord de phase de la SFG**

**Relation entre l'intensité générée et le facteur  $\Delta k L / 2$  pour une valeur constante de  $L$ . Le signal diminue rapidement lorsque  $\Delta k L / 2$  s'éloigne de 0. En plus de cette relation, l'intensité augmente de façon quadratique avec la longueur  $L$ .**

La relation optimale  $\Delta k = 0$  est satisfaite si  $n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 = n_3 \omega_3$ . Cependant, il peut être difficile, voire impossible, de trouver un matériau dans lequel la dispersion permet d'obtenir ce résultat d'emblée. D'ailleurs, dans le régime de dispersion normale, l'indice de réfraction augmente avec la fréquence. Puisque,  $\omega_3 > \omega_{1,2}$  pour la SFG, il n'est pas possible de satisfaire l'accord de phase dans ce régime. En effet, on peut réécrire l'accord de phase comme suit :

$$\begin{aligned} n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 &= n_3 (\omega_1 + \omega_2), \\ (n_1 - n_3) \omega_1 &= (n_3 - n_2) \omega_2. \end{aligned} \quad (3.33)$$

Dans le régime de dispersion normale,  $n_3 > n_{1,2}$  et les deux côtés de l'équation (3.33) n'ont pas le même signe. Une solution courante pour contourner ce problème est d'utiliser des matériaux biréfringents comme cristal non-linéaire.

Dans un matériau biréfringent, l'indice de réfraction dépend de la polarisation de la lumière. En particulier, dans les matériaux biréfringents uniaxes, il existe un « axe optique » qui définit la relation entre la polarisation et l'indice de réfraction. Toutes les ondes de polarisations perpendiculaires à cet axe voient l'indice de réfraction dit « ordinaire »,  $n_o(\omega)$ , et sont nommées « rayons ordinaires ». Les ondes dont la polarisation a une composante parallèle à cet axe voient plutôt l'indice de réfraction dit « extraordinaire »,  $n_e(\omega)$ , qui dépend de l'angle entre l'axe optique et la polarisation. Ce sont les rayons « extraordinaires ».

Dans les matériaux biréfringents, l'indice de réfraction dépend donc non seulement de la fréquence, mais aussi de l'orientation la polarisation des champs incidents et générés par rapport à l'axe optique. Il est ainsi possible de satisfaire  $\Delta k = 0$  si l'onde de plus haute fréquence est

polarisée dans l'axe qui correspond à l'indice de réfraction le plus faible. Dans ce cas, il existe deux possibilités pour les polarisations des ondes de basse fréquence. Si elles sont toutes les deux polarisées dans l'axe qui correspond à l'indice de réfraction le plus élevé, il s'agit d'accord de phase de type I. Si les deux ondes de basse fréquence sont polarisées dans des axes différents, il s'agit d'accord de phase de type II.

Afin d'obtenir l'accord de phase de n'importe quelle combinaison de trois ondes de fréquences différentes dans un matériau biréfringent, il est nécessaire de pouvoir ajuster un des indices de réfraction. Généralement, c'est l'orientation du cristal par rapport à l'axe de propagation des faisceaux incidents qui sert d'ajustement. Ainsi, les rayons ordinaires continuent de voir l'indice  $n_o(\omega)$ , mais l'indice associé aux rayons extraordinaires varie avec l'angle entre l'axe de propagation et l'axe optique. Il est ainsi possible d'optimiser l'accord de phase. Pour cette raison, les cristaux non-linéaires destinés à une utilisation spécifique sont coupés à un angle précis qui améliore l'accord de phase. Par exemple, les cristaux de BBO utilisés pour la génération de second harmonique de type I avec les systèmes laser titane-saphir sont coupés de façon à ce qu'il y ait un angle de  $29.2^\circ$  entre l'axe optique et un faisceau se propageant à incidence normale à la surface du cristal.

## 3.2 Génération d'harmoniques d'ordres élevés

La génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG, de l'anglais *High Harmonic Generation*) est un processus hautement non-linéaire qui produit des photons de haute énergie par l'interaction entre un champ laser intense ( $\sim 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>) et la matière. Pour des raisons de symétrie et de cohérence qui seront développées plus loin, les photons générés correspondent aux harmoniques impairs de la fréquence fondamentale. Le spectre résultant peut s'étendre sur toute la gamme spectrale de l'ultraviolet extrême (de 10 à 124 eV) et même atteindre les rayons X mous (plus de 124 eV). La HHG peut se produire dans un gaz ou dans un solide. Dans le cadre de ce document, seule la HHG dans un gaz est considérée.

Les sections suivantes décrivent l'origine microscopique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, les effets macroscopiques, les conditions d'accord de phase qui doivent être respectées pour obtenir une conversion efficace ainsi que quelques exemples expérimentaux de sources HHG à haut flux tirés de la littérature.

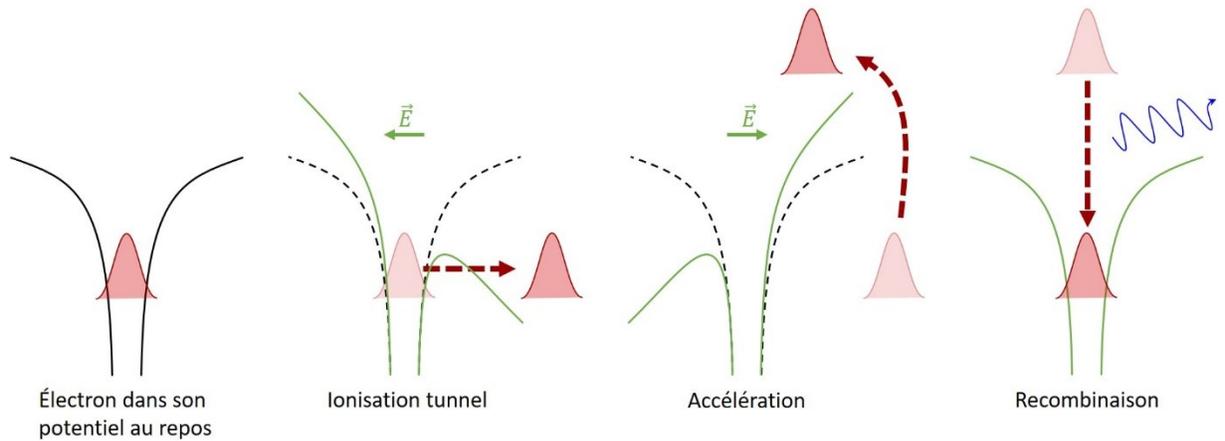
### 3.2.1 Principes microscopiques

La génération d'harmoniques d'ordres élevés peut être décrite par un modèle semi-classique qui

considère l'effet du champ laser intense sur un atome ou une molécule seule. Ce modèle, développé par Paul Corkum en 1993 [147], est nommé le « modèle en trois étapes ». Avant l'excitation par le champ laser, un électron de valence est prisonnier du potentiel de l'atome ou de la molécule, tel que représenté à la Figure 3.5. Les trois étapes de la HHG vont comme suit :

1. Le champ électrique intense du laser vient partiellement abaisser la barrière de potentiel de l'atome ou de la molécule. L'électron a alors une certaine probabilité de traverser la barrière de potentiel par effet tunnel.
2. L'électron voyage librement dans le champ laser. Il est accéléré par le champ électrique. Après un demi-cycle optique, le champ électrique change de direction et l'électron est de nouveau accéléré, mais cette fois en direction de son ion parent.
3. L'électron a une certaine probabilité de recombiner avec son ion parent. Ce faisant, il se désexcite et l'énergie qu'il a accumulée pendant son trajet est réémise sous la forme d'un photon.

Déjà, ce modèle permet de tirer certaines conclusions préliminaires. D'abord, plus le champ laser est intense, plus l'électron acquiert de l'énergie pendant son parcours et plus l'énergie du photon émis est élevée. De façon équivalente, si le champ laser est à une grande longueur d'onde, l'électron voyage plus longtemps et gagne plus d'énergie. Par contre, son trajet est plus long et il a moins de chance de recombiner avec son ion parent, donc la HHG est moins efficace [148,149]. De plus, on peut deviner que la forme du champ influence le processus. Par exemple, si le laser est polarisé circulairement, l'électron suit un parcours qui l'éloigne de plus en plus de son point de départ et il n'a donc aucune chance de recombiner avec son ion parent [150]. La HHG est donc plus efficace pour un champ laser polarisé linéairement. Finalement, on peut imaginer que l'électron ne peut traverser la barrière de potentiel qu'à certains moments du cycle optique, lorsqu'elle est suffisamment abaissée. Les photons ne sont donc pas émis continuellement. Dans ce qui suit, chaque étape du modèle est développée plus en profondeur.



**Figure 3.5** Modèle en trois étapes

**Modèle semi-classique de la génération d’harmoniques d’ordres élevés.** Au repos, l’électron de valence est prisonnier du potentiel atomique ou moléculaire. Le champ laser abaisse la barrière de potentiel, ce qui permet à l’électron de se libérer par ionisation tunnel. L’électron est alors accéléré par le champ laser. Finalement, il recombine avec son ion parent en émettant un photon.

Étape 1 : Ionisation par effet tunnel

Même si la première étape de la génération d’harmoniques d’ordres élevés est l’ionisation d’un électron, la HHG est le produit d’un champ laser de faible fréquence dans lequel les photons sont loin des résonances du milieu. Dans ce régime, l’ionisation ne peut être le résultat de l’absorption d’un photon unique. Elle découle plutôt de la forte intensité du champ laser, qui doit être traité classiquement. Il existe plusieurs types d’ionisation laser qui dépendent de l’intensité du champ. Pour des intensités de plus de  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>, l’ionisation multiphoton domine. Pour des intensités de plus de  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, l’ionisation tunnel prend de l’importance. Pour des intensités qui correspondent à un champ électrique comparable au champ atomique, soit plus de  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, la barrière de potentielle est complètement abaissée par le champ laser et l’ionisation est directe.

Dans un champ laser, le potentiel Coulombien qui retient l’électron près de son ion parent est affecté par la présence du champ électrique :

$$V(x, t) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 x} - eE(t)x, \quad (3.34)$$

où le champ laser  $E(t)$  est parallèle à l’axe  $x$ . Tel que représenté à la Figure 3.5, ce potentiel présente un maximum lorsque le champ électrique est suffisamment intense. Il est alors possible pour l’électron de traverser la barrière.

La description complète de l’ionisation tunnel nécessite un traitement quantique de la fonction d’onde de l’électron. D’abord, la fonction d’onde est localisée près de l’ion et sa forme dépend des caractéristiques de l’orbitale électronique. Après l’ionisation tunnel, la fonction d’onde qui

décrit l'électron est une superposition d'un train d'onde lié à l'ion parent et d'un train d'onde libéré dans le continuum [151]. Ainsi, la probabilité de recombinaison à un temps ultérieur est non-nulle. Au moment de l'ionisation, la partie libre de la fonction d'onde maintient les propriétés de l'orbitale électronique, mais l'ionisation ajoute un filtre de type gaussien qui confine le train d'onde [152]. Plus la barrière est abaissée par le champ laser, plus le train d'onde de l'électron libre est étendu, ce qui contribue à diminuer les chances qu'il y ait une éventuelle recombinaison. Dans la limite où le champ laser est assez intense pour abaisser la barrière de potentiel sous le potentiel d'ionisation du milieu,  $I_p$ , l'électron est complètement ionisé et ne recombinera pas avec l'ion parent.

Bien que la description quantique soit la plus exacte, elle est complexe et demeure difficile à appliquer pour certains systèmes moléculaires. Le modèle semi-classique, bien qu'imparfait, permet tout de même d'obtenir des résultats intéressants. Par exemple, à partir de ce modèle, il est possible de déterminer quel type d'ionisation est favorisé pour un champ laser donné en utilisant le paramètre de Keldysh [153]:

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}, \quad (3.35)$$

où  $U_p$  est l'énergie pondéromotrice de l'électron, soit l'énergie cinétique de l'électron dans le champs laser moyennée sur un cycle optique. Tel que défini à l'équation (2.23), on a  $U_p \propto I\lambda^2$ . Le paramètre de Keldysh provient d'un calcul qui permet de vérifier si l'électron a le temps de traverser la barrière de potentiel en prenant compte de sa vitesse sous la barrière, de la largeur de la barrière et de comment celle-ci varie pendant un cycle optique. On considère également qu'à la sortie de la barrière de potentiel, l'électron a épuisé toute son énergie cinétique et sa vitesse est nulle. Trois régimes peuvent être définis :

1. Si  $\gamma \gg 1$ , le champ laser est faible ou sa longueur d'onde est courte. Dans ce régime, l'ionisation multiphoton domine.
2. Si  $\gamma \ll 1$ , le champ laser est assez intense pour complètement abaisser la barrière de potentiel. L'ionisation est directe.
3. Si  $\gamma < 1$ , le champ laser n'est pas tout à fait assez intense pour abaisser complètement la barrière de potentiel. L'ionisation directe n'est donc pas possible, mais l'électron peut tout de même traverser la barrière par effet tunnel. Il est intéressant de noter que comme pour l'ionisation multiphoton, le processus d'ionisation tunnel résulte de l'absorption d'un grand nombre de photons. Par contre, l'ionisation tunnel se produit dans un régime où le

champ laser est intense mais de grande longueur d'onde, ce qui mène à un calcul du taux d'ionisation différent [153]. Ainsi, l'ionisation tunnel est concentrée en proximité des crêtes de la composante électrique de l'impulsion laser. C'est dans ce régime que la génération d'harmoniques d'ordres élevés a lieu.

À partir du paramètre de Keldysh, on peut estimer l'intensité nécessaire au HHG. Par exemple, le potentiel d'ionisation de l'argon est de 15.76 eV. Pour un laser titane-saphir d'une longueur d'onde de 800 nm, on doit donc avoir une intensité de l'ordre de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> pour pouvoir générer des harmoniques.

Étape 2 : Accélération

Après l'ionisation, l'électron est libre de se propager dans le champ laser. Son mouvement peut alors être décrit par les équations classiques du mouvement. L'accélération de l'électron  $\vec{a}(t)$  est définie par la force appliquée par le champ électrique oscillant :

$$\vec{F}(t) = m\vec{a}(t) = -e\vec{E}(t). \quad (3.36)$$

Pour un champ électrique parallèle à l'axe  $x$  et d'amplitude  $E_0$ , on a l'accélération suivante :

$$\ddot{x} = -\frac{eE_0}{m} \cos(\omega t). \quad (3.37)$$

La vitesse de l'électron est donnée par l'intégrale de l'accélération :

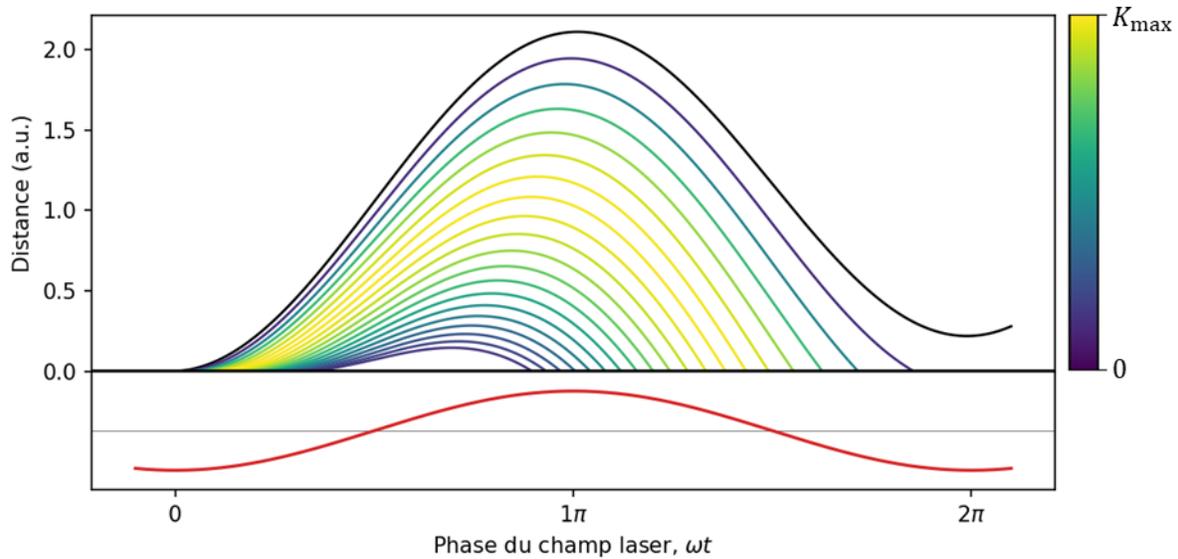
$$\begin{aligned} \dot{x} &= -\int_{t_0}^t \frac{eE_0}{m} \cos(\omega t') dt', \\ &= -\frac{eE_0}{\omega m} [\sin(\omega t) - \sin(\omega t_0)], \end{aligned} \quad (3.38)$$

où  $t_0$  est le moment de l'ionisation tunnel. La position de l'électron est donc :

$$\begin{aligned} x &= -\int_{t_0}^t \frac{eE_0}{\omega m} [\sin(\omega t') - \sin(\omega t_0)] dt', \\ &= \frac{eE_0}{\omega m} \left[ \frac{\cos(\omega t')}{\omega} + t' \sin(\omega t_0) \right]_{t_0}^t, \\ &= \frac{eE_0}{\omega^2 m} [\cos(\omega t) - \cos(\omega t_0) + (\omega t - \omega t_0) \sin(\omega t_0)]. \end{aligned} \quad (3.39)$$

Cette équation décrit la trajectoire de l'électron en fonction de la phase  $\omega t_0$  du champ laser lors de l'ionisation tunnel. Pour qu'il y ait recombinaison et donc HHG, il faut que la trajectoire ramène l'électron à la position de l'ion parent, soit la position au temps  $t = t_0$ . L'énergie cinétique de l'électron au moment de la recombinaison peut être calculée à partir de l'équation (3.37) et sachant qu'à tout moment,  $K = \frac{1}{2} m \dot{x}^2$ . Tel que représenté à la Figure 3.6, la recombinaison n'est possible que pour les électrons ionisés après le maximum d'intensité du champ laser. De plus, la trajectoire pour laquelle l'électron atteint l'énergie cinétique la plus élevée à son retour à l'ion

parent débute par l'ionisation tunnel lorsque le champ laser a une phase de  $\omega t = 17^\circ$ . C'est cette trajectoire qui produit les photons les plus énergétiques lors de la recombinaison. Il est important de noter que l'ionisation tunnel peut se produire à chaque demi-cycle optique.



**Figure 3.6** Trajectoires possibles d'un électron dans un champ laser

(En haut) Distance entre l'électron ionisé et son ion parent pendant la propagation de l'électron dans le champ laser en fonction de la phase du champ. (En bas) représentation du champ électrique du laser. L'ionisation tunnel a lieu lorsque le champ est intense, donc près de la phase  $\omega t = 0$ . Lorsque le champ change de direction, l'électron est accéléré en direction de son ion parent. Si l'ionisation tunnel se produit avant le maximum d'intensité du champ laser, la trajectoire de l'électron ne croise pas l'ion parent et la recombinaison est impossible (courbe noire). La couleur des autres courbes représente l'énergie cinétique  $K$  de l'électron au moment de la recombinaison.

À partir de la Figure 3.6, on peut noter qu'à l'exception de la trajectoire associée à l'énergie de recombinaison maximale, il existe deux trajectoires pour chaque valeur possible de l'énergie cinétique. Pour les trajectoires qui débutent près du maximum d'amplitude du champ laser, l'électron se propage longtemps avant de recombiner. Ces trajectoires sont dites « longues ». Les trajectoires « courtes », elles, débutent alors que l'amplitude du champ laser est en déclin et font voyager l'électron moins longtemps et moins loin. Dans la description quantique de l'ionisation tunnel, la partie de la fonction d'onde de l'électron qui se trouve dans le continuum s'élargit lors du trajet. Pour cette raison, plus le trajet est long, moins la probabilité de recombinaison avec la partie de la fonction d'onde liée à l'ion parent est grande. Ainsi, les trajectoires courtes sont plus efficaces pour la HHG.

Étape 3 : Recombinaison et émission d'un photon

Lorsque l'électron revient vers son ion parent, il a une certaine probabilité de recombiner avec lui

et d'émettre un photon. Dans la description quantique, l'émission provient de l'interférence entre la partie libre et la partie liée du paquet d'ondes électroniques lorsqu'elles se recourent, ce qui cause des oscillations du moment dipolaire électronique qui génèrent de la radiation. Les considérations classiques permettent de prédire que l'énergie du photon est égale à la somme du potentiel d'ionisation et de l'énergie cinétique de l'électron au moment de recombinaison. Tel que présenté plus haut, l'énergie cinétique maximale de l'électron lors de la recombinaison est obtenue pour la trajectoire qui débute à  $\omega t = 17^\circ$ . Pour cette trajectoire, l'équation (3.38) donne que la recombinaison se produit lorsque  $\omega t = 255^\circ$ . La vitesse de l'électron est alors donnée par l'équation (3.37) :

$$\dot{x} = -\frac{eE_0}{\omega m} [\sin(255^\circ) - \sin(17^\circ)] \approx 1.258 \frac{eE_0}{\omega m}. \quad (3.40)$$

L'énergie cinétique devient :

$$K_{\max} = \frac{1}{2} m \dot{x}^2 \approx 1.258^2 \frac{e^2 E_0^2}{2m\omega^2} \approx 3.17 U_p, \quad (3.41)$$

où l'énergie pondéromotrice  $U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2}$  est donné par l'équation (2.23). Donc, l'énergie maximale qui peut être émise par HHG, aussi nommée l'énergie de coupure, est :

$$E_c = I_p + 3.17 U_p. \quad (3.42)$$

L'équation (3.42) permet de définir quels moyens peuvent être empruntés pour augmenter l'énergie des photons générés. D'abord, le choix du gaz est important, car il permet de contrôler  $I_p$ . On peut également augmenter l'intensité du champ laser ou diminuer sa fréquence. Par contre, il faut considérer comment ces paramètres affectent l'efficacité de conversion des photons. Par exemple, la Figure 3.7 montre l'intensité générée dans une fraction du spectre HHG en fonction de la longueur d'onde du champ laser dans l'argon, l'hélium et le néon. Bien que l'énergie maximale des photons générés augmente comme  $\lambda^2$ , l'efficacité diminue rapidement. En fait, l'intensité des harmoniques diminue comme  $\lambda^{-5.5}$  à cause, entre autre, du long trajet des électrons et de la conversion entre le nombre de photons générés et l'intensité [148,149].

Les résultats obtenus jusqu'ici permettent de décrire la génération d'harmoniques pour un seul atome ou molécule. Dans un système réel qui en compte une multitude, la radiation émise par toutes les sources interfère. La véritable efficacité de conversion des harmoniques dépend donc également de la géométrie du système entier. Les courbes présentés à la Figure 3.7 sont le résultat d'une étude dans des systèmes réels et prennent donc les effets macroscopiques en compte [154]. Les considérations macroscopiques de la HHG sont détaillées dans la section suivante.

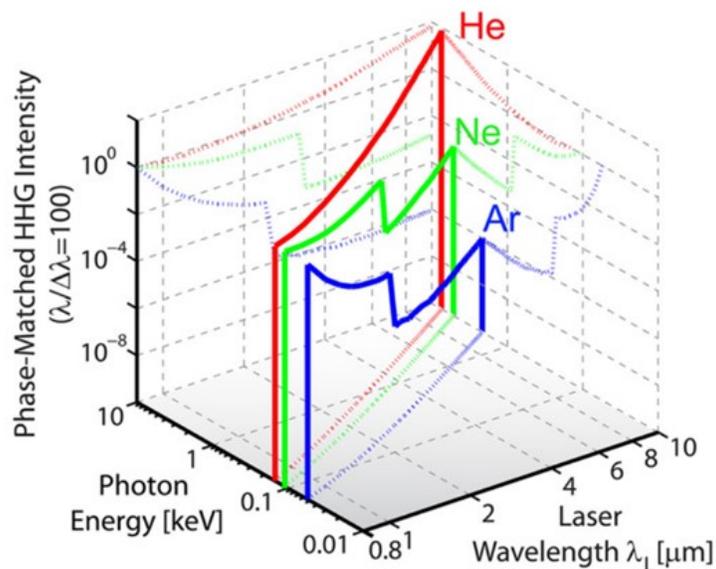


Figure 3.7 Intensité de la HHG en fonction de la longueur d'onde

Intensité d'une fraction du spectre harmonique et énergie de coupure en fonction de la longueur d'onde du champ laser. Dans l'argon, en augmentant la longueur d'onde de 1  $\mu\text{m}$  à 2  $\mu\text{m}$ , l'énergie de coupure passe de  $\sim 70$  eV à  $\sim 200$  eV, mais l'intensité générée diminue de deux ordres de grandeur. Tiré de Popmintchev *et al.*, PNAS 106, pp. 10516-10521 (2009) [154].

### 3.2.2 Considérations macroscopiques

La section précédente décrit le processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés par une source microscopique unique et pour un seul demi-cycle optique du champ laser. Pour obtenir une description macroscopique de la HHG, il faut considérer l'impact de l'ensemble des sources de rayonnement ainsi que les conséquences du fait qu'un groupe de photon soit généré à chaque demi-cycle optique.

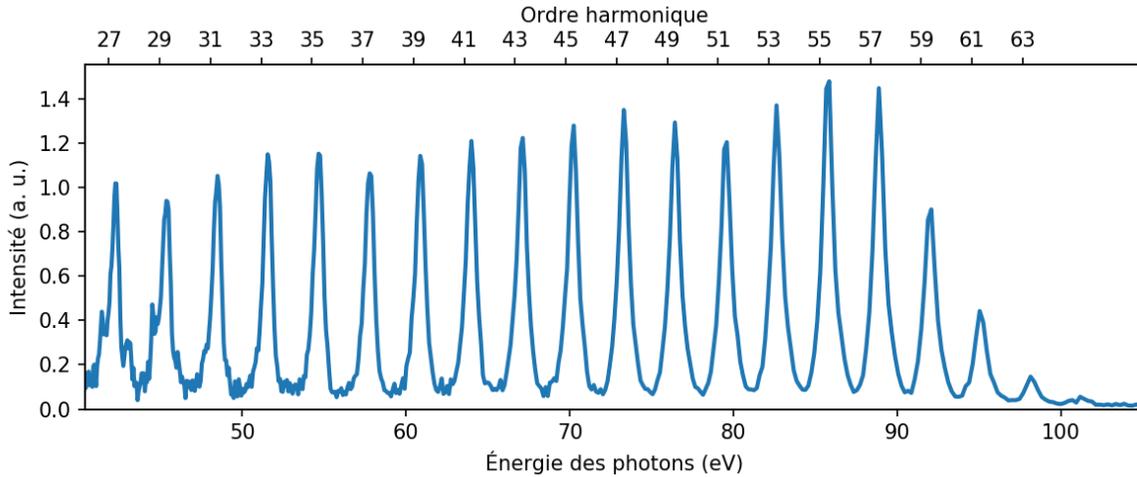
Les trajectoires présentées à la Figure 3.6 sont la source de plusieurs des caractéristiques macroscopiques de la HHG. Tel que décrit dans la sous-section précédente, les trajectoires courtes sont favorisées pour la conversion, mais elles ont aussi un autre avantage : le faisceau résultant est moins divergent que pour les trajectoires longues. En effet, pendant leurs trajets dans le continuum, les électrons accumulent une phase qui dépend de l'intensité du champ laser [155]. Cette phase est transmise aux photons émis lors de la recombinaison. Puisque le faisceau laser utilisé pour la génération a un profil d'intensité spatial non-uniforme (généralement gaussien), la phase varie à travers le faisceau. Le front d'onde résultant est donc courbé, ce qui donne un faisceau harmonique divergent. La divergence associée aux trajectoires courtes est minimale, car la variation de la phase accumulée par les électrons en fonction de l'intensité est plus importante pour les trajectoires longues. Le même principe s'applique aussi dans le temps, car

l'intensité des impulsions laser utilisées pour la génération n'est pas constante [156]. Donc, les trajectoires courtes offrent aussi une cohérence temporelle supérieure [157,158].

Un autre effet des trajectoires est la modulation en fréquence de la radiation émise sur un seul demi-cycle. En effet, pour chaque type de trajectoire, on peut calculer la différence de temps entre l'émission des photons de différentes énergies. Pour les trajectoires courtes, on obtient une modulation en fréquence positive, c'est-à-dire que les fréquences basses sont émises en premier. C'est l'inverse pour les trajectoires longues. Expérimentalement, cette modulation en fréquence peut être compensée par des contributions macroscopique d'accord de phase afin de réduire la durée des impulsions générées [159,160].

Il est possible de générer efficacement une impulsion attoseconde unique, par exemple en utilisant des impulsions laser ultracourtes dans lesquelles l'intensité n'est suffisante que pendant un temps inférieur à un demi-cycle optique. Dans ce cas, l'impulsion attoseconde générée a un spectre large qui couvre toutes les énergies de photons accessibles pour les trajectoires possibles. Lorsqu'on utilise des impulsions laser plus longues, par contre, le spectre doit tenir compte de l'interférence entre les impulsions attosecondes générées à chaque demi-cycle optique.

Dans le domaine temporel, le champ électrique total généré correspond donc à une série de pics séparés par la moitié d'une période du champ laser. Dans le domaine des fréquences, le spectre correspond à la transformée de Fourier de cette fonction. Il s'agit d'une série de pics séparés par le double de la fréquence angulaire fondamentale  $\omega$ . Ainsi, seul un harmonique sur deux est généré. De plus, à cause du changement de direction du champ électrique à chaque demi-cycle optique, il y a une différence de phase de  $\pi$  entre deux pics consécutifs dans le domaine temporel. Ainsi, seuls les harmoniques impairs peuvent interférer de façon constructive. Ceci découle du même principe de symétrie qui fait que les processus d'optique non-linéaire de second ordre ne sont présents que dans les matériaux non-centrosymétriques. La Figure 3.8 montre un exemple de spectre harmonique généré dans le néon à partir d'impulsions de 8 mJ d'une durée de 50 fs et centrées à 800 nm.



**Figure 3.8 Spectre harmoniques**

Spectre généré par des impulsions de 8 mJ et d'une durée de 50 fs centrées à une longueur d'onde de 800 nm (photons de 1.55 eV) dans le néon. Pour optimiser l'accord de phase, le faisceau est focalisé par un miroir sphérique de longue focale (3 m) dans une cellule de gaz de 8 mm de long. Les harmoniques impairs sont générés jusqu'à l'harmonique d'ordre 63.

### 3.2.3 Accord de phase

Comme tout processus non-linéaire cohérent, l'accord de phase macroscopique influence beaucoup le processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés lorsque plusieurs sources sont présentes. Le but de l'accord de phase est d'éliminer l'interférence destructive entre la radiation provenant de sources microscopiques qui se situent à différents endroits le long du faisceau laser. De façon équivalente, on cherche à réduire le désaccord de phase entre le champ fondamental et ses harmoniques. En ne considérant que les harmoniques colinéaires au faisceau fondamental, on peut écrire le désaccord de phase sous forme scalaire :

$$qk(\omega) - k(q\omega) \equiv \Delta k, \tag{3.43}$$

où  $\omega$  est la fréquence angulaire du champ laser fondamental et  $q$  est un nombre entier impair qui dénote l'ordre harmonique généré. L'accord de phase idéal est obtenu lorsque  $\Delta k = 0$ . Dans le vide, l'accord de phase est parfait, car  $k(\omega) = \omega/c$  et  $k(q\omega) = q\omega/c$ . Dans un gaz, plusieurs phénomènes peuvent causer un désaccord de phase. En fait, quatre causes majeures de désaccord de phase peuvent être identifiées : la géométrie du système, la dispersion du milieu neutre, la dispersion causée par la présence d'électrons libres dans le milieu ionisé, et le gradient d'intensité du champ laser [161].

Désaccord de phase géométrique

Pour atteindre l'intensité nécessaire à la génération d'harmoniques d'ordres élevés, le faisceau

laser fondamental doit être confiné dans une petite région de l'espace. Deux méthodes principales sont utilisées pour ce faire : soit le faisceau est simplement focalisé dans le gaz, soit il est couplé à une fibre à cœur creux remplie de gaz. Dans le cadre des travaux présentés ici, seules des géométries non-guidées sont utilisées.

Lors du passage au focus, le champ laser acquiert une phase de  $-\pi$ . Ceci implique que, près du focus, la phase varie rapidement. Il s'agit de la phase de Gouy. La phase de Gouy peut s'écrire comme [162]:

$$\varphi_{\text{Gouy}} = -\arctan \frac{2z}{b}, \quad (3.44)$$

où  $z$  est l'axe de propagation du faisceau et  $b$  est le paramètre confocal, qui est égal au double de la longueur de Rayleigh,  $z_R$ . La longueur de Rayleigh correspond à la distance sur laquelle la taille du faisceau varie peu près du focus. On a :

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}, \quad (3.45)$$

où  $w_0$  est le rayon du faisceau dans le plan focal. Le vecteur d'onde associé à la phase de Gouy est :

$$\begin{aligned} k_{\text{Gouy}}(z) &= \frac{d\varphi_{\text{Gouy}}}{dz}, \\ &= -\frac{1}{z_R} \frac{1}{\left(\frac{z}{z_R}\right)^2 + 1}, \\ &\approx -\frac{1}{z_R}. \end{aligned} \quad (3.46)$$

Donc, près du focus et de l'axe optique, le déphasage géométrique est  $\Delta k_{\text{Gouy}} = -\frac{1}{z_R}(q-1)$ . Le déphasage géométrique est toujours négatif. Il peut être réduit si la longueur de Rayleigh est grande, ce qui correspond à une longue focale. De plus, la valeur du déphasage géométrique peut être contrôlée expérimentalement en changeant la position du focus par rapport au milieu générateur, c'est-à-dire en contraignant la position  $z$  à laquelle la HHG se produit.

Désaccord de phase dû à la dispersion dans le milieu neutre

Puisque l'indice de réfraction du gaz utilisé pour la génération dépend de la fréquence, il existe un désaccord de phase de la forme :

$$\Delta k_n = q \frac{n(\omega)\omega}{c} - \frac{n(q\omega)q\omega}{c} = \frac{q\omega}{c} [n(\omega) - n(q\omega)]. \quad (3.47)$$

Dans les gaz, la différence d'indices de réfraction est généralement assez faible, donc cette contribution au désaccord de phase n'est pas très importante. On peut tout de même noter qu'en

général, l'indice de réfraction dans l'ultraviolet extrême est plus faible que dans l'infrarouge, donc  $\Delta k_n > 0$ . L'indice de réfraction dépend également de la densité de gaz et du pourcentage du gaz qui est ionisé.

Désaccord de phase dû à la dispersion du milieu ionisé

Après l'excitation par le champ laser, le milieu est typiquement ionisé de quelques pourcents [163]. La dispersion associée aux électrons libres devient alors non-négligeable. L'indice de réfraction devient [161]:

$$n_p(\omega) = \sqrt{1 - \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2}, \quad (3.48)$$

où on introduit la fréquence plasma  $\omega_p$ , soit la fréquence sous laquelle le plasma est opaque. La fréquence plasma est reliée à la densité d'électrons libres,  $N_e$ , par  $\omega_p^2 = \frac{N_e e^2}{m \epsilon_0}$ . Puisque l'indice de réfraction associé au plasma augmente avec la fréquence, le désaccord de phase correspondant est négatif :

$$\Delta k_p = \frac{q\omega}{c} [n_p(\omega) - n_p(q\omega)] < 0. \quad (3.49)$$

Expérimentalement, il est possible de contrôler  $\Delta k_p$  à partir de la pression de gaz dans le volume où les harmoniques sont générés. En effet, on peut considérer que le désaccord de phase dû aux électrons libres est proportionnel à la pression de gaz [163].

Désaccord de phase dû au gradient d'intensité

Près du plan focal, l'intensité du champ laser varie avec cette relation [164]:

$$I(z) = \frac{I_0}{1+z^2/z_R^2}, \quad (3.50)$$

où  $I_0$  représente l'intensité du champ dans le plan focal. Tel que décrit dans la section précédente, la phase acquise par l'électron lors de son voyage dans le continuum dépend de l'intensité du champ laser. Cette phase est souvent nommée « phase dipolaire » puisqu'elle provient du dipôle formé lors du processus de HHG. En première approximation, la phase dipolaire est proportionnelle à l'intensité. Le vecteur d'onde de l'harmonique généré peut donc s'écrire [165]:

$$\Delta k_d \approx -\alpha(q) \frac{dI(z)}{dz}, \quad (3.51)$$

où  $\alpha(q)$  dépend de l'ordre harmonique et du type de trajectoire de l'électron. Le signe du désaccord de phase dipolaire change selon la position par rapport au plan focal. Si les harmoniques sont générés *avant* le plan focal,  $\Delta k_d$  est négatif. Si les harmoniques sont générés *après* le plan focal,  $\Delta k_d$  est positif. Il est donc possible de contrôler cette contribution au désaccord

de phase en changeant la position du milieu générateur par rapport au plan focal.

Finalement, on peut écrire le désaccord de phase total comme suit :

$$\Delta k = \Delta k_{\text{Gouy}} + \Delta k_n + \Delta k_p + \Delta k_d. \quad (3.52)$$

Le signe de chaque contribution est résumé dans le Tableau 3.1. Pour optimiser l'accord de phase, il faut minimiser  $\Delta k$  en optimisant la géométrie du montage expérimental et la pression du gaz pour s'assurer que les différentes contributions se compensent.

**Tableau 3.1 Contributions au désaccord de phase**

Contribution		Signe	Contrôlé par
Géométrique	$\Delta k_{\text{Gouy}}$	< 0	Conditions de focalisation, distance entre le milieu générateur et le plan focal.
Dispersion neutre	$\Delta k_n$	> 0	Pression de gaz, pourcentage d'ionisation.
Dispersion plasma	$\Delta k_p$	< 0	Pression de gaz, pourcentage d'ionisation.
Gradient d'intensité (phase dipolaire)	$\Delta k_d$	< 0 si $z < 0$ > 0 si $z > 0$	Position du milieu générateur par rapport au plan focal, intensité du champ laser, fréquence de l'harmonique.

**Contributions principales au désaccord de phase pour la HHG produite par la focalisation du faisceau laser dans un milieu générateur.**

Une conséquence importante de l'accord de phase est l'impossibilité d'augmenter l'intensité du champ laser indéfiniment. En effet, le pourcentage d'ionisation du milieu générateur doit demeurer assez faible, typiquement quelques pourcents, pour que la contribution de la dispersion plasma puisse être compensée [163]. Il existe donc une intensité de saturation au-delà de laquelle le taux d'ionisation est trop élevé pour permettre l'accord de phase. Ainsi, bien que l'énergie de coupure soit proportionnelle à l'intensité du champ laser (équation (3.42)), il n'est pas nécessairement avantageux d'utiliser ce paramètre pour atteindre des énergies de photon plus élevées.

### 3.2.4 Efficacité de conversion

Les équations présentées à la section précédente permettent d'optimiser l'accord de phase du milieu. Cependant, un effet macroscopique supplémentaire doit être considéré pour générer le plus de photons possibles : la réabsorption des photons par le milieu générateur. Dans l'ultraviolet extrême, les gaz absorbent facilement la lumière. Par exemple, à la pression atmosphérique, il suffit de 0.4 mm d'argon pour absorber 63% des photons à 60 eV. Donc, si le milieu générateur est trop long ou si la pression est trop élevée, les photons générés au début du processus sont

tous réabsorbés.

La distance qui peut être parcourue dans le gaz par la radiation de fréquence  $\omega$  avant que l'intensité ne soit réduite à  $1/e$  de l'intensité initiale est nommée « longueur d'absorption » et est donnée par [163] :

$$L_{\text{abs}} = \frac{k_B T}{p \sigma_{\text{ion}}(\omega)}, \quad (3.53)$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $T$  est la température du milieu,  $p$  est la pression de gaz et  $\sigma_{\text{ion}}(\omega)$  est la section efficace d'ionisation. Pour optimiser la génération d'harmoniques, il faut que le milieu générateur soit plus long que la longueur d'absorption associée à la fréquence du laser fondamental. Par contre, au-delà d'une certaine longueur, l'émission des harmoniques est maximisée, car toute nouvelle contribution est balancée par la réabsorption.

La longueur optimale du milieu générateur est également dictée par l'accord de phase, qui définit la distance sur laquelle l'interférence est constructive pour un harmonique dans l'axe de propagation. À cet effet, on définit la longueur de cohérence suivante :  $L_{\text{coh}} = \pi/\Delta k$ . La minimisation du désaccord de phase permet de maximiser la longueur de cohérence. Selon les travaux de Constant *et al.* [166], les relations suivantes permettent d'obtenir un bon accord de phase :

$$\begin{aligned} L_{\text{mil}} &> 3L_{\text{abs}}, \\ L_{\text{coh}} &> 5L_{\text{abs}}, \end{aligned} \quad (3.54)$$

où  $L_{\text{mil}}$  est la longueur du milieu générateur, par exemple une cellule de gaz. Lorsque ces relations sont respectées, il est possible d'obtenir un flux de photon correspondant à plus de la moitié de la conversion optimale, soit la conversion avec un accord de phase parfait et un milieu générateur très long.

L'optimisation de l'accord de phase est un élément clé pour l'obtention de sources efficaces. Le Tableau 3.2 donne quelques exemples de l'efficacité de la conversion énergétique obtenue lors du processus de HHG dans la littérature.

**Tableau 3.2 Efficacité de conversion**

Publication	Source laser et géométrie	Gaz	Efficacité de conversion totale	Efficacité de conversion d'un seul harmonique	
Rundquist <i>et al.</i> [167]	800 nm, 150 $\mu\text{J}$ Capillaire	Argon	–	~36 à 48 eV	$10^{-6}$ à $10^{-5}$
Constant <i>et al.</i> [166]	800 nm, 1.5 mJ Capillaire de 4 cm	Xénon Argon	–	~23 eV ~20 à 32 eV	$4 \times 10^{-5}$ $10^{-6}$

Takahashi <i>et al.</i> [168]	800 nm, 20 mJ Focale de 5 m Cellule de 10 cm	Argon	$3.5 \times 10^{-5}$	~42 eV	$1.5 \times 10^{-5}$
Rudawski <i>et al.</i> [163]	800 nm, 20 à 24 mJ Focale de 4 m Cellule de 2 cm	Argon Néon	$5 \times 10^{-5}$ $8 \times 10^{-6}$	~32 à 42 eV ~32 à 90 eV	$10^{-6}$ à $10^{-5}$ $10^{-8}$ à $10^{-6}$
Rothhardt <i>et al.</i> [165]	820 nm, 6.5 $\mu$ J Focale de 75 mm Jet de gaz	Argon	$1.4 \times 10^{-6}$	~26 à 39 eV	$10^{-7}$
Takahashi <i>et al.</i> [169]	800 nm, 50 mJ Focale de 10 m Cellule de 5 cm	Néon	$8 \times 10^{-6}$	~50 à 95 eV	$10^{-7}$
Fan <i>et al.</i> [18]	1030 nm, 8 mJ Focale de 1.25 m Cellule de 2 cm	Hélium	–	~155 eV	$4 \times 10^{-8}$
Cardin <i>et al.</i> [14]	800 nm, 13 mJ Focale de 3 m Cellule de 8 mm	Néon	–	~60 eV	$10^{-8}$
Légaré <i>et al.</i> [19]	960 nm, 0.8 mJ Focale de 75 cm Cellule de 8 mm	Argon	–	~60 eV	$3 \times 10^{-7}$

**Exemples d'efficacité de conversion énergétique obtenue pour différents systèmes dans la littérature, principalement pour la HHG dans l'argon et le néon. La dernière colonne donne l'efficacité de conversion pour un harmonique unique aux énergies de photon indiquées. Les trois derniers exemples correspondent aux travaux présentés aux chapitres 4, 5 et 6, respectivement.**

Outre l'efficacité de conversion, il faut générer un nombre considérable de photons pour que le processus de HHG puisse être utilisé comme source de lumière. Par exemple, tel que mentionné à la section 2.4.3, le XRMS a une efficacité de  $10^{-6}$ . Une grande quantité de photons est donc nécessaire pour obtenir un signal en utilisant cette méthode. Une stratégie pour obtenir le plus de photons possibles avec une efficacité de conversion limitée est d'augmenter le nombre de photons pouvant être convertis. Cependant, il n'est pas utile d'augmenter simplement l'énergie de l'impulsion du laser fondamental. En effet, si l'intensité devient trop élevée, le gaz s'ionise et la conversion est moins efficace. De plus, comme l'énergie de coupure augmente avec l'intensité, l'énergie supplémentaire est transférée vers des photons plus énergétiques qui ne sont pas nécessairement utiles pour l'application visée.

À la place, il convient de conserver la même intensité dans le plan focal mais d'augmenter à la

fois l'énergie des impulsions et le volume de génération. Ceci peut être fait en focalisant plus faiblement dans le milieu. Alors, le changement de longueur de Rayleigh affecte la phase de Gouy, mais l'accord de phase peut être conservé en changeant la pression de façon à ce que le produit  $pL_{\text{mil}}$  soit constant. C'est la procédure présentée par Takahashi et al. [168], qui réussissent ainsi à générer des impulsions de 0.3  $\mu\text{J}$  à  $\sim 40$  eV, ce qui correspond à  $\sim 4 \times 10^{10}$  photons.

## **4 ARTICLE 1 – XRMS DANS UN ÉCHANTILLON DE TERRE RARE**

---

### **Ultrafast magnetic scattering on ferrimagnets enabled by a bright Yb-based soft x-ray source**

Diffusion magnétique ultrarapide d'un matériau ferrimagnétique par une source intense de rayons X mous

**Auteurs :**

Guangyu Fan<sup>1,2,3</sup>, Katherine Légaré<sup>2</sup>, Vincent Cardin<sup>2</sup>, Xinhua Xie<sup>1,4</sup>, Reza Safaei<sup>2</sup>, Edgar Kaksis<sup>1</sup>, Giedrius Andriukaitis<sup>1</sup>, Audrius Pugžlys<sup>1</sup>, Bruno E. Schmidt<sup>5</sup>, Jean-Pierre Wolf<sup>6</sup>, Michel Hehn<sup>7</sup>, Gregory Malinowski<sup>7</sup>, Boris Vodungbo<sup>8</sup>, Emmanuelle Jal<sup>8</sup>, Jan Lüning<sup>8</sup>, Nicolas Jaouen<sup>9</sup>, Gaia Giovannetti<sup>10</sup>, Francesca Calegari<sup>3,10</sup>, Zhensheng Tao<sup>11</sup>, Andrius Baltuška<sup>1</sup>, François Légaré<sup>2</sup> et Tadas Balčiūnas<sup>1,6</sup>

<sup>1</sup>Institute of Photonics, TU Wien, Gusshausstrasse 27/387, Vienne, Autriche

<sup>2</sup>Institut National de la Recherche Scientifique, Varennes, Québec J3X1S2, Canada

<sup>3</sup>The Hamburg Centre for Ultrafast Imaging CUI, Universität Hamburg, 149 Luruper Chaussee, 22761 Hamburg, Allemagne

<sup>4</sup>SwissFEL, Paul Scherrer Institute, 5232 Villigen PSI, Suisse

<sup>5</sup>few-cycle, Inc., 2890 Rue de Beaurivage, Montréal, Québec H1L 5W5, Canada

<sup>6</sup>GAP-Biophotonics, Université de Genève, 1205 Genève, Suisse

<sup>7</sup>Institut Jean Lamour, CNRS UMR 7198, Université de Lorraine, 54000 Nancy, France

<sup>8</sup>Sorbonne Université, CNRS, Laboratoire de Chimie Physique—Matière et Rayonnement, LCPMR, 75005, Paris, France

<sup>9</sup>Synchrotron SOLEIL, L'Orme des Merisiers, 91192, Gif-sur-Yvette, France

<sup>10</sup>Center for Free-Electron Laser Science CFEL, Deutsches Elektronen-Synchrotron DESY, Hamburg, Allemagne

<sup>11</sup>State Key Laboratory of Surface Physics, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433, Chine

**Titre de la revue ou de l'ouvrage :**

Article publié en avril 2022 dans la revue *Optica*, volume 9, numéro 4.

DOI : 10.1364/OPTICA.443440

### **Contribution des auteurs :**

Guangyu Fan a travaillé au laboratoire sur la source HHG ainsi que sur l'expérience de XRMS résolu en temps. Il a également été chargé de l'analyse des résultats et de la rédaction du manuscrit.

Katherine Légaré et Vincent Cardin ont travaillé sur l'expérience de XRMS résolu en temps. Ayant déjà fait ce type de manipulations en laboratoire, ils ont pu transférer leur expertise sur ce montage expérimental afin de le rendre fonctionnel. Par exemple, ils ont défini le délai entre les impulsions de pompe et de sonde et trouvé comment placer l'échantillon de façon à optimiser le signal tout en minimisant le bruit. Katherine Légaré a participé à toutes les campagnes expérimentales pour l'acquisition de données XRMS. Tous deux ont également offert leur assistance pour la rédaction.

Xinhua Xie et Reza Safaei ont effectué des simulations pour comparer les résultats expérimentaux à la théorie.

Edgar Kaksis, Giedrius Andriukaitis et Audrius Pugžlys ont développé la source laser. Edgar Kaksis et Giedrius Andriukaitis ont aussi participé à l'implémentation de la source HHG. Audrius Pugžlys a offert son support au laboratoire tout au long du projet.

Bruno E. Schmidt a fourni le matériel et les connaissances nécessaires à la compression des impulsions laser dans la fibre à coeur creux remplie de gaz.

Jean-Pierre Wolf a été le superviseur de Tadas Balčiūnas.

Michel Hehn, Gregory Malinowski, Boris Vodungbo, Emmanuelle Jal et Jan Lüning ont fourni l'échantillon magnétique ainsi que leur expertise concernant le magnétisme ultrarapide. Boris Vodungbo et Emmanuelle Jal ont également offert leur support pour la rédaction. Jan Lüning a aussi participé à l'élaboration du projet.

L'échantillon magnétique a été caractérisé par Nicolas Jaouen.

Gaia Giovannetti et Francesca Calegari ont participé à l'élaboration de la source HHG.

Zhensheng Tao a participé à l'analyse et l'interprétation des résultats ainsi qu'à la rédaction du manuscrit.

Andrius Baltuška et François Légaré ont formulé et développé le projet.

Tadas Balčiūnas a été chargé de superviser l'avancement du projet. Il a participé à l'implémentation de la source HHG ainsi qu'à l'expérience de XRMS résolu en temps.

## 4.1 Abstract

Development of ultrafast table-top x-ray sources that can map various spin, orbital, and electronic configurations and reordering processes on their natural time and length scales is an essential topic for modern condensed matter physics as well as ultrafast science. In this work, we demonstrate spatiotemporally resolved resonant magnetic scattering (XRMS) to probe the inner-shell  $4d$  electrons of a rare-earth (RE) composite ferrimagnetic system using a bright  $>200$  eV soft x-ray high harmonic generation (HHG) source, which is relevant for future energy-efficient, high-speed spintronic applications. The XRMS is enabled by direct driving of the HHG process with power-scalable, high-energy Yb laser technology. The optimally phase-matched broadband plateau of the HHG offers a record photon flux ( $> 2 \times 10^9$  photons/s/1% bandwidth) with excellent spatial coherence and covers the entire resonant energy range of RE's  $N_{4,5}$  edges. We verify the underlying physics of our x-ray generation strategy through the analysis of microscopic and macroscopic processes. Using a CoTb alloy as a prototypical ferrimagnetic system, we retrieve the spin dynamics, and resolve a fast demagnetization time of  $500 \pm 126$  fs, concomitant with an expansion of the domain periodicity, corresponding to a domain wall velocity of  $\sim 750$  m/s. The results confirm that, far from cross-contamination of low-energy absorption edges in multi-element systems, the highly localized states of  $4d$  electrons associated with the  $N_{4,5}$  edges can provide high-quality core-level magnetic information on par with what can be obtained at the M edges, which is currently accessible only at large-scale x-ray facilities. The analysis also indicates the rich material-, composition-, and probing-energy-dependent driving mechanism of RE-associated multicomponent systems. Considering the rapid emergence of high-power Yb lasers combined with novel nonlinear compression technology, this work indicates potential for next-generation high-performance soft x-ray HHG-based sources in future extremely photon-hungry applications on the table-top scale, such as probing electronic motion in biologically relevant molecules in their physiological environment (liquid phase), and advanced coherent imaging of nano-engineered devices with 5~8 nm resolution.

## 4.2 Introduction

Understanding and controlling ultrafast light-induced spin dynamics have been developed into a fascinating research topic of condensed matter physics, motivated by both fundamental interests and technological applications. Time-resolved x-ray techniques provide insights into spin changes with element specificity on their natural spatial and temporal scales [170]. Recently, the generation, control, and application of x-ray sources based on high harmonic generation (HHG)

have received significant attention for time- and space-resolved spin dynamics measurements utilizing magnetic dichroism sensitivity. In addition to being more compact and more accessible than large-scale x-ray facilities such as x-ray free-electron lasers (XFELs) and synchrotrons, table-top sources offer several unique advantages over them, particularly extremely short pulse duration [171,172], broad bandwidth (BW), and controllable spin [127,173,174] and orbital angular momentum [175,176]. Therefore, high-brightness HHG light sources [147,167,177] potentially serve as a unique laboratory-scale tool for the frontier of spintronic applications. Owing to its high spatial coherence, HHG radiation has been used for imaging of nanostructures with a large-scale view [178–180], magnetic imaging with diffraction-limited spatial resolution, and enhanced magnetic contrasts using holographic methods [181]. Furthermore, the extended degree of the control of spin [127,173,174] and orbital angular momentum [175,176] of HHG pulses via the manipulation of driving lasers provides the unique ability for resolving and controlling the magnetic and topological excitations of magnetic textures. Most importantly, HHG pulses enable femto-to-attosecond temporal resolution [171,172] for observing novel light-spin control phenomena in the unexplored sub-fs temporal regime [99]. The broad spectral BW of HHG spans the characteristic M- and N-absorption edges of transition metals (TM) and rare-earth (RE) elements that exhibit magneto-optical activity. Resonant x-ray probing at these edges [182] provides access to an element-specific [91] mapping of magnetic states and allows tracing their evolution in time.

Despite the numerous proof-of-concept demonstrations using HHG sources, all of the previous studies were focused on TM ferromagnets [7]. In contrast, recently developed magnetic nanostructure materials are based on ferrimagnetic/multiferroic multicomponent systems associated with RE [183–185] and are promising candidates for future storage and information processing spintronic devices owing to their nanometer size, fast speed, efficient driving dynamics, and topological protected stability [186]. Spontaneous emergence of magnetic order in nanoscale and mesoscale structures has been observed in TM-RE systems using x-ray scattering and diffraction techniques, and they play an important role in a variety of macroscopic phenomena in magnetic materials. Such heterogeneity of magnetic states in an otherwise spatially homogeneous material is a result of a complex interplay between electron spins and other degrees of freedom (electron orbitals and lattice). In particular, it has been shown that, after femtosecond laser irradiation, the exchange-coupled magnetic sublattices of particular TM-RE systems exhibit distinct magnetization dynamics of the constituent magnetic moments [183,187] and transfer of spin angular momentum between different sublattices [188], as well as between nanoscale spatial regions [189], which leads to a deterministic switching of sample magnetization

on the femtosecond time scale [187,190]. Such space- and element-dependent ultrafast spin dynamics have been observed in, but not limited to, CoTb [188], (FeCo)Gd [191], and FeTb [192]. Furthermore, great progress has already been made in manipulating and detecting new structures, such as chiral textures and skyrmions. Recently, ultrasmall skyrmions ( $\sim 10$  nm) with fast dynamics at room temperatures in a compensated ferrimagnet have been resolved with time-resolved x-ray microscopy [186]. Since all these studies have relied on short wavelength x-ray probes at large-scale x-ray facilities, the development of novel x-ray techniques for element selective mapping of spin configurations and their fast reordering processes has still been a subject of intense research in the physics of magnetism over the last 10 years [170].

Soft-x-ray resonant magnetic scattering (XRMS) is a powerful x-ray technique combining diffraction with absorption spectroscopy that provides access to the complex charge, spin, and orbital orderings in materials [181]. It arises from an enhanced scattering amplitude when the incoming x-ray photon energy reaches the absorption edges of the constituent elements. XRMS is sensitive not only to magnetization distributions in the form of conventional domains but also to chiral spin texture structure [193,194], with spatial sensitivity down to few-nm scales [181]. Therefore, it can provide information unattainable through conventional visible [195], x-ray microscopy techniques and neutron scattering techniques. However, compared to spectroscopic methods, resonant magnetic scattering requires orders of magnitude higher photon flux because of the relatively low ( $\sim 10^{-(5-6)}$ ) scattering cross section in the x-ray spectral range [136], which imposes a significant challenge for the application of HHG sources for these types of scattering experiments. Another fundamental bottleneck is the cross-contamination of the peaks (e.g., M edge of TM and O edge of RE) in complex multicomponent TM-RE systems at low x-ray photon energies [196], where the many-body corrections and local field effects are of crucial importance. It worth to note that high-energy and high-flux XFELs allow precise measurement of magnetic scattering in a large momentum space, which leads to high spatial resolution, but the applications are limited by the cost and available beamtime. For an HHG-based instrument, to image the laser-induced nanoscale spin dynamics and the transfer in association with the magnetic sublattices in TM-RE ferrimagnets, it is crucial to extend HHG photon energy to cover the inner-shell absorption edges of  $4d$  RE ferrimagnets (Gd, Tb, and Dy). While considerable progress has been made to extend the phase-matched HHG cutoff with longwave driver pulses from optical parametric amplifiers (OPAs) [197–203], it came at the expense of efficiency in the soft x-ray spectral range because scaling the wavelength of the driver pulses ( $\lambda_L$ ) reduces the single-atom HHG yield [149] to  $\lambda_L^{5.5 \pm 0.5}$ , and because of the low conversion efficiency of OPAs (10%–20%). On the other hand, the recent development of novel Yb laser sources [204–206] is showing great potential for next-

generation driver technologies of HHG, owing to the advantages of high power scaling, robustness, and compactness. A proof-of-concept HHG source using a high-repetition-rate Yb fiber driver has been demonstrated [207]. A novel energetic multidimensional-solitary states (MDSS)-based post-compression technique has been discovered, showing huge potential to further scale the performance of Yb lasers [17]. Nevertheless, so far, spatiotemporally resolved element-specific probing of RE magnetic systems in the soft x-ray spectral range has remained inaccessible with table-top HHG sources.

In this work, we demonstrate, for the first time, time-resolved XRMS (tr-XRMS) based on a high-brightness Yb-based HHG source at the  $N_{4,5}$  edges of RE elements, which corresponds to a dipole allowed  $4d$ -to- $4f$  transition. This high-brightness soft x-ray source is accomplished by directly driving the HHG process in the optimally phase-matched regime in helium by using a power scalable, kHz, high-energy, 1030 nm, Yb laser system with a peak power of 0.3 TW. The HHG cutoff reaches up to 220 eV, and the phase-matched broadband plateau of the high-brightness HHG source with record flux ( $> 2 \times 10^9$  photons/s/1% BW) is especially suitable for the photon demanding tr-XRMS at the  $N_{4,5}$  edges of REs (Gd, Tb, and Dy). Furthermore, the relatively long propagation distance of the nearly quasi-plane-wave driver laser field in the optimally phase-matched conditions results in a low-divergence and high-spatial-coherence soft x-ray beam, which is particularly important for high-quality spatially resolved tr-XRMS measurements. To investigate the intrinsic energy transfer efficiency from the IR driver to the generated soft x-rays for the desired resonance energy range at the RE N edge, we experimentally compare various generation schemes by employing different wavelengths, gases, and pressures. The underlying physics for efficient HHG is verified with a theoretical analysis combining the microscopic electron wave packet trajectories and macroscopic phase-matching process. We perform table-top tr-XRMS measurements on a prototypical CoTb ferrimagnet by covering the  $N_{4,5}$  edges of Tb around  $\sim 155$  eV. From the time-resolved scattering patterns, we retrieve the demagnetization evolution of the localized  $4d$  electron associated with the  $N_{4,5}$  edges exhibiting a demagnetization time of  $500 \pm 126$  fs originating from the fast-electronic heating. This has so far been observed only at the M edges of RE materials using hard x-ray pulses at large-scale facilities [188]. Furthermore, we observe the laser-induced evolution of nanoscale magnetic domains on the femtosecond time scale, which we compare with results from previous studies [31,50], revealing the potential role of complex material-, composition-, and, possibly, probing-energy-dependent driving mechanisms of RE-associated multicomponent systems.

### 4.3 Results

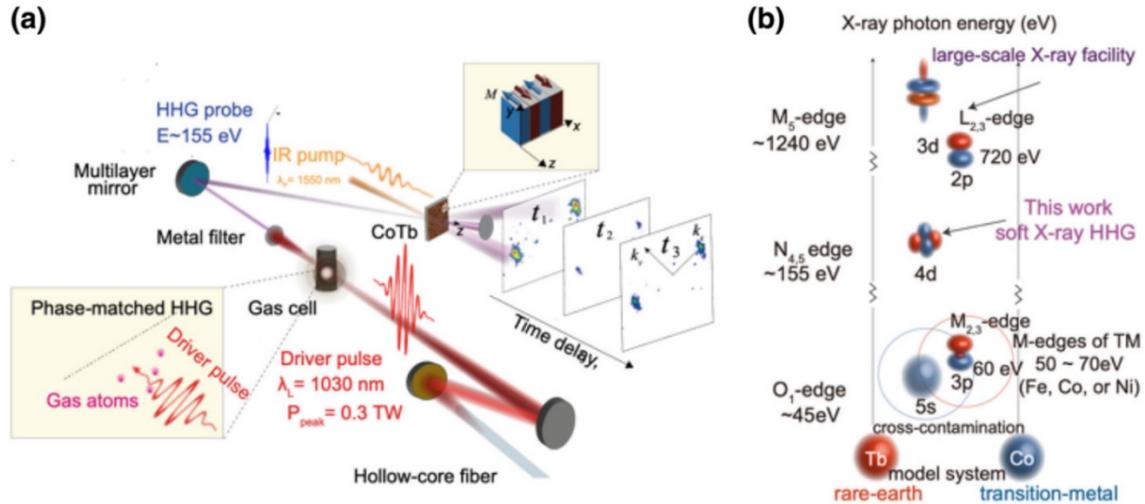
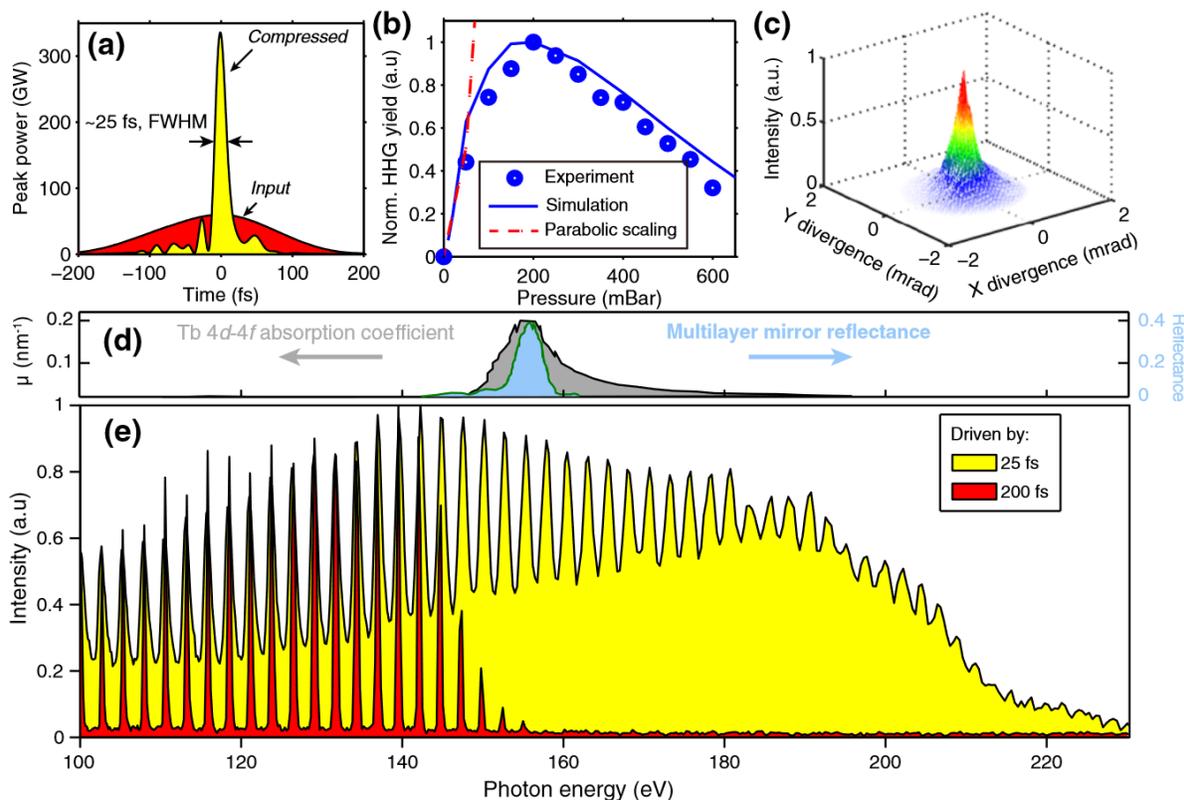


Figure 4.1 Schematics of the experiment

Schematics of the Tr-XRMS experiment using a soft x-ray HHG source. (a) High-brightness high-order harmonics are generated in a gas cell filled with helium and driven by compressed pulses in the optimal phase-matching conditions. Tr-XRMS experiments are carried out in a pump–probe geometry by exciting the sample with IR pulses with a wavelength of 1550 nm before the HHG probe pulses arrive. The spatiotemporal evolution of the magnetic domains is measured with time-resolved diffraction patterns from the harmonic beam, recorded with a CCD camera as a function of the delay time. (b) Illustration of the x-ray energies of different absorption edges of TM and RE elements. The low-energy  $O_1$  edge of RE and the  $M_{2,3}$  edges of TM are close in energy, which could be challenging to distinguish in experiments. The high-energy  $M_{3,4}$  edges of RE and  $L_{2,3}$  edges of TM, on the other hand, require a large-scale x-ray facility. Our solution lies in between and can provide a table-top source probing the magnetic dynamics with the  $N_{4,5}$  edges of RE.

The schematic of the experiment is illustrated in Fig. 4.1. We focus on the highly localized states of  $4d$  electrons associated with the  $N_{4,5}$  edges of Tb using a bright, soft x-ray table-top source at 155 eV, allowing to probe the inner-shell electron spin states. We show that probing at the N edge via tr-XRMS provides rich information on the magnetic properties that are as accurate as probing at the  $M_5$  edge at 1240 eV. This comes from the fact that  $4d$  electrons are sufficiently shielded, and N-edge transitions are free of the complex cross-contamination [196] of peaks in TM-RE systems in contrast to the  $O_1$  edge at lower photon energies (from 50 eV to 70 eV), where the manybody corrections and local field effects are of crucial importance [Fig. 4.1(b)]. The core of the experimental setup is shown in Fig. 4.1(a). The fundamental femtosecond pulses with  $\lambda_L = 1030$  nm and a duration of  $\sim 220$  fs from a Yb:CaF<sub>2</sub> amplifier were first compressed by a post-pulse compressor, consisting of a hollow-core fiber (HCF) and a set of chirped mirrors. The implemented HCF is 3 m long and has a large core diameter (1 mm), enabling a compression ratio of  $\sim 10$  for the high-energy ( $\sim 11$  mJ) pulses. The post-compressed pulses have a peak power of  $\sim 0.3$  TW (25 fs, 8 mJ), which is key for achieving efficient laser-like HHG [Fig. 4.2(c)] up to 220 eV in a 20 mm helium-filled gas cell with adjustable backing pressure. The harmonic

spectrum is characterized by a soft x-ray spectrometer. As shown in Figs. 4.2(a) and 4.2(e), the change of the pulse duration from 220 fs to 25 fs extends the HHG cutoff from 150 eV to 220 eV. Particularly, the photon flux at the desired resonance of the Tb  $N_{4,5}$  edge is increased by over one order of magnitude. This result can be explained by the suppression of ionization for a shorter driver pulse.



**Figure 4.2** Driver pulse compression and HHG characterization

(a) Temporal characterization of uncompressed and compressed driver pulses with the frequency-resolved optical gating (FROG). (b) Measured and simulated HHG signals as a function of the helium backing pressure with a peak power of  $\sim 0.3$  TW at a wavelength of 1030 nm. (c) Beam profile of the narrowband harmonic beam after the multilayer mirror with a central photon energy of 155 eV. (d) Absorption cross section of Tb near its  $N_{4,5}$  edge [208] and the reflectance of the x-ray multilayer mirror. (e) High-order harmonic spectra driven by uncompressed (200 fs) and compressed (25 fs) pulses.

### 4.3.1 Development of the High-Brightness Soft X-Ray HHG Source

To generate high-brightness HHG radiation, it is essential to reach optimal phase-matching conditions by routinely optimizing the gas pressure, focusing conditions, position of the cell, etc. In Fig. 4.2(b), we plot the total spectrum intensity for photon energy  $>100$  eV as a function of the backing pressure of helium, at a peak intensity of  $6.5 \times 10^{14}$  W cm<sup>-2</sup>. The HHG intensity grows quadratically at low backing pressures, followed by a saturation of the signal at a backing pressure of 200 mbar. When further increasing the pressure, the spectral intensity decreases due to the

absorption of the generated harmonics within and after the generation volume. This observation is reproduced with high fidelity in our ab initio simulation based on the strong-field approximation [see Fig. 4.2(b) and Supplement (Annexe I)]. We further optimize the gas-cell length and find that the HHG flux saturates when the length is larger than 20 mm, indicating the absorption-limited HHG condition [166]. As shown in Fig. 4.2(e), we observe a flat-top spectrum covering the broad spectral range up to a cut-off energy of  $\sim 220$  eV. This value is in excellent agreement with the predicted HHG phase-matching cutoffs for  $\lambda_L = 1030$  nm [177]. Compared to previous experiments [165,207], the high peak intensity of the driving laser here allows us to use a loose focusing geometry and relax the requirements on the phase-matching pressure.

To verify the advantages of our generation strategy for obtaining a high photon flux within the range of the  $N_{4,5}$  edges of RE elements, we experimentally compare the conversion efficiency of our approach: (i)  $\lambda_L = 1030$  nm in helium with two other generation schemes based on OPAs: (ii)  $\lambda_L = 1500$  nm in neon, and (iii)  $\lambda_L = 2400$  nm in argon. We adjust the peak power, pulse duration, and focusing geometry of the driving laser in every case to reach the same cut-off energy. For gases with a lower ionization potential, it is essential to use a long-wave driver pulse to stay below the critical ionization level. The backing pressure of the gas medium is also optimized to obtain phase-matched and absorption-limited HHG. The absolute HHG flux right after the gas cell for case (i) ( $\lambda_L = 1030$  nm in helium) is estimated under diffraction geometry by considering the known efficiency of the CCD (Andor Newton 920), the transmission of the 500 nm zirconium filter ( $\sim 15\%$ ), and BW and efficiency ( $\sim 3\%$ ) of the EUV multilayer mirrors. The photon fluxes for the other conditions are then calculated according to the relative spectral intensity measured using the same spectrometer. Conversion efficiency is then calculated by considering the input pulse energy in each case (see Supplement in Annexe I). The experimentally measured conversion efficiencies for the three different approaches are plotted in Fig. 4.3(a), showing that our method [(i)  $\lambda_L = 1030$  nm in helium] yields the highest conversion efficiency throughout the 100~200 eV range of interest, which is supported by our simulations shown in Fig. 4.3(b).

For the phase-matched HHG, absorption-limited conversion efficiency can be described as  $\xi_q = \lambda_L^{-n} \left| \frac{A_q}{\sigma} \right|^2$  [166], where  $A_q$  is the amplitude of the single-atom recombination cross section at the harmonic frequency  $\omega_q$ ,  $\lambda_L^{-n}$  represents wavelength scaling due to the electron wave packet diffusion during its free-space excursion, with  $n = 5.5 \pm 0.5$  [149], and  $\sigma$  is the x-ray absorption cross section. As shown in Fig. 4.3(c), the longest electron wave packet excursion occurs for argon with  $\lambda_L = 2400$  nm, which leads to a significant reduction in recombination probability for case (iii) [177]. In contrast, the single-atom responses for (i),  $\lambda_L = 1030$  nm in helium, and (ii),

$\lambda_L = 1500$  nm in neon, are similar since the stronger wave packet diffusion for the longer  $\lambda_L$  is compensated for by the larger recombination cross section associated with the larger ionic core of neon in case (ii). Summarizing the above discussion of microscopic single-atom response, the expected HHG efficiency is similar for both helium and neon. Nevertheless, macroscopic propagation changes the situation in favor of helium because its x-ray absorption cross section ( $\sigma$ ) is one order of magnitude lower than neon at the energy of 200 eV [Figs. 4.3(a) and 4.3(b)]. For a fixed driver pulse duration, this simple model suggests a straightforward recipe for reaching the highest flux at a target x-ray photon energy located in a resonance-free plateau region of the harmonic spectrum in the vicinity of the cutoff. The highest efficiency is achieved using helium driven by the shortest laser wavelength capable of reaching the corresponding semi-classical cutoff, given that the laser pulse intensity is sufficient to sustain a phase-matched HHG regime.

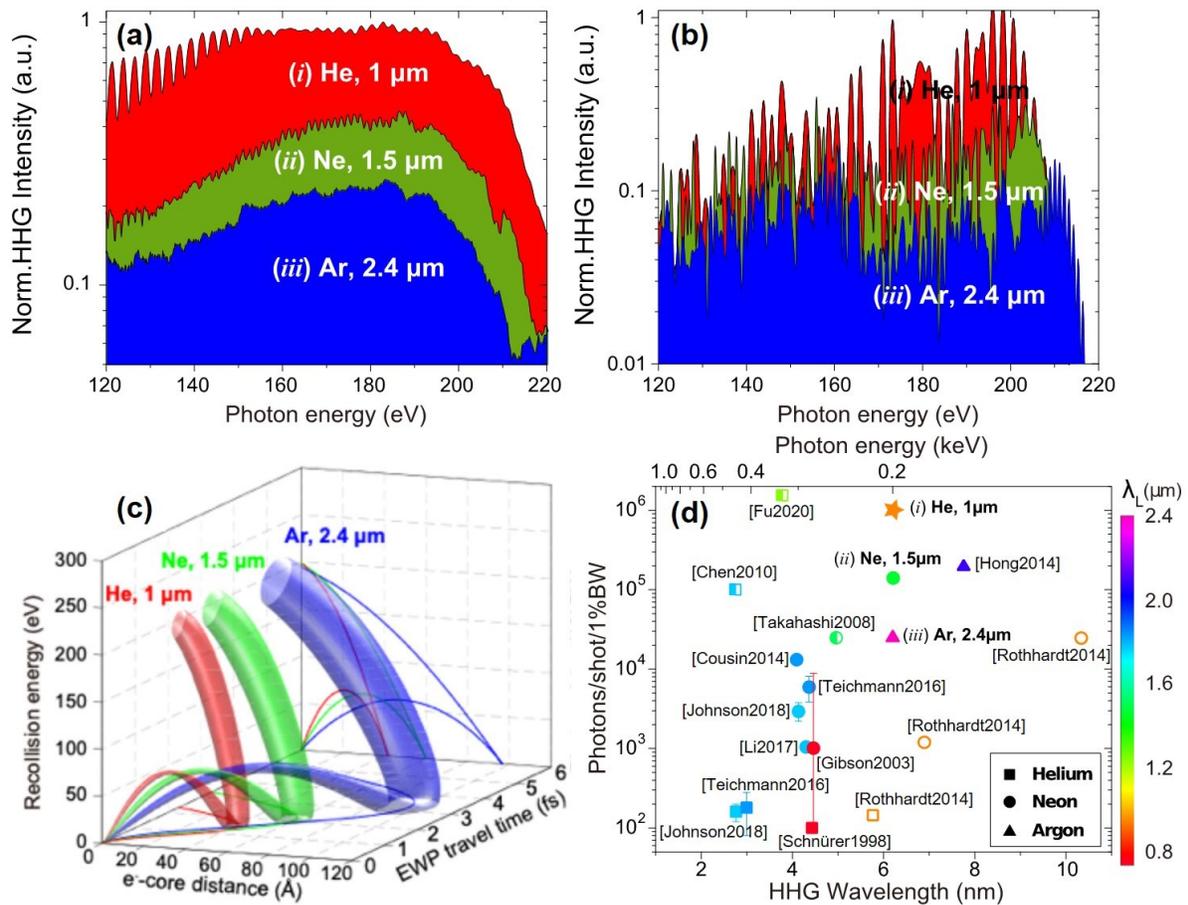


Figure 4.3 HHG from different sources

High brightness of HHG directly driven by compressed 1030 nm-wavelength laser pulses. (a) Measured and (b) simulated conversion efficiencies of HHG in the 100~200 eV spectral range generated in (i) helium with  $\lambda_L = 1030$  nm, (ii) neon with  $\lambda_L = 1500$  nm, and (iii) argon with  $\lambda_L = 2400$  nm. The peak power, pulse duration and focusing geometry are adjusted to yield the same cut-off energy of the spectra. The conversion efficiencies in (a) and (b) are all normalized to the conversion efficiency in case (i) at  $\sim 200$  eV. (c) Simulated cut-off trajectories for the three cases shown in (a) and (b). The radii of the trajectories linearly increase with the

excursion time, symbolizing wave packet spreading. The more efficient single-atom response for 1  $\mu\text{m}$  in helium is due to reduced electron wave packet (EWP) spread caused by the shorter wavelength driving field. (d) Overview of the experimentally generated HHG flux in photons per shot per 1% BW above 100 eV in helium (squares) [197,200,201,203,207], neon (circles) [198–202,207,209], and argon (triangles) [210]. The driving field wavelength ( $\lambda_L$ ) is illustrated by marker colors. The repetition rate of HHG is at  $\sim 100$  kHz for open symbols, at 10–50 Hz for the half-filled symbols, and at  $\sim 1$  kHz for the fully filled symbols.

In Fig. 4.3(d), we show that, owing to the high conversion efficiency for the HHG driver wavelength of 1030 nm in helium, we achieve the highest flux of  $2 \times 10^9$  photons/s/1%BW at 200 eV (see Supplement in Annexe I). Unlike most previous experiments summarized in Fig. 4.3(d), in which  $\lambda_L$ -dependent cut-off extension was studied, our method is free of additional energy loss due to the absence of parametric frequency conversion. Reviewing HHG results with direct laser driving at different wavelengths, it must be noted that with laser pulses of  $\lambda_L = 800$  nm from a Ti:sapphire amplifier, it is possible to extend the cutoff beyond 200 eV by employing sub-10 fs driver pulses [211] or using quasi-phase-matching techniques [209]. However, in these situations, ionization-induced phase mismatch quickly outruns the dispersion contribution of neutral atoms, making macroscopic phase matching very challenging [212]. In contrast, in our experiments with driver pulses of  $\lambda_L = 1030$  nm, we significantly suppress the ionization of helium, thus facilitating phase matching. The estimated ionization fraction is below 0.38%, while the critical ionization of helium is 0.4%. We also note that a photon flux  $> 10^9$  photons/s/1%BW is not necessarily rare at photon energies  $< 100$  eV, which can be readily used for tr-XRMS studies on the low-energy  $M_{2,3}$  edges of TM elements [14].

### 4.3.2 First tr-XRMS Measurement Covering the N Edge of RE

In previous studies, owing to the rapid development of ultrafast x-ray sources, time-resolved element-specific absorption spectroscopy and resonant scattering measurements were used for studying ultrafast demagnetization in ferro- and ferrimagnetic alloys or multilayers. By probing on different magnetic elements, distinct laser-induced magnetic dynamics were revealed, owing to the exchange interaction and transfer of spin angular momentum between elements. López-Flores *et al.* studied the ultrafast demagnetization in Co-RE alloys (RE = Gd, Tb) using a femtosecond-slicing source covering the  $M_{4,5}$  edges of RE elements, and showed that the demagnetization dynamics are element and composition dependent [188]. On the other hand, Merhe *et al.* studied the ultrafast demagnetization and changes in domain structure in CoTb alloys by covering the low-energy  $O_1$  edge of Tb [213] using a similar source. Their results presented evidence for domain-wall broadening, while, more interestingly, they reported a faster demagnetization time compared to Ref. [188], which implies that different dynamics may depend on the probing photon energy. More recently, by covering the  $M_5$  edge of Tb, Ferté *et al.* reported

ultrafast demagnetization of CoTb alloys by hot-electron excitation [214]. Besides the above results, dynamics of the magnetic domains have been studied by covering the  $M_3$  edges of TM elements in Co/Pd and Co/Pt multilayers, but they have yielded very different behaviors [31,50]. We note that most of the above experiments were performed using XFELs, and that results on the  $N_{4,5}$  edges of RE elements are still absent, to the best of our knowledge.

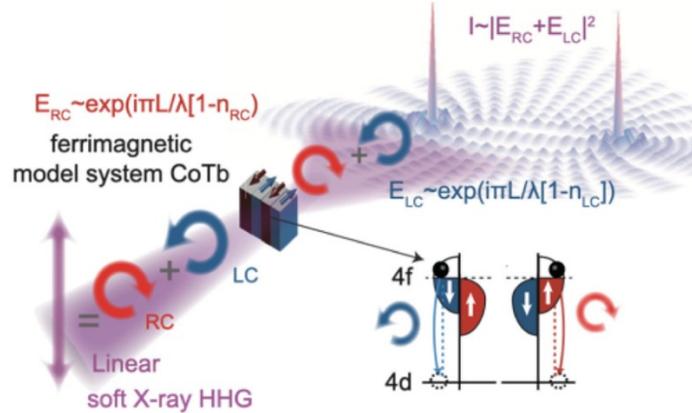


Figure 4.4 Physical mechanism of XRMS

Illustration of the physical mechanism of XRMS at the  $N_{4,5}$  edges of REs using linearly polarized soft x-ray HHG source. The linearly polarized x-ray light can be regarded as the superposition of two circularly polarized light fields with opposite helicities. At the absorption edge of the element, the magneto-optical effect can be analogous to circular dichroism in absorption. The magnetic nanodomain structure of the sample can be approximated by a grating in which the transmission of each domain depends on the relationship between the orientation of the magnetic moment and the helicity of the incoming beam.

The concept of HHG-based tr-XRMS for temporally and spatially resolving spin dynamics at the  $N_{4,5}$  edges of RE elements is illustrated in Fig. 4.4. One important advantage of this method is the ability to use linearly polarized HHG to retrieve high-quality x-ray magnetic circular dichroism (XMCD)-related information from the magnets. Indeed, the production of circularly polarized HHG requires additional rather complex driver setups. It also requires very high purity of the circularity of the driver laser pulses, because any imperfection of the circularity from the fundamental driver beam will be enhanced and transferred into the generated circularly polarized x-ray beam in the soft x-ray regime [128]. The underlying fundamental physical processes of using linearly polarized x-ray light to enable strong magnetic contrast is illustrated in Fig. 4.4. It can be intuitively understood in terms of these different scattering amplitudes  $E_{RC,LC}$  for the opposite helicity circular components that form the linearly polarized beam, or in other words, linearly polarized x-ray light can be seen as the superposition of two opposite helicities (right circularly and left circularly polarized x-ray light) that are differently scattered by magnetic domains depending on the magnetization orientation [181] (see Supplement in Annexe I). The quantitative clarification of the physical origin of XRMS by using circularly polarized x-ray light and its link to the conventional

XMCD measurements have already been developed using an eigenwave formalism [215]. The actual refractive indices and their energy dependence with linearly polarized x-ray light around a core level are calculated by following a classical description of Maxwell equations and a permittivity built from the quantum scattering amplitude [215]. The inference of the x-ray beam encoding with different refractive index information will form a scattering pattern in the far field, which can be characterized through the scattering vector, applied light field, and spectral dependences in reciprocal space. We note that the diffraction patterns come from the leading term for XRMS,  $(\vec{e}_f \times \vec{e}_0) \cdot \vec{m}$ , where  $\vec{e}_0$  and  $\vec{e}_f$  represent the polarization unit vectors of incident and scattered light, respectively, and  $\vec{m}$  is the sample magnetization [213,216] (see Supplement in Annexe I).

Here, we carry out the first table-top tr-XRMS measurements, reaching the  $N_{4,5}$  edges of Tb, in a CoTb sample prototypical of TM-RE ferrimagnetic alloys. The sample is a 50 nm film grown on a  $Si_3N_4$  membrane and exhibiting an out-of-plane magnetic anisotropy with a striped domain structure. We note that, even though the  $N_{4,5}$  edges of Tb are tabulated at 150.5 eV, defining the absorption threshold of the  $4d$  to  $4f$  transition, the highest diffraction efficiency occurs at the energy of  $\sim 155.5$  eV, which was confirmed by measurements on the same samples at the SOLEIL synchrotron and also by previous experiments with higher-energy resolution [208] [see Fig. 4.5(a), and Supplement in Annexe I]. As a result, a concave multilayer mirror with a central energy of  $\sim 155$  eV and a 5-eV-wide BW was selected to focus the harmonic beam onto the ferrimagnetic prototype sample.

The measured static XRMS pattern of the sample is shown in Fig. 4.5(c). Through XMCD sensitivity [213,216], the alternating oppositely magnetized domains [Fig. 4.5(b)] effectively serve as a diffraction grating for the incident linearly polarized soft x-ray beam set at a resonant wavelength of  $\sim 8$  nm, which can be decomposed as two circularly polarized fields with opposite helicities, giving rise to the clear plus-and-minus first-order diffraction peaks in the far field. We simulate the scattering intensity by using a resonant wavelength of Tb  $N_{4,5}$  edges ( $\sim 8$  nm) with a 0.8 nm BW with a normalized mutual coherence factor of one, which describes the internal correlations between the wavefront phases of the beam at different locations [Fig. 4.5(d)]. The obtained real-space stripe-like diffraction pattern from the simulation consists of two well-defined diffraction spots, which have good agreement with the experimentally measured XRMS pattern. The agreement is not only because of the small wavelength of the x ray but also because of the longitudinal coherence (monochromaticity) of the beam. For phase-resolved applications, such as large-scale view nano-imaging [178–180], and enhanced magnetic contrasts using

holographic methods [181], spatial coherence is also important. Note that since HHG is an “electron recollision” process in the microscopic picture [217], particular x-ray photon energies can be generated through different electron trajectories in the optical cycles of the driver laser field, which may lead to a reduction in spatial coherence. In our case, the optimally phase-matched condition in the long gas cell with a high driver laser pulse peak power (0.3 TW) leads to a nearly quasi-plane-wave interaction and a long propagation distance in the nonlinear medium, which is favorable to select a single recollision trajectory and serves to provide high mode quality [nearly Gaussian-like, low divergence  $<2$  mrad, Fig. 4.2(c)] and spatial coherence [218]. Furthermore, since the length scales of magnetic domains are much larger than the wavelength of the incoming x-ray beam and we do not observe notable differences in the simulated patterns of the resonant wavelength at the N edge and the one at the M edge, this indicates, for the present sample, that the resonant wavelength of  $\sim 8$  nm ( $N_{4,5}$  edge) provides spatially resolved high-quality information that is as good as the  $M_5$ -edge resonance wavelength of  $\sim 1.1$  nm, which would require high-energy facility-scale sources. Our soft x-ray  $\sim 8$  nm HHG source with excellent spatial coherence can potentially provide diffraction-limited resolution [219], and we emphasize that this is particularly attractive for resolving recently discovered ultrasmall structures ( $\sim 10$  nm) in TM-RE systems [185,186].

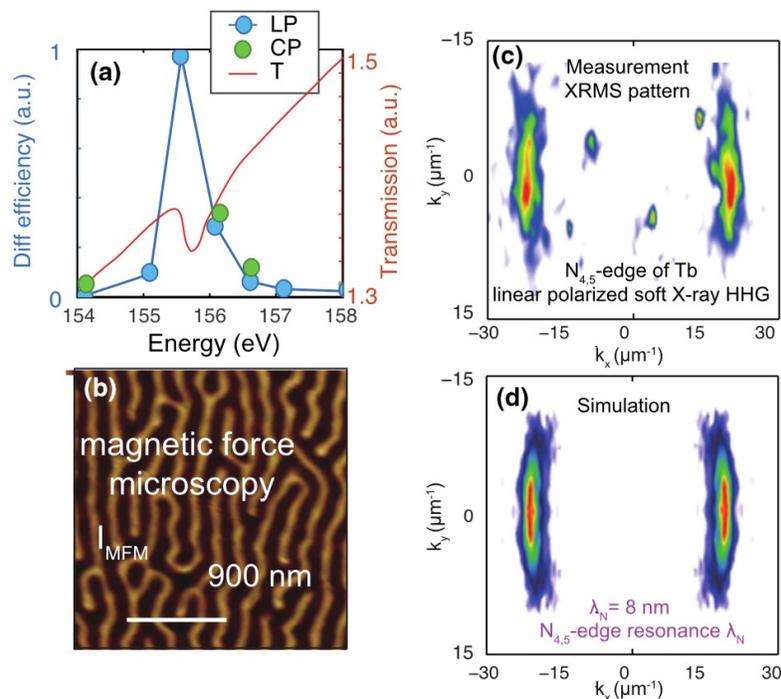
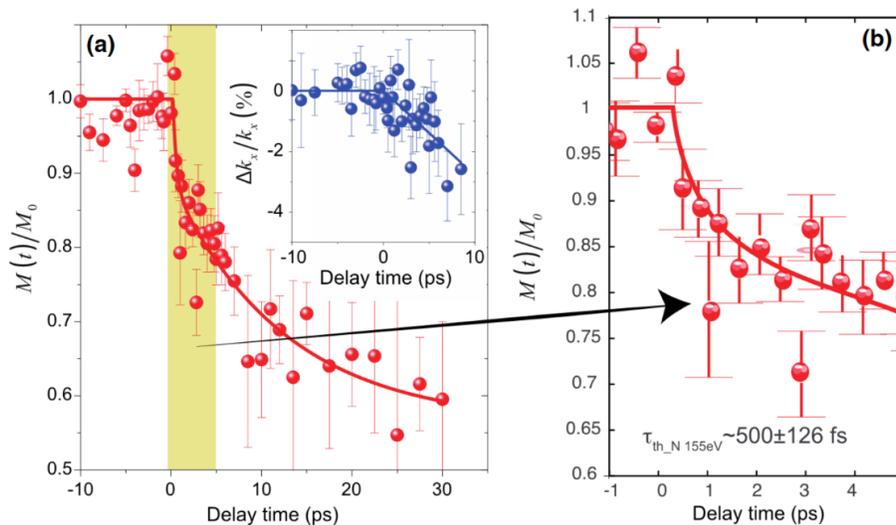


Figure 4.5 XRMS measurements and simulations

XRMS measurements and simulations of the CoTb sample at the N edge of Tb. (a) Soft x-ray diffraction efficiency as a function of the photon energy of our sample measured at SOLEIL synchrotron. LP, linearly

polarized; CP, circularly polarized; T, transmission. (b) Magnetic domain structure of the same CoTb sample measured using a magnetic force microscope (MFM). (c) Experimentally measured XRMS pattern as a function of momentum transfers  $k_x$  and  $k_y$ , corresponding to the magnetic domains. (d) Simulated scattering intensity of XRMS pattern of the sample, assuming a magnetic domain network with opposite out-of-plane magnetization directions, and homogeneous charge distribution at  $N_{4,5}$  edges of Tb using linearly polarized x-ray light at a wavelength of 8 nm (155 eV). The mutual coherence factor was chosen as one.

The ultrafast dynamics in the prototype ferrimagnets of CoTb are induced by pump laser pulses with a wavelength of 1550 nm and pulse duration of 80 fs obtained from an OPA driven by the same Yb driver laser and are probed by soft x-ray pulses arriving at the sample with a time delay. The overall time resolution of our system is  $\sim 84$  fs, defined by the convolution of the pump and soft x-ray probe pulse duration. Here, the pulse duration of the soft x-ray probe is assumed to be nearly the same as compressed laser pulses (25 fs), since soft x-ray radiation is generated within the half-cycle of the laser pulses. The domain magnetization amplitude  $M$  can be measured as the square root of diffraction intensity, while the spatial evolution of the magnetic domains is revealed by the change in momentum transfer ( $\Delta k$ ) [31]. As shown in Fig. 4.6(a), with a pump fluence of  $8 \text{ mJ/cm}^2$ , the intensity of the diffraction peaks is suppressed by  $\sim 70\%$ , which corresponds to demagnetization up to  $\sim 50\%$ . The demagnetization of the sample exhibits two time scales: an ultrafast demagnetization process quickly suppresses  $\sim 10\%$  of the sample magnetization in the sub-ps scale, followed by a slow demagnetization process in several tens of ps. The two-step process is consistent with the type II demagnetization dynamics previously observed for RE materials, including pure Tb [53], FeTb [220],  $\text{Gd}_{1-x}\text{Tb}_x$  alloys [221], and CoTb alloys [213].



**Figure 4.6** Time-resolved XRMS measurements

Time-resolved XRMS measurements of the CoTb sample at the  $N_{4,5}$  edge. Variation of the averaged magnetization  $M(t)$  as a function of the pump–probe delay time in a (a) 35 ps scan range and (b) 5 ps scan range. The magnetization amplitude is extracted from the time-dependent variation of the intensity of the XRMS

diffraction patterns and is normalized to the ground-state magnetization  $M_0$ . (c) Change in momentum transfer in the  $x$  direction in percentage ( $\Delta k_x/k_x$ ) as a function of delay time.

To quantitatively determine the characteristic time constants of the processes involved in the measurements, we use a double-exponential fit function convoluted with the time resolution of the experiment  $G(t)$  of 84 fs:

$$f(t) = G(t) \otimes \left[ A - B \left( 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \right) - C \left( 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right) \right], \quad (4.1)$$

where  $A$  is the value of the transient signal at negative delays, and  $B$  and  $C$  are exponential amplitudes. From this fitting, we can retrieve two important time constants  $\tau_1$  and  $\tau_2$  from our measured data at the  $N_{4,5}$  edge of Tb, which are defined, respectively, as the initial rapid drop of sample magnetization with a thermalization time involving hot electrons and the relaxation time from the spins to other degrees of freedom (lattice, external bath). The obtained fast demagnetization time constant  $\tau_1$  at the  $N_{4,5}$  edges of Tb is  $\tau_{Tb-N} = 500 \pm 126$  fs.

Very interestingly, we find that the fast demagnetization time scale here [Fig. 4.6(b)] is in a good agreement with previous results probing the  $M_5$  edge of Tb [188] (using a large-scale x-ray facility), but slower than that obtained by probing at the  $O_1$  edge [213]. This difference could be attributed to the different initial states probed in these experiments, given that the d states of N and M edges are highly localized, while the 5s states corresponding to the O edge are more delocalized, which implies different magnetic dynamics possibly depending on probing energy [213]. On the longer time scale, we find that sample magnetization does not recover even at  $\sim 100$  ps after pump excitation, which has been typically observed in many ferro- and ferrimagnetic materials containing RE elements [53,213,220,221].

As shown in Fig. 4.6(c), the momentum transfer ( $k$ ) in the  $x$  direction is reduced by  $\sim 3\%$  in  $\sim 10$  ps after pump laser excitation (see Supplement in Annexe I). We note that the decay of  $\Delta k/k$  is much slower than the sample demagnetization ( $M(t)/M_0$ ) and can be approximated as a linear decrease as a function of time. If we assume that the shift of the scattering peaks is correlated to the expansion of the domain periodicity, the slope of the change yields a velocity for the domain walls of  $\sim 750$  m/s. In past works, the dynamics of magnetic domain structures in ferromagnetic multilayers, containing TM elements, have been studied with tr-XRMS with HHG and XFEL sources [31,50,213]. Different materials and compositions yield different dynamics: it was found that the magnetic domains in Co/Pd multilayers remain mostly unaffected by laser-induced demagnetization [31], while the variation of magnetic domains coincides with the demagnetization dynamics in Co/Pt multilayers [50]. In particular, Pfau *et al.* reported the softening of the domain wall owing to the ultrafast spin diffusion process, which results in an almost simultaneous shift of

the momentum transfer accompanied by the demagnetization dynamics [50]. Our results here, however, show a much slower domain dynamic, indicating that the ultrafast spin diffusion is unlikely to be the driving mechanism.

On the other hand, Merhe *et al.* suggested that the decrease in uniaxial anisotropy in CoTb alloys after the laser-induced lattice heating may be responsible for the domain-wall expansion [213]. However, this does not occur in the first 4 ps, until the lattice is heated up, which is obviously different from what we observe here. The discrepancy between our observation and previous results indicates that the domain dynamics here must be driven by a different mechanism, which could be material, composition, and possibly probing energy dependent. More experiments and sophisticated theoretical modeling will have to be developed in the future to give a better understanding of the ultrafast spatial dynamics of magnetic domains in TM-RE ferrimagnetic systems. The tr-XRMS system based on our high-brightness and high-energy HHG soft x-ray source could provide a valuable platform to perform such studies.

#### **4.4 Discussion and conclusion**

We experimentally and theoretically investigate a HHG scheme for spintronic applications that provides a soft x-ray beam with low divergence ( $<2$  mrad), outstanding spatial coherence, and record photon flux ( $> 2 \times 10^9$  photons/s/1% BW) up to  $>200$  eV. This soft x-ray HHG source enables us to perform tr-XRMS measurements on a CoTb ferrimagnetic alloy, reaching the  $N_{4,5}$  edges of Tb for the first time. According to the experimental results, we observe laser-induced ultrafast demagnetization on femtosecond time scales, as well as a shift of scattering peaks that indicates dynamics in the domain structure, indicating the rich driving mechanisms of RE-associated multicomponent systems. We note that, before our work, similar experiments could be carried out only at XFELs and femtosecond-slicing facilities. Our results suggest that, by avoiding the cross-contamination of low energy absorption edges in multi-element systems, N edges can provide high-quality core-level magnetic information of TM-RE systems.

The scheme of the demonstrated generation method in the wavelength of  $5\sim 8$  nm can provide new possibilities for realizing ultrafast spin manipulation and ultrafast imaging of magnetic nanostructures [219,222]. This is important for building functional skyrmion devices that can be written, read, manipulated and erased in a deterministic way in the future [223], and this will open new opportunities for electrically controlled topological electronics and spintronics. Furthermore, the unique capability of generating attosecond soft x-ray pulses with high brightness will pave the way for observing sub-femtosecond all-optical spin control in a much wider variety of magnetic

materials [99].

Today, the new high-power ultrafast Yb laser technology is emerging rapidly. Yb-based fiber- [204], slab- [205], and thin-disk [206] lasers at several hundred or even kilowatt average power are becoming commercially available. Novel nonlinear compression is drawing significant research efforts to boost further the sub-ps Yb laser performance (in terms of peak power, duration, wavelength), e.g., solitons in periodic layered Kerr media with high compactness accompanying self-cleaning of the beam [224], and energetic multidimensional solitary states (MDSS) in the HCF enabling unexpected compression factors and sufficient wavelength tunability [17]. Considering such newly achieved driver technology, the photon flux of HHG can be further scaled by another several orders of magnitude in the soft x-ray spectra range, accompanied by a compact and robust architecture. The high-performance table-top HHG source will continue to be at the forefront of many scientific breakthroughs, opening doors in exciting interdisciplinary research in various fields, including condensed matter physics, life sciences, and nanotechnology [178].

#### **4.5 Funding**

Deutsche Forschungsgemeinschaft (Cluster of Excellence Advanced Imaging of Matter); Fonds de recherche du Québec – Nature et technologies; Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada; Shanghai Municipal Science and Technology Basic Research (19JC1410900); National Key Research and Development Program of China; National Natural Science Foundation of China (11874121); Institut national des sciences de l'Univers (CNRS-MOMENTUM); Agence Nationale de la Recherche (UMAMI ANR15-CE24-0009); Austrian Science Fund (P30465-N27, FWF P27491); Marie Skłodowska-Curie (798176).

#### **4.6 Acknowledgments**

Z.T. gratefully acknowledges the financial support from National Key R&D Program of China, the National Natural Science Foundation of China, the Shanghai Municipal Science and Technology Basic Research Project, and the Alexander-von-Humboldt Foundation. T.B. acknowledges funding from the EU H2020 research and innovation program under the Marie Skłodowska-Curie Actions. X. Xie acknowledges funding from the Austrian Science Fund (FWF) (P30465-N27). G. F, T.B and A.B acknowledge funding from the Austrian Science Fund (FWF) (FWF P27491). M.H., G.M., B.V., and J.L. thank the French Agence Nationale de la Recherche for support via projects UMAMI ANR-15-CE24-0009. E.J. is grateful for the financial support of the CNRS-MOMENTUM

program. F.L., G.F., K.L. V.C., and R.S. acknowledge financial support from NSERC, FRQNT, and PRIMA. K.L. and V.C. acknowledge support from the NSERC Alexander Graham Bell Canada Graduate Scholarships program. R.S. acknowledges support from FRQNT for a scholarship. F.C. and G.F. acknowledge support from the Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG, German Research Foundation) via the Cluster of Excellence Advanced Imaging of Matter (AIM).



## 5 ARTICLE 2 – DÉSAIMANTATION DANS LE PROCHE INFRAROUGE

---

### Wavelength scaling of ultrafast demagnetization in Co/Pt multilayers

Dépendance en longueur d'onde de la désaimantation ultrarapide dans des multicouches de Co/Pt

#### Auteurs :

Vincent Cardin<sup>1</sup>, Tadas Balčiūnas<sup>2</sup>, Katherine Légaré<sup>1</sup>, Andrius Baltuška<sup>2</sup>, Heide Ibrahim<sup>1</sup>, Emmanuelle Jal<sup>5</sup>, Boris Vodungbo<sup>5</sup>, Nicolas Jaouen<sup>3</sup>, Charles Varin<sup>4</sup>, Jan Lüning<sup>5</sup> et François Légaré<sup>1</sup>

<sup>1</sup>INRS-EMT, 1650 boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec, Canada J3X1P7

<sup>2</sup>TU WIEN, Faculty of Electrical Engineering, Gußhausstrasse 25-29, 1040 Vienne, Autriche

<sup>3</sup>Synchrotron SOLEIL, L'Orme des Merisiers, 91190 Saint-Aubin, France

<sup>4</sup>Cégep de l'Outaouais, Gatineau, Québec, Canada J8Y 6M4

<sup>5</sup>UPMC, 4 Place Jussieu, 75005 Paris, France

#### Publication :

Article publié le 21 février 2020 dans la revue Physical Review B, volume 101, numéro 054430.

DOI : 10.1103/PhysRevB.101.054430

Article reproduit avec autorisation de Cardin *et al.*, Physical Review B 101, 054430 (2020), DOI : 10.1103/PhysRevB.101.054430. © 2020 de l'American Physical Society.

#### Contribution des auteurs :

L'expérience a été menée par Vincent Cardin, Tadas Balčiūnas et Katherine Légaré en plusieurs campagnes expérimentales de quelques semaines. C'est Vincent Cardin qui en était le responsable, et c'est lui qui a conçu le montage expérimental et dirigé toutes les campagnes à l'exception d'une seule, qui a été gérée par Tadas Balčiūnas. Katherine Légaré a préparé le programme d'automatisation de la prise de données et participé à la prise de mesures dans chaque campagne. C'est principalement Vincent Cardin qui a traité les données.

La participation de Tadas Balčiūnas a été rendue possible par son superviseur, Andrius Baltuška. Heide Ibrahim, Emmanuelle Jal et Boris Vodungbo et Nicolas Jaouen ont offert leur support pour la rédaction du manuscrit, qui a été effectuée par Vincent Cardin.

Charles Varin a échafaudé le support théorique qui a permis l'interprétation des résultats.

Le projet a été élaboré par Jan Lüning, avec l'aide de Nicolas Jaouen et de François Légaré.

#### **Lien entre l'article précédent et le suivant :**

L'article 1 présente une source intense de photons s'étalant de  $\sim 100$  à  $200$  eV. Cette source est fondée sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés. L'utilisation d'impulsions ultracourtes ( $\sim 25$  fs) centrées à  $1030$  nm pour pomper la HHG et une analyse rigoureuse de l'accord de phase permettent d'obtenir un flux de photons de  $2 \times 10^9$  photons/s par % de bande spectrale. Cette source est utilisée pour étudier la désaimantation ultrarapide dans le terbium par une méthode résonante, soit la diffusion résonante de rayons X. Cette méthode est idéale, car elle peut être utilisée avec du rayonnement polarisé linéairement tel que celui offert par la source HHG. Par contre, le XRMS est peu efficace et requiert donc une source intense de photons résonants. Dans le terbium, le seuil N d'absorption se situe à  $\sim 155$  eV. Ainsi, les mesures de désaimantation ultrarapide au seuil N du terbium témoignent de l'intensité de la source HHG dans cette gamme spectrale. Les mesures XRMS résolues en temps donnent également accès au mouvement des domaines magnétiques pendant la désaimantation. Les résultats sont consistants avec un élargissement des domaines magnétique dans les premiers  $10$  ps après l'excitation.

Bien que les terres rares telles que le terbium présentent des dynamiques magnétiques fort intéressantes qui doivent continuer à être étudiées, une autre catégorie de matériaux magnétiques mérite de l'attention. Les métaux de transition sont également sujets à la désaimantation ultrarapide, et les dynamiques qui y sont associées sont différentes. En effet, la structure électronique des métaux de transition offre un accès plus direct à la couche  $3d$ , qui est responsable de l'aimantation. Les dynamiques magnétiques en sont simplifiées en plus d'être plus rapides. En outre, les seuils d'absorption de ces métaux correspondent à des énergies plus faibles que pour les terres rares. Les résonances des métaux de transitions sont donc plus facilement accessibles par une source HHG. L'article présenté dans ce chapitre rapporte des mesures de XRMS résolues en temps sur un échantillon multicouche de cobalt/platine. L'effet de la longueur d'onde de pompe sur les dynamiques magnétiques est étudié.

## 5.1 Abstract

Ultrafast demagnetization, a phenomenon of utmost interest in the context of optical control of magnetically recorded data, has been extensively studied in a variety of different materials. However, only a limited number of studies have investigated the impact of the pump laser wavelength on the process, and only within a narrow spectral range. Performing resonant scattering experiment at the cobalt  $M_{2,3}$  edges, using extreme ultraviolet radiation photons from a high harmonic source, we studied the ultrafast demagnetization dynamics of Co/Pt multilayers by tuning the pump wavelength to 0.4, 0.8, and 1.8  $\mu\text{m}$ . We show that the degree of demagnetization at short time scale (100s of fs) is stronger at longer wavelengths. This is explained by the wavelength dependence of both the laser induced heating of the electrons ( $T_e \propto \lambda^2$ ) and the spatial distribution of the electromagnetic energy deposited into the multilayer sample.

## 5.2 Introduction

In 1996, Beaurepaire *et al.* [7] discovered ultrafast demagnetization as a femtosecond laser driven process. More recently, coherent control of magnetization has been demonstrated using THz pulses [225,226], where the magnetic moment of the material follows the magnetic field of the optical excitation. However, for the vast majority of reported cases, the exact nature of the electromagnetic field driving the process (the pump pulse) has not been considered. Previous work considered the energy dependence of the ultrafast magnetization probe, e.g., to study the spin-polarized electrons energy compared to the Fermi level [227], or to separate the optical coherent effects from the true magnetization response of a material when the magneto-optic Kerr effect (MOKE) is used for probing [114]. In comparison, most studies gave no consideration to the effect of the pump wavelength, with a few exceptions [13,106,228], and simply used the most available femtosecond technology, the titanium-sapphire laser ( $\lambda \sim 0.8 \mu\text{m}$ ).

The creation of hot, conducting electrons is recognized as the first step of the demagnetization sequence [53,68,87,227,229,230]. It has been recently shown using *ab initio* calculations [231] that the early onset of demagnetization is dominated by electronic processes. Tengdin *et al.* [232] provide evidence that the demagnetization is driven by an optically excited transient increase of the electronic temperature. Furthermore, the importance of the temperature distribution of these hot electrons has recently been shown to play a major role in demagnetization [92,232,233]. It has been demonstrated that magnetization can be quenched via an indirect excitation by hot

electrons optically created in an infrared (IR)-opaque capping layer [92,95,234,235]. In the case of such indirect excitation, super-diffusion of nonthermal [92,235] or diffusion of thermal [95,234] hot electrons from this capping layer into the magnetic structure initiate the ultrafast demagnetization. In the case of direct excitation, we expect the wavelength of the pump pulse to have an effect on the energy transfer to the hot electrons responsible for the process.

### 5.3 Experiment & Results

We investigate the pump-wavelength dependence of the ultrafast demagnetization of a Co/Pt multilayer sample ( $\text{SiN}_{30}/\text{Pt}_2/[\text{Co}_{0.6}\text{Pt}_{0.8}]_{30}/\text{Al}_3$ ) using pump with wavelengths of 0.4, 0.8, and 1.8  $\mu\text{m}$ . HHG-based x-ray resonant magnetic scattering (XRMS) at the cobalt  $M$  edge (60 eV) was used to probe the magnetization dynamics. The pump-probe experiment is schematized in Fig. 5.1 and more details are provided in the Supplemental Material (Annexe II). We observe a significant wavelength dependence of the maximum degree of magnetization quenching at constant absorbed energy, with a stronger quenching for longer pump wavelength.

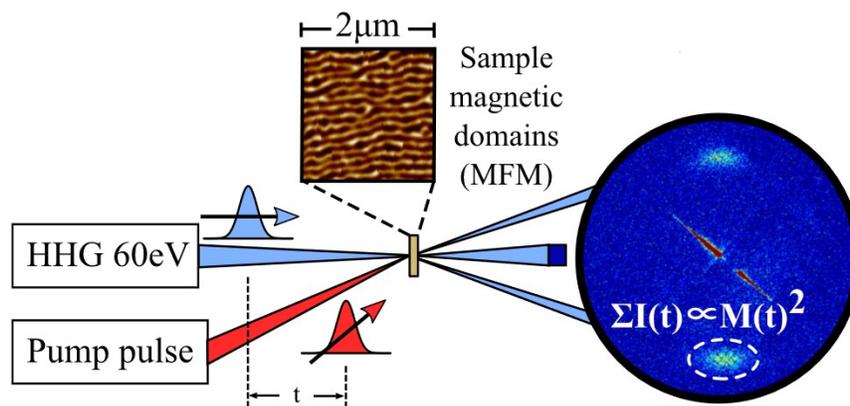
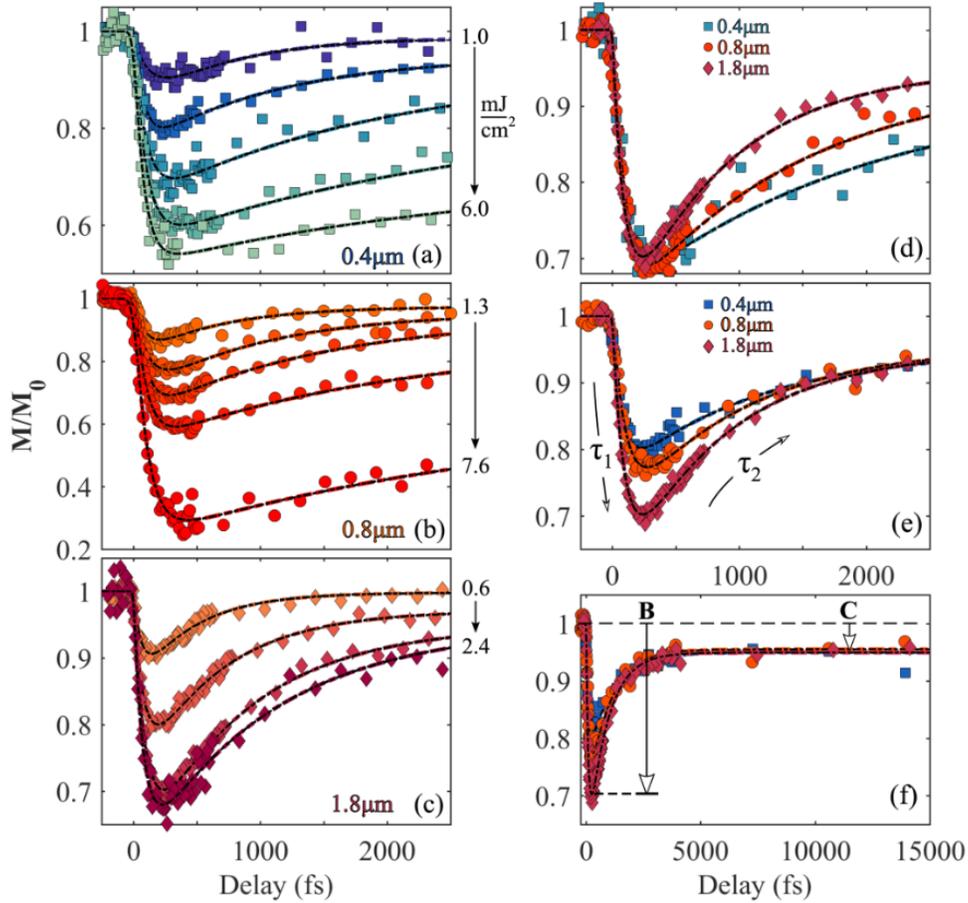


Figure 5.1 Conceptualization of the pump-probe XRMS technique

The pump (red) reach the sample at a time  $t$  before the 60-eV photons (blue). The pump affects the sample magnetization. The 60-eV photons are diffracted by the striped magnetic domain. The intensity of the diffracted peak is proportional to the transmission of the sample and the second power of its magnetization at time  $t$  [31].

Results for the initial 2.5 ps delays at a variety of pump fluences for the three wavelengths are shown as symbols in Figs. 5.2(a), 2(b), and 2(c). In order to recover the wavelength scaling, the indicated fluences are corrected by the loss from sample reflections, and therefore correspond to the absorbed fluence. All the curves shown in Fig. 5.2 exhibit the characteristic behavior of a sharp decay within hundreds of fs, followed by a slower partial magnetization recovery. The time at which the maximum quenching of the magnetization occurs (minimum of the curve) appears to be wavelength and intensity independent at  $\sim 230$  fs. While the curves for pump at 0.4 and 0.8  $\mu\text{m}$

show an almost linear recovery (a) and (b), the curves for 1.8  $\mu\text{m}$  (c) exhibit a more pronounced curvature and a faster recovery.



**Figure 5.2 Demagnetization curves for three pump wavelengths**

Demagnetization curves for the three pump wavelengths (a) 0.4  $\mu\text{m}$ , (b) 0.8  $\mu\text{m}$ , (c) 1.8  $\mu\text{m}$ . (d) Comparison of dynamics at different wavelengths for the same maximum quenching, *B*. (e) Comparison of curves showing the same long-term magnetization level *C*. (f) Same curves as (e) for the complete measured pump-probe delay. The fitting parameters are illustrated in (e) and (f).

We have fitted these results with an empirical model (dashed lines) based on convolution of a normalized Gaussian pulse with a bi-exponential decay [31,32,112]. The model describing the evolution of the normalized magnetization  $M(t)/M_0$  yields the characteristic time scales of the magnetization quenching (demagnetization time,  $\tau_1$ ) and the slower partial recovery (recovery time,  $\tau_2$ ). The parameters  $\tau_1$  and  $\tau_2$  are illustrated in Fig. 5.2(e):

$$\frac{M(t)}{M_0} = G(t) \otimes \left[ 1 - H(t) \left[ B \left( 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) + C \left( 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right) \right] \right], \quad (5.1)$$

where  $H(t)$  is the Heavyside function. The parameter  $B$  primarily determines the maximum quenching of the magnetization,  $1 - (M/M_0)_{\min}$ . Parameter  $C$  represents the asymptotic

demagnetization at long delays, i.e., the higher  $C$ , the lower the recovered magnetization [see Fig. 5.2(f) where  $B$  and  $C$  are represented].

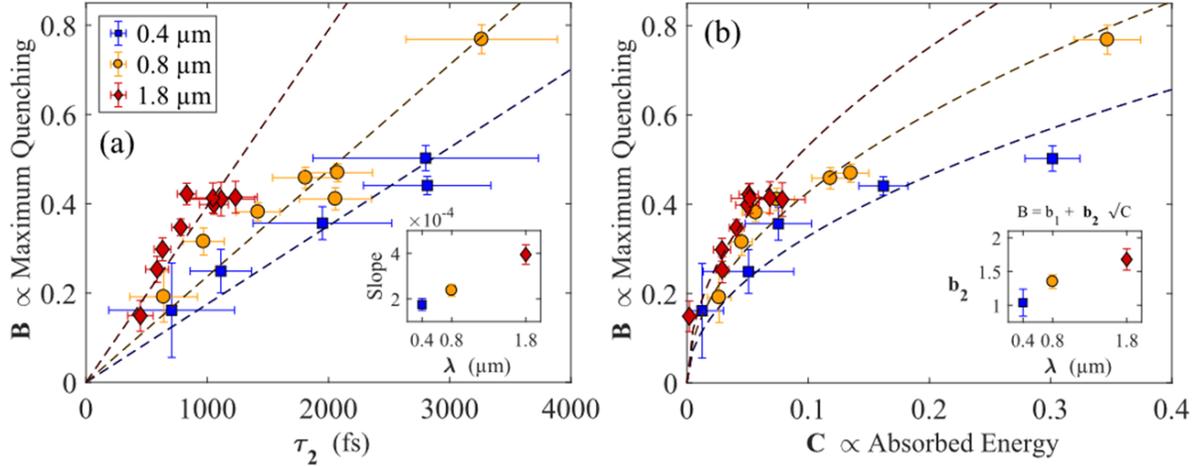
For comparison reasons, we grouped the measurement data either by the maximum demagnetization (constant  $B$ ) or by the constant asymptotic magnetization level (constant  $C$ ). Demagnetization dynamics measurements in Fig. 5.2(d) show the curves for the three pump wavelengths of identical maximum quenching. It indicates a faster recovery for the longer wavelength for the same level of magnetization quenching. Conversely, Fig. 5.2(e) is grouped for comparison of curves that reach the same value of demagnetization at long delays (constant parameter  $C$ ). One notes that the 1.8- $\mu\text{m}$ -pumped curve exhibits the highest level of magnetization quenching (parameter  $B$ ), followed by the 0.8  $\mu\text{m}$  and then the 0.4  $\mu\text{m}$ . Figure 5.2(f) shows the same curves as Fig. 5.2(e), but over the full range of the measured pump-probe delays up to 13 ps.

## 5.4 Discussion

### 5.4.1 Alternative energy gauges

Our results indicate that either the initial demagnetization, its recovery, or both are being influenced by the pump wavelength. In order to avoid inaccuracies from a separate measurement of the absolute pump fluences, we introduce two gauges for the energy absorbed by the system. These gauges are independent of experimental conditions and consist in (i) the recovery time,  $\tau_2$ , and (ii) the remaining demagnetization at long delays,  $C$ . The maximum magnetization quenching,  $B$ , is then evaluated as a function of these gauges in Fig. 5.3. In Fig. 5.3(a), the dependence of  $B$  over the recovery time,  $\tau_2$ , is approximated with a linear function. In Fig. 5.3(b), the maximum demagnetization,  $B$ , is depicted as a function of the remaining demagnetization at long delays,  $C$ . It is empirically fitted by a square root function. The insets of both panels show the empirical fitting parameters as a function of wavelength. In both cases, the maximum quenching of magnetization at early time ( $B$ ) increases with increasing pump wavelength.

Such different scaling behavior of  $B$  vs  $C$  and  $B$  vs  $\tau_2$  is expected. Although parameter  $C$  is clearly linked to the absorbed energy, their relation at very low and very large pump fluence is uncertain. At very low pump fluence, the recovery is fast enough for the asymptotic-like value of the magnetization between  $\approx 2.5$  and 13 ps to be zero, while parameter  $B$  is nonzero. Additionally, as the quenching of magnetization saturates for large pump fluences, the parameter  $B$  levels off while parameter  $C$  keeps increasing, leading to a radical-like function.



**Figure 5.3 Wavelength dependence of  $B$  with two energy gauges**

Wavelength dependence (0.4  $\mu\text{m}$  in blue, 0.8  $\mu\text{m}$  orange, 1.8  $\mu\text{m}$  in red) of the maximum magnetization quenching  $B$  and the alternative energy gauges  $C$ , and  $\tau_2$  [c.f. Eq. (4.1)]. The dashed lines represent an empirical extrapolation of the data points. Each data point represents a full demagnetization curve. Panel (a) shows the maximum quenching  $B$  in relation to the relaxation time,  $\tau_2$ . Panel (b) depicts the maximum quenching of the magnetization  $B$  in relation to the asymptotic demagnetization  $C$ . The insets of panel (a) and (b) represent the fitting parameters for both empirical fitting equations.

The recovery time,  $\tau_2$ , however, represents a physical quantity more directly related to the absorbed energy, as an excited system will unequivocally recover over a certain time. The linear dependence of  $\tau_2$  with the pump fluence has been extensively observed [31,50,232,236]. An explanation is that the specific heat of the electron bath increases with increasing temperature, reducing heat transfer rate to the phonons for high fluences [237,238]. In our study,  $\tau_2$  is also found to increase linearly with the measured fluence for all wavelengths<sup>5</sup>. Additionally, since the recovery of the magnetization begins long after the pump, it should be unaffected by any wavelength-dependent material effect. Hence, in the context of investigating a wavelength scaling of the ultrafast demagnetization, we argue that  $\tau_2$  is a more intrinsic gauge of the effective fluence reaching the material.

For the reasons stated above, both gauges cannot have the same relationship to the absorbed energy in the system, although they undoubtedly share a dependence to it. Plotting  $C$  against  $\tau_2$  for the three wavelengths<sup>5</sup> shows that both gauges are independent of the pump wavelength. This can be explained by the fact that, far from a phonon resonance, the rate of the energy dissipation is a property of the material that is expected to be completely independent of the photon

<sup>5</sup>See Supplementary Information (SI, Annexe II) at: <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevB.101.054430> for a continued discussion on the alternative energy gauges and a detailed description of the experimental conditions and pump and probe pulses characterization.

wavelength. The time it takes for the energy to dissipate ( $\tau_2$ ), or equivalently, the asymptotic-like magnetization at long delays (parameter  $C$ ), should only depend on the energy absorbed by the system. These assumptions are consistent with the demagnetization measurements of a directly and indirectly excited similar Co/Pt multilayer [95], where no discernable differences in the dynamics of magnetization recovery have been observed, despite the very different nature of the initial excitation.

#### 5.4.2 Drude model with dispersion

Explaining these results with a complete model would be extremely challenging as it would require starting from first principles, i.e., dealing with the multibody electron, phonon, and spin wave function coupled with the laser pulse's electromagnetic wave propagation across multiple material interfaces and throughout the entire sample. So far, experiments were explained successfully with Beaurepaire's [7] phenomenological three-temperature model (3T) that tracks the evolution of the average energy of the electron, spin, and phonon (ESP) populations in terms of the ESP temperatures  $T_e$ ,  $T_s$ , and  $T_p$ . Within the 3T perspective, the individual ESP populations are assumed to be in an internal thermal equilibrium at all times and the laser-induced demagnetization proceeds as follows. First, on the time scale of the pulse, electrons are heated by the laser with negligible energy exchange with the spin and phonon populations. In a second step, excess electronic energy is transferred to the spins, reaching a maximum of demagnetization on the subpicosecond time scale. Finally, as the three populations evolve toward a thermal equilibrium, magnetization is partially recovered. Demagnetization on the multipicosecond time scale [ $C$ , see Fig. 5.2(f)] is proportional to the energy deposited into the sample. For moderate heating, it is possible to show that the maximum electron temperature reached after the pump pulse is proportional to the fluence  $F$  (Ref. to SI, Annexe II):

$$\Delta T_{e,\max} = \sqrt{T_{e,0}^2 + \frac{2}{\gamma}W} - T_{e,0} \cong \frac{W}{C_e(T_{e,0})}, \quad (5.2)$$

where  $T_{e,0}$  is the initial electron temperature, and  $\gamma$  is the electronic specific heat constant such that  $C_e(T_e) = \gamma T_e$ , and  $W = 2\pi\epsilon_2 F/\lambda$  is the energy density transferred to the medium with a relative permittivity  $\epsilon_r = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ . We stress that with this definition of  $W$ , both  $F$  and  $\lambda$  are defined in vacuum. In most studies so far, the term  $2\pi\epsilon_2/\lambda$  was assumed to be constant, leaving the long-term demagnetization to depend only upon the laser fluence  $F$ . However, it appears clearly here that the laser-induced demagnetization dynamics should also be influenced by the pump wavelength  $\lambda$ , for the simple reason that materials are optically dispersive, i.e., that the

value of their relative permittivity changes with the wavelength.

We computed an effective sample permittivity by weighting the contribution from the individual materials with respect to their relative volume and observed that energy absorption globally scales with  $\lambda^2$  (Ref. to SI, Annexe II). We can link this trend to a more effective heating of the conduction electrons at longer wavelengths via intraband transitions. For instance, for the wavelength range considered in the experiments, the weighted, effective optical response is fairly represented by a Drude permittivity and it is possible to show that the cycle-averaged optical power absorbed by the conduction electrons can be approximated by the following equation:

$$\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle = \frac{1}{2} \left( \frac{\sigma}{1 + \omega^2 \tau^2} \right) E_0^2 \cong \frac{2N}{\tau} U_p \propto \lambda^2, \quad (5.3)$$

where  $\sigma$  is the static conductivity,  $\omega = 2\pi c/\lambda$  is the angular frequency,  $\tau$  is the electron collision mean free time,  $E_0$  is the amplitude of the electric field,  $N$  is the density of conduction electrons, and  $U_p = e^2 E_0^2 / 4m\omega^2$  is the ponderomotive energy of a free electron oscillating in the field, with  $e$  being the elementary electric charge and  $m$  the electron mass. The  $\lambda^2$ -scaling trend indicates that, for a given pulse energy, electron heating and subsequent demagnetization should be more efficient using longer wavelengths. This is supported by our observations of a higher level of demagnetization at early times for 1.8  $\mu\text{m}$ . Note that in the limit where  $\omega = 0$ , the equation above is equivalent to the static source term  $P(t)$  of Beaurepaire's [7].

### 5.4.3 Optical absorption in the multilayers

Further insight was gained by looking at optical data for Al [239], Pt [240], and Co [241], from which we computed the decay constant  $\alpha = 2\pi\kappa/\lambda$  as a function of the wavelength  $\lambda$  ( $n$  and  $\kappa$  are the refractive index and extinction index, such that  $\epsilon_r = (n + i\kappa)^2$ ). We consider an oxidation layer ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) of 1.5 nm [242–244], reducing the effective thickness of the aluminum capping layer to 1.5 nm.

It is noted that the optical data from the above references was obtained from films with different thickness compared to our sample. It is known that for nanoscale objects like thin films, optical properties are strongly influenced by the size of the object, e.g., by the thickness [245]. The current analysis provides an intuitive picture to explain our results, but should be interpreted with care. Nevertheless, from the results summarized in Fig. 5.4, it stands out that optical absorption in the three investigated conductive materials varies significantly over the 0.4–1.8  $\mu\text{m}$  and favors direct energy deposition in Co/Pt when increasing the wavelength from 0.4 to 1.8  $\mu\text{m}$ .

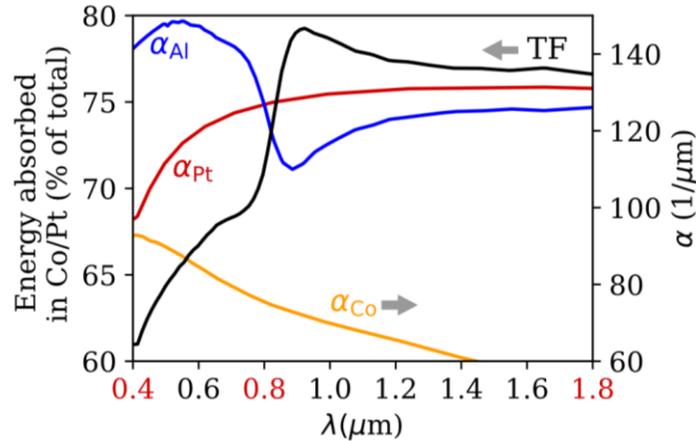


Figure 5.4 Optical absorption data

Optical absorption data for Al [239], Pt [240], and Co [241] reveal a strong dependence with regards to the laser wavelength. Estimations based on the Beer-Lambert law (see text) and the thin-film electromagnetic theory (TF, black line) show that with increasing wavelength more energy gets deposited in the Co/Pt part of the sample.

In order to get a qualitative insight, we first used the Beer-Lambert law. At first glance, it suggests that more than 80% of the pulse energy transmitted into the sample is effectively deposited into the Co/Pt layers<sup>6</sup> and that the dependence of this transmitted energy with the wavelength is not strong (within 2%). However, including multiple optical reflections at the Al-Pt and Al-air interfaces reduces the fraction reaching the Co/Pt layers down to 70% while increasing the wavelength dependence to ~7%. To fully assess optical reflections and multiple beam interference in the entire sample, we used the thin-film electromagnetic theory [246]. The complete theory clearly shows that out of a given pulse energy reaching the Co/Pt layer, about 15% more gets absorbed at 1.8  $\mu\text{m}$  compared to 0.4  $\mu\text{m}$  (thin-film results are labeled TF in Fig. 5.4).

From this analysis, it stands out that for a given pulse energy deposited into the sample, a higher fraction is effectively absorbed within the Co/Pt at 1.8  $\mu\text{m}$ , followed by 0.8, and 0.4  $\mu\text{m}$ . At short time scales, an increasing transient electron temperature is reached in the magnetic region of the sample for longer pump wavelength thus leading to a stronger quenching of the magnetization at short time scales [B, see Fig. 5.2(e)]. As the system reaches equilibrium, the temperature becomes uniform across the sample and the same level of demagnetization is reached on the multipicosecond timescale [C, see Fig. 5.2(f)]. To summarize, we identified two contributions to the wavelength dependence of the demagnetization of Co/Pt layers: first, heating at short time scales is more efficient at longer wavelength ( $T_e \propto \lambda^2$ ) and second, subwavelength optical effects unfolding through the entire sample favor energy deposition into the magnetic domains with

<sup>6</sup> See Supplementary Information, Annexe II.

increasing pump wavelength, in the studied range. More studies are needed to disentangle both contributions.

Obviously, more investigation is needed to provide full insight into the light-induced, wavelength-dependent demagnetization dynamics revealed by the current experiments. Proper models should include a microscopic description of the ESP populations' dynamics and energy distribution but, as emphasized above, they should also deal properly with electromagnetic effects on the full sample scale. Microscopic effects are likely to introduce a temperature dependence for the collision frequency which, in turn, defines the conductivity and optical absorption of the materials. This would affect the wavelength dependence of the overall laser-induced demagnetization process. However, this does not affect the general conclusion of our simplified analysis, i.e., that pump wavelength scaling of laser-induced ultrafast demagnetization can only be fully assessed if regular optical principles are taken into account. Providing such a full microscopic-to-macroscopic perspective is a challenge that will be difficult to overcome in the near future.

Finally, previous reports have also identified a wavelength dependence on the demagnetization of different materials. Of those reports, Bierbrauer *et al.* [13] is the most relevant comparison to this work. They have reported time-resolved MOKE measurements on bulk nickel, for pump photon energies of 1.55 eV (0.8  $\mu\text{m}$ ) and 3.10 eV (0.4  $\mu\text{m}$ ). Our observations strongly overlap with theirs, however, with different interpretation. They have normalized the data to the maximum demagnetization and have attributed the observed wavelength dependence to different system recovery times. Renormalizing the data to the absorbed energy instead reveals that it is the maximum quenching of the magnetization that is wavelength dependent [see Fig. 5.2(e)].

## 5.5 Conclusion

In conclusion, we have studied the effect of the pump wavelength on the ultrafast demagnetization of a Co/Pt multilayer sample. We attribute the intrinsic behavior of the magnetization at long pump-probe delays to the absorbed energy in the system, allowing a comparison completely free of uncertainties arising from the determination of the wavelength-dependent absorption and reflectivity, and of the distribution of such absorbed energy within the sample. We find that a longer wavelength quenches the magnetization on the ultrashort time scale more efficiently. Numerical analysis suggests that this observation is related to (i) a more efficient electronic heating in metals at longer laser wavelengths, and (ii) a wavelength dependence on how the energy is deposited spatially in the complex sample favoring more efficient coupling to the Co/Pt

layers at 1.8  $\mu\text{m}$ . This work suggests routes of optimizing the capping layer and the pump wavelength for more efficient absorption of the energy in order to drive low consumption magnetic devices.

## **5.6 Acknowledgments**

The authors warmly thank M. Hehn for providing the multilayers used in this study. The INRS team acknowledges support from NSERC, FRQNT, PRIMA, and CFIMSI. V.C. and K.L. acknowledge NSERC. T.B. acknowledges funding from the Marie Skłodowska-Curie Grant Agreement No. 798176. C.V. acknowledges NSERC through Grant No. CCIPE 517932-17 and FRQNT for Grant No. 2019-CO254385. The UPMC team is grateful for financial support received from the CNRS-MOMENTUM.

## **6 ARTICLE 3 – COMPRESSEUR À DÉCALAGE VERS LE ROUGE**

---

### **Raman Red-Shift Compressor: A Simple Approach for Scaling the High Harmonic Generation Cut-Off**

Compresseur Raman à décalage vers le rouge : une approche simple pour contrôler l'énergie de coupure de la génération d'harmoniques d'ordres élevés

#### **Auteurs :**

Katherine Légaré<sup>1</sup>, Reza Safaei<sup>1</sup>, Guillaume Barrette<sup>1</sup>, Loïc Arias<sup>1</sup>, Philippe Lassonde<sup>1</sup>, Heide Ibrahim<sup>1</sup>, Boris Vodungbo<sup>2</sup>, Emmanuelle Jal<sup>2</sup>, Jan Lüning<sup>3</sup>, Nicolas Jaouen<sup>4</sup>, Zhensheng Tao<sup>5</sup>, Andrius Baltuška<sup>6</sup>, François Légaré<sup>1</sup> et Guangyu Fan<sup>1</sup>

<sup>1</sup>INRS-EMT, 1650 boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec, Canada J3X1P7

<sup>2</sup>CNRS, Sorbonne Université, 75005 Paris, France

<sup>3</sup>Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie, Hahn-Meitner-Platz 1, 14109 Berlin, Allemagne

<sup>4</sup>Synchrotron SOLEIL, L'Orme des Merisiers, 91192 Gif-sur-Yvette, France

<sup>5</sup>State Key Laboratory of Surface Physics, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433, Chine

<sup>6</sup>Photonics Institute, Vienna University of Technology, Gußhausstrasse 27-387, A-1040 Vienne, Autriche

#### **Publication :**

Article publié le 30 juin 2021 dans la revue Advanced Photonics Research, volume 2, numéro 2100113.

DOI : 10.1002/adpr.202100113

#### **Contribution des auteurs :**

Katherine Légaré a été chargée de l'implémentation du montage expérimental et de l'acquisition de données. Elle a également participé au choix des paramètres expérimentaux à utiliser. De plus, elle a été chargée de l'analyse des données et de la rédaction du manuscrit.

Reza Safaei a fourni son expertise sur les états solitons multidimensionnels (MDSS). Son aide a

permis de définir les paramètres à utiliser pour générer des impulsions laser optimales pour la génération d'harmoniques.

Guillaume Barrette et Loïc Arias ont participé à l'implémentation du montage et à l'acquisition de données.

Philippe Lassonde, Heide Ibrahim et Zhensheng Tao ont offert leur support pour la rédaction.

Boris Vodungbo, Emmanuelle Jal et Jan Lüning ont fourni l'échantillon magnétique, qui a été caractérisé par Nicolas Jaouen. Tous ont également offert leur support à la rédaction.

Andrius Baltuška a été le superviseur de Guangyu Fan.

François Légaré a élaboré le projet.

Guangyu Fan a participé à l'élaboration du projet et à l'acquisition de données. Il a aussi pris part à l'analyse des résultats et à la rédaction.

#### **Lien entre l'article précédent et le suivant :**

Les résultats expérimentaux présentés dans l'article 2 ont permis de constater que la longueur d'onde d'excitation influence les dynamiques magnétiques ultrarapides dans le cobalt. Un modèle théorique fondé sur le modèle de Drude a également été développé afin de prédire comment les dynamiques devraient se comporter sur une gamme de longueur d'onde plus étendue. À partir de ce modèle et en accord avec les résultats expérimentaux, l'hypothèse selon laquelle la désaimantation transitoire serait plus efficace pour les longueurs d'onde plus grandes a été amenée. Finalement, une étude théorique de l'absorption de la lumière dans les différentes couches de l'échantillon a permis de constater qu'il serait préférable d'étudier la désaimantation ultrarapide excitée par des impulsions dans l'infrarouge proche et moyen pour mieux isoler l'effet de la longueur d'onde.

Pour continuer ce projet, il est donc nécessaire de générer des impulsions dans l'infrarouge moyen, ce qui peut être fait en utilisant les méthodes d'optique non-linéaire présentées à la section 3.1. Cependant, cette modification ajoute un degré de complexité au montage expérimental. Afin de s'assurer de pouvoir prendre des mesures de façon fiable et régulière, il est donc nécessaire d'optimiser la méthodologie expérimentale. Une avenue consiste à développer une nouvelle technique qui permettrait de générer un flux de photons résonants plus important et ainsi d'améliorer la source HHG. L'article présenté dans ce chapitre propose d'ajuster les caractéristiques des impulsions laser afin qu'elles soient optimales pour pomper la HHG et générer les photons résonants. Pour ce faire, les impulsions laser sont couplées à de multiples

modes d'une fibre à cœur creux remplie de gaz moléculaire dans laquelle différents effets non-linéaires se produisent.



## 6.1 Abstract

The use of ultrashort laser pulses with long wavelengths as drivers is a relevant strategy for scaling high harmonic generation (HHG) to higher photon energies. Here, stimulated Raman scattering enhanced by the formation of multidimensional solitary states in a molecular gas-filled hollow-core fiber as the mechanism to produce a versatile HHG driver is reported on. This recently discovered method allows to red shift and to compress conventional subpicosecond laser pulses with a simple experimental apparatus, ultimately increasing the generated photon energy, while assuring a high photon flux. The adaptability, simplicity, and stability of this method make it attractive for tailoring HHG sources to individual applications at specific photon energies. Measurements of resonant magnetic scattering in a cobalt/platinum multilayer sample are presented as a demonstration of the relevance of this approach for photon-hungry applications in the extreme ultraviolet.

## 6.2 Introduction

Over the past decade, the development of large-scale X-ray facilities delivering ultrashort pulses able to probe ultrafast phenomena in matter with high spatial and temporal resolutions has been continuously motivated by their rich potential for fundamental and applied science in multiple fields, including physics, chemistry, and biology [247]. In parallel, intense research activities have been pursued to develop compact X-ray sources based on nonlinear and relativistic laser-matter interactions such as hard X-ray radiation from laser wakefield electron acceleration [248,249], incoherent hard X-ray plasma sources [250], and high harmonic generation (HHG) from laser-ablated plumes [251], plasma mirrors [252,253], and gases [254]. The HHG approach in gases is ideal to generate X-ray radiation spanning from the extreme ultraviolet (XUV) to the soft X-rays with pulse durations down to 43 attoseconds [255].

Along with the development of HHG, attosecond science has emerged as a vibrant research field to observe and control electronic dynamics in atoms [256], molecules [257], and solids [258]. In addition to its unique temporal resolution, HHG enables the generation of supercontinua, covering specific absorption edges of different materials, which can be used to track dynamics with element specificity [259–261]. Furthermore, HHG radiation with its high spatial coherence has become a practical tool for high spatial resolution imaging of, for example, nanostructures in multi-element systems [178,219].

To facilitate such novel space- and element-dependent dynamic studies, the development of

advanced HHG methods with scalable flux at higher photon energy is still a subject of intense research. In this perspective, mainly four knobs, or degrees of freedom, are accessible to influence the maximum photon energy generated from the HHG process. They are evidenced by the cut-off equation,  $h\nu_{\text{cut-off}} = I_p + 3.17U_p$ , where  $h\nu_{\text{cut-off}}$  is the highest generated photon energy,  $I_p$  is the ionization potential of the generation medium, and  $U_p$  is the ponderomotive energy, which scales with the laser intensity and the square of the driving wavelength [147]. The first knob is the choice of the generation medium. Gases with a larger  $I_p$  can provide a higher cut-off, but suffer from a much lower single-atom conversion efficiency [262]. The second knob is the intensity of the driver. The cut-off may increase using more intense driving pulses; however, to drive HHG efficiently, the ionized fraction of the generation medium has to remain below a critical level. Therefore, beyond a certain medium-dependent saturation intensity, the cut-off cannot extend any further. The third knob is the duration of the driving pulses. With shorter pulses, the saturation intensity is reached at a higher field amplitude, consequently scaling the HHG cut-off favorably [263,264]. This effect is a strong motivation for the development of high-power few-cycle drivers, for instance, by the incorporation of advanced nonlinear compression techniques with state-of-the-art ytterbium lasers delivering relatively long pulses (subpicosecond) [265,266]. Finally, since the cut-off energy scales with the square of the driving wavelength, the fourth knob is the central wavelength of the driver. However, in the single-atom response, the generated photon flux decreases rapidly with increasing wavelength ( $\lambda^{-(5-6)}$ ) [149]. Therefore, to avoid loss in conversion efficiency, the optimal driving wavelength should remain as short as possible, while ensuring that the harmonic spectrum covers the target photon energy. So far, the most useful approach for extending the central wavelength of ultrashort laser pulses has been optical parametric amplification (OPA), which often requires complex stages and has a limited conversion efficiency. Furthermore, this nonlinear process is unsuitable for directly tuning the pump wavelength by small amounts due to the absorption of the long wavelength idler by the amplification crystal. For example, an OPA built with beta barium (BBO) crystals and pumped by a titanium-sapphire laser (Ti-Sa, 800 nm) can produce tunable pulses from 1100 to 2500 nm (signal + idler range), leaving a “gap” of 300 nm between the pump and the signal range [267].

Recently, nonlinear pulse compression via the stimulated Raman scattering (SRS) process in molecular gases has drawn attention as an alternative solution to generate pulses at slightly longer wavelengths than the driver. Various approaches based on SRS have been reported in gas cells [268,269], hollow-core photonic crystal fibers [270,271], and large-diameter hollow-core fibers (HCF) [17,265,266,272,273]. Particularly, in the study by Safaei *et al.* [17], we describe a

new regime of nonlinear propagation in HCFs that derives from the spatiotemporal nonlinear Raman enhancement observed with subpicosecond driver pulses. This mechanism allows for scaling the peak power by producing broadband, self-frequency shifted solitons driven by subpicosecond pulses. As these high-energy multidimensional solitary states (MDSS) exhibit a clean negative quadratic spectral phase, they are easily compressed to few-cycle durations by linear propagation in a simple piece of glass with positive dispersion. Therefore, by reshaping the spatiotemporal properties of the driver beam via the generation of highly stable multimode states, we propose a new route toward the generation of bright HHG.

In this work, MDSS pulses are exploited to extend the cut-off of HHG spectra, while maintaining a strong XUV photon flux. This is achieved without the use of OPAs and by keeping argon, an atom with a good HHG conversion efficiency due to its large recombination cross section, as the generation medium. To demonstrate experimentally the pertinence of our approach for space and element-dependent applications, the generated XUV beam is used to carry out X-ray resonant magnetic scattering (XRMS) measurements on a Co/Pt ferromagnet sample, a relevant prototype system for future spintronic devices [274]. The XRMS technique requires a high flux of photons near the M edge of cobalt at 60 eV, which is not readily accessible when driving high harmonics in argon with pulses delivered from a standard Ti-Sa laser system as the photon energy cut-off is typically below 50 eV [163]. Here, we demonstrate that by driving the HHG process with submillijoule red-shifted MDSS pulses, scattering images of the magnetic nanostructures in a Co/Pt ferromagnet sample can be resolved in a short exposure time ( $\approx 500$  laser shots), due to the high conversion efficiency of HHG in argon. A comparison with harmonics generated in neon, a gas with a higher  $I_p$ , from more energetic Ti-Sa driver pulses shows that the MDSS method is at least as effective to generate a high photon flux. We argue that the MDSS method offers global and technical advantages that make it attractive for such photon-demanding element specific applications.

### **6.3 Multidimensional Solitary States**

The experiments were conducted at the Advanced Laser Light Source (ALLS) facility. To obtain a high flux of 60 eV photons from the Ti-Sa laser system, the MDSS process enabled to shift the central wavelength to around 960 nm. This wavelength was chosen to ensure that the cut-off would be  $\approx 15$  eV above the desired photon energy, thereby increasing the stability of the light source around 60 eV and loosening the optimization constraints. Indeed, as the HHG stability near the cut-off energy is highly sensitive to the characteristics of the driver pulses, it is preferable

to work with photon energies that are in the plateau region of the HHG spectra.

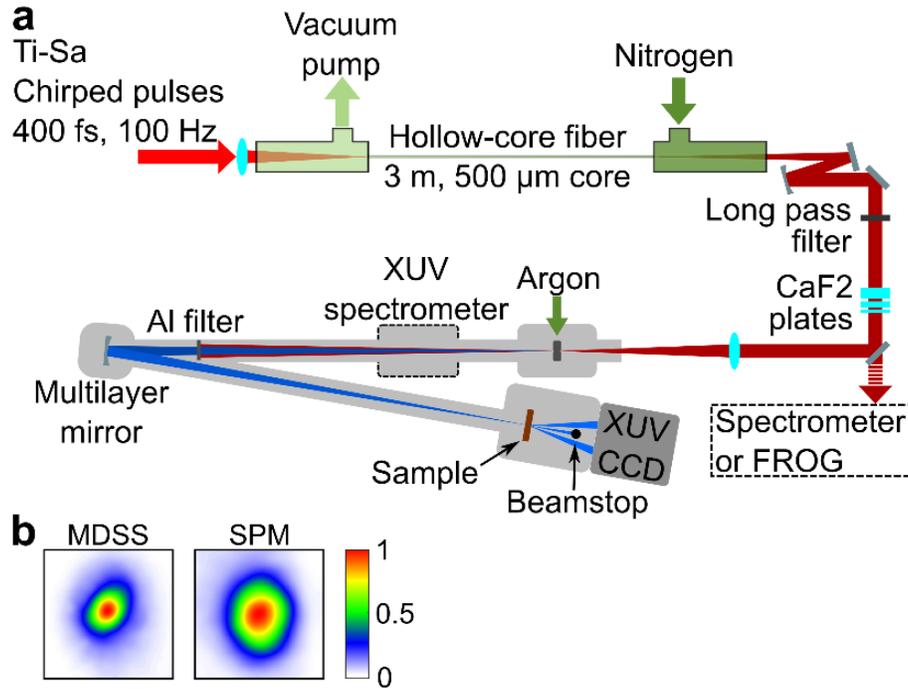


Figure 6.1 Experimental setup

(a) Experimental setup. The pulses at the HCF output are collimated with a concave silver mirror with a focal length of 3.5 m, compressed by linear propagation in CaF<sub>2</sub> plates and characterized with a spectrometer and SHG-FROG. Alternatively, the beam is focused in an 8 mm-long cell filled with argon for HHG. After generation, the HHG spectra can either be characterized by a XUV spectrometer or refocused to the magnetic sample, where XRMS measurements are carried out. In the latter case, a concave multilayer mirror is used to select a narrow bandwidth around the desired photon energy ( $60 \pm 2.5$  eV) and the fundamental beam is blocked by two 200 nm-thick aluminum filters. The XUV beam is then transmitted through a Co/Pt multilayer sample with out-of-plane magnetic anisotropy. The directly transmitted beam is blocked by a beamstop, whereas the scattered photons are captured by a CCD camera. (b) Beam profile of the MDSS and SPM beams after collimation. The MDSS beam diameter is 9.0 mm at  $1/e^2$ , whereas the SPM beam diameter is 11.3 mm, a size difference that is attributed to the presence of HOMs in the MDSS beam.

A layout of the experimental setup is shown in Figure 6.1(a). The output pulses of the Ti-Sa laser system (40 fs, 8 mJ pulses with a repetition rate of 100 Hz) are first stretched to 400 fs by displacing the compressor gratings to introduce a positive chirp. Then, the beam is focused with a 3 m focal length lens and coupled to a 3 m-long stretched HCF with a core diameter of 500  $\mu\text{m}$  (few-cycle Inc.). The reduced intensity from the long pulse duration allows to couple higher pulse energies into the HCF. Still, the fiber is filled with a differential pressure of N<sub>2</sub> to avoid any ionization or self-focusing at the fiber input, which is pumped in a primary vacuum. As described in the study by Safaei *et al.* [17], near the fiber input, the beam is coupled into high-order modes (HOMs) by self-focusing, resulting in intermodal four-wave mixing (IFWM) and the generation of new frequencies. Once the bandwidth of the newly generated frequencies covers the Raman gain, intermodal SRS starts to occur. The nonlinearity from these intermodal processes balances

diffraction and dispersion, resulting in highly spatiotemporally localized solitary (MDSS) pulses. At the HCF output, the MDSS pulses comprised in the red-shifted part of the spectra exhibit a stable self-trapped beam. As shown in Figure 6.1(b), this beam is smaller than a beam generated from the self-phase modulation (SPM) process in the same HCF filled with an atomic gas. We assume that this is due to the presence of HOMs in the MDSS pulses. In these experimental conditions, the typical fiber transmission drops from 50% to 35% when the gas is present due to the energy transfer to the molecular system in the frequency down-conversion process of SRS and the attenuation of HOMs during propagation. At the fiber output, submillijoule MDSS pulses are formed in the long-wavelength part of the spectra. It should be noted that the overall efficiency of the MDSS process is tied to a combination of several parameters such as the characteristics of the input pulses and the specifications of the HCF. While these parameters were chosen to maximize the output energy with minimal consideration for the MDSS conversion efficiency in this work, superior outcomes have already been demonstrated [17].

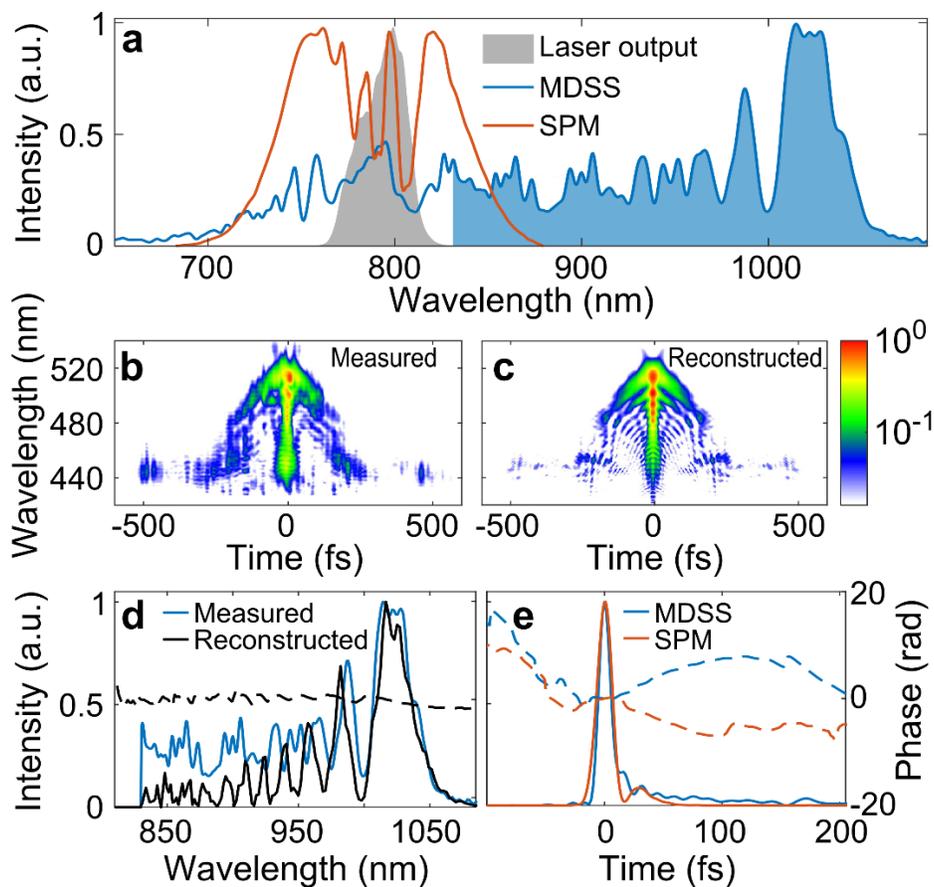


Figure 6.2 MDSS pulses

(a) Normalized Ti-Sa output spectrum (gray area), spectrum broadened by the MDSS process in nitrogen (blue), and spectrum broadened by the SPM process in neon (red). The blue shaded area denotes the part of the

spectrum selected for compression by the long-pass filter. b) Measured and c) reconstructed spectrograms for MDSS pulses. d) In black, spectral intensity profile (solid lines, left axis) and phase (dashed line, right axis) for the reconstructed MDSS pulses including the added spectral phase caused by their propagation through CaF<sub>2</sub> plates. In blue, measured spectral intensity profile. The disparity between the measured and reconstructed spectra for short wavelengths is due to the presence of uncompressed HOMs in this spectral region and to the limited dynamic range of the SHG-FROG. e) Retrieved temporal intensity profile (solid lines, left axis) and phase (dashed lines, right axis) of the shortest MDSS pulses (blue) and SPM pulses (red). The retrieved duration of the pulses at full width half maximum is 11.7 and 14.8 fs, respectively.

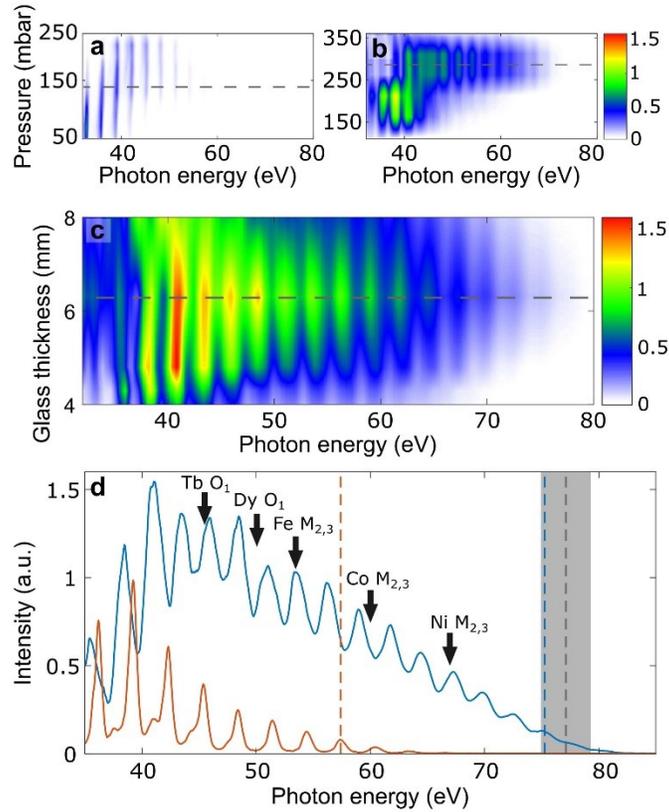
As shown in Figure 6.2(a), the N<sub>2</sub> pressure in the HCF is adjusted to 1450 mbar such that the output spectra extend up to 1050 nm. The red-shifted part of the spectra is selected by a long-pass filter (>830 nm), setting the central wavelength at 958 nm (center of mass). In the same figure, the spectra of SPM pulses with a bandwidth capable of supporting few-cycle pulse durations are shown. Note the contrast between the symmetric SPM spectra and the strong asymmetry of the red-shifted MDSS spectra. Here, the SPM pulses serve to make a comparison between HHG driven by red-shifted MDSS pulses and by ultrashort pulses centered at 800 nm. The SPM pulses are obtained by replacing nitrogen with neon and propagating 2 mJ, 40 fs pulses into the HCF. At the HCF output, the beam is either directed toward spectral and temporal characterization devices (respectively Avantes AvaSpec-ULS2048XL and home-built second-harmonic generation frequency resolved optical gating – SHG-FROG) or to the vacuum chamber where HHG is conducted in a pressure controlled argon-filled gas cell. Following its generation, the XUV radiation is characterized by a XUV spectrometer based on a 1200 gr mm<sup>-1</sup> diffraction grating and a microchannel plate detector. Alternatively, the grating can be moved out of the beam path, in which case the remaining fundamental photons are blocked by an aluminum filter. The XUV beam is transmitted and 60 eV photons comprised in a 5 eV bandwidth are selected by a multilayer mirror (Ultrafast Innovations GmbH). Then, the XUV beam is sent directly to a water-cooled charge-coupled device (CCD) camera (PIXIS-XO, Princeton Instruments) for characterization of the HHG flux, which is estimated by converting the total counts measured by the camera in a given exposure time to a number of photons by taking into account the quantum efficiency and conversion gain of the CCD camera, the reflectivity of the multilayer mirror, and the transmissivity of the aluminum filters. To carry out X RMS measurements, the beam is focused by the same multilayer mirror onto a magnetic sample placed in front of the camera.

One attractive feature of MDSS is that, in the normal dispersion regime, the pulses can be compressed directly with a simple piece of glass with positive dispersion due to the natural formation of negative chirp through intermodal interactions. Here, to compress the MDSS pulses, CaF<sub>2</sub> plates were chosen due to the low third-order dispersion coefficient of this material. Propagation through air and through the input window of the HHG chamber also contributes to compensating the negative quadratic phase of the pulses. To characterize the pulse duration,

SHG-FROG measurements of the uncompressed field were taken and propagation through  $\text{CaF}_2$  plates was numerically simulated by the addition of the spectral phase induced by the dispersive material. The measured and reconstructed SHG-FROG traces corresponding to the shortest attainable pulse duration of  $\sim 12$  fs are shown in Figure 6.2(b),(c), along with the retrieved spectral and temporal profiles and phases in Figure 6.2(d),(e). The retrieved temporal shape of the SPM pulses compressed to a similar duration by a chirped mirror (HD1401, UltraFast Innovations GmbH) is also shown in Figure 6.2(e). As SPM pulses are known for their clean spatial profile and monotonic spectral phase, they serve here as a reference of high temporal quality [275]. Regardless of the long, low-intensity pedestal displayed by the MDSS pulses, as much as 65% of the total energy is contained in the main pulses, which makes them suitable as efficient drivers for the HHG process, as shown in the following sections.

#### 6.4 High Harmonic Generation

Because HHG is a highly nonlinear process, the cut-off and the XUV flux are very sensitive to the temporal shape of the driving pulses and consequently are an excellent gauge of their spatiotemporal quality. Here, the measurement of HHG spectra is used to compare the performance of the compression mechanism of MDSS pulses to that of standard SPM pulses. Experimentally, both pulses are focused by a  $\text{CaF}_2$  lens with a focal length of 75 cm in an 8 mm-long gas cell filled with argon, ensuring that the length of the generation medium exceeds the absorption length for 60 eV photons in argon by at least three times in the operation pressure range ( $L_{\text{abs}} = 1.4$  mm for a pressure of 260 mbar) [166]. The argon pressure as well as the position of the focus with respect to the gas cell are adjusted to optimize HHG phase matching conditions (Figure 6.3(a),(b)). For the MDSS pulses, the cut-off is maximized by inserting a few millimeters of  $\text{CaF}_2$  in the beam path (Figure 6.3(c)), which is consistent as a large part of the pulse energy in the 830-1050 nm bandwidth is compressed by propagating through materials with positive linear dispersion.



**Figure 6.3 HHG spectra**

Harmonic spectra generated by compressed 800  $\mu\text{J}$  (a) SPM pulses and (b) MDSS pulses for different argon pressures in the generation chamber to show optimal phase-matching conditions. (c) Harmonic spectra generated by MDSS pulses obtained for the optimal pressure and different  $\text{CaF}_2$  thicknesses in the beam path. The highest cut-off, which indicates optimal compression, is obtained with glass thicknesses between 5 and 7 mm. Due to limitations in the geometry of the experimental vacuum chambers, some reabsorption occurs for low photon energies ( $<40$  eV), which explains the missing harmonics. The dashed horizontal lines in (a–c) show the argon pressure and glass thickness conditions for the spectra presented in (d). d) Harmonic spectra driven by  $\sim 12$  fs, 800  $\mu\text{J}$  MDSS pulses (blue) and by  $\sim 15$  fs, 800  $\mu\text{J}$  SPM pulses compressed by chirped mirrors (red) for the optimized argon pressure and glass thickness. The vertical dashed lines show the experimental position of the cut-off for each case. The dashed gray line shows the expected cut-off of the MDSS-driven HHG based on the cut-off equation and the shadowed area represents an error bar the width of one harmonic on this value. Arrows indicate positions of absorption edges of relevant elements.

To demonstrate the spatiotemporal quality of the compressed pulses, the cut-off energies of HHG driven by MDSS pulses and SPM pulses are compared. As the pulses have similar durations, the cut-off should be influenced by the different central wavelengths only. In agreement with the cut-off equation, it is then expected that the highest photon energy should scale quadratically with the wavelength, as stated by the three-step model [147]. In both cases, a driver pulse energy of 800  $\mu\text{J}$  is chosen, which implies a higher intensity in the generation medium for the SPM beam (see Figure 6.1(b)). Indeed, the diameter of the focal spot of the SPM pulses (at  $1/e^2$ ) is 79  $\mu\text{m}$ , whereas it is 135  $\mu\text{m}$  for the MDSS pulses. For SPM, the chosen pulse energy ensures saturation of the HHG process and maximization of the cut-off photon energy. For MDSS pulses, saturation

is approached only for well-compressed pulses of high peak intensities, making the effects of the compression apparent in the HHG spectra. As scanning the intensity of the MDSS pulses in the focal spot is not possible in this setup without affecting the characteristics of the pulses, saturation could not be ensured. However, a lower cut-off would be expected in the case of unsaturated HHG. The results are shown in Figure 6.3(d). The cut-off energy, defined as the first harmonic for which the intensity drops below 10% of the highest harmonic intensity, falls at 57.7 eV for the SPM pulses. According to the cut-off equation in argon ( $I_p = 15.76$  eV), the cut-off energy expected with the red-shifted MDSS pulses is  $h\nu_{\text{MDSS}} = I_p + (h\nu_{\text{SPM}} - I_p)\lambda_{\text{MDSS}}^2/\lambda_{\text{SPM}}^2 = 77.3$  eV. Considering a spacing of 2.6 eV between the discrete harmonics, the experimental value of 75.2 eV falls less than one harmonic away from the expected cut-off. This result attests to the high spatiotemporal quality of the MDSS pulses and indicates that the weak pedestal is not detrimental to efficient generation of high harmonics. For the 47<sup>th</sup> harmonic, nearest to the  $M_{2,3}$ -edge of cobalt, the energy conversion efficiency is  $3 \times 10^{-7}$ , which yields a photon flux of  $3 \times 10^7$  photons/pulse. It should be noted that other generation configurations have been shown to reach comparable or greater conversion efficiencies in this spectral range [169,276,277]. In particular, in the study by Kim *et al.* [276], a conversion efficiency of  $5 \times 10^{-5}$  has been reported from a two-color scheme using helium. Furthermore, harmonics generated in argon near 40 eV from 800 nm drivers have been reported to reach conversion efficiencies between  $5 \times 10^{-7}$  and  $10^{-5}$  [166,167,278]. However, a substantial reduction in efficiency is expected for the generation of 60 eV photons from a 960 nm driver due to the unfavorable single-atom response for long driver wavelengths which cannot be entirely compensated by macroscopic phase matching [154]. In general, although such photon flux is obviously orders of magnitude lower than what can be produced at large facilities such as free-electron lasers [279], it has the benefits of being generated using a table-top laser in a small-scale laboratory and of being intrinsically free of temporal jitter, an important asset for time-resolved experiments.

To demonstrate the potential of MDSS-driven HHG for XUV applications, XRMS measurements are carried out on a Co/Pt multilayer sample. XRMS occurs in materials that present a magnetic structure of domains with magnetization along the direction of light propagation. Light scatters on those magnetic structures when the photon energy is tuned to a magnetically dichroic absorption edge [136]. In the far field of the XUV beam, after its transmission through the sample, a scattering pattern of the magnetic domain network is formed. This method is now widely used to track ultrafast magnetization dynamics [50,280], but the low scattering efficiency ( $\sim 10^{-6}$ ) means that a high photon flux is required to obtain a signal. Here, as the magnetic domain network of the

sample is prepared such that the domains align in parallel stripes (Figure 6.4(b)), the scattering pattern is composed of two spots, whose separation is determined by the average domain size and whose spread depends on the domains' deviations in size and orientation (Figure 6.4(a)). The peaks become visible after just a few seconds ( $\sim 5$  s) of exposure time as a result of the high photon flux. Previously, the same Ti-Sa laser system (prior to the HCF) has been used to generate a comparable flux at 60 eV ( $2 \times 10^7$  photons/pulse) by driving the HHG in neon using a loose focusing geometry and 40 fs pulses [14]. In those experimental conditions, the required driver pulse energy was one order of magnitude larger (13 mJ) than that with the MDSS approach presented here. In addition, the longer driver pulse duration resulted in inferior temporal resolution for that XUV source, making it less desirable for the study of ultrafast dynamics. These results suggest that, for many applications, using MDSS pulses as drivers of the HHG process represents a potential benefit as it allows reaching higher photon energies in media with good XUV conversion efficiencies, while simultaneously increasing the temporal resolution of the XUV source. Moreover, given that the manipulation of high-energy pulses is likely to introduce technical challenges, the implementation of the MDSS process is overall quite convenient. Indeed, the intermodal SRS process is seeded by long pulses with relatively low peak intensity and results in sub-millijoule MDSS pulses. While reflective optics are required when generating harmonics in neon from 13 mJ pulses, the MDSS pulses can be focused in the HHG chamber with a regular lens. Furthermore, separating the harmonic beam from the driver is much easier in the case of a low-energy MDSS driver as the thin aluminum filters used to reject the infrared are rather delicate. Alternatively, generating similarly red-shifted, millijoule-level ultrashort pulses with an OPA system would not be straightforward. It would require multiple stages of nonlinear interactions, for example, by first generating pulses near 1920 nm before frequency doubling them, and then an additional compression stage would be necessary. In contrast, the MDSS approach can create ultrashort red-shifted pulses with a tunable bandwidth in a single stage and with a simple apparatus.

Figure 6.4(c) shows the measured intensity in the scattering pattern over 50 min. A standard deviation of 7% is observed along with a small long-term drift (5% loss). As no significant change was observed in the spectra or intensity of the MDSS pulses over the same period of time, it is likely that much of the instability is due to the long, uncovered propagation path in the air ( $\sim 7$ m) before the HHG chamber. Therefore, the implementation of a beam-pointing feedback loop would be sufficient to avoid such instability. In an environment with controlled temperature and humidity, this source is expected to reliably operate for many hours or even days with minimal adjustments, allowing for long acquisitions of data with low signal-to-noise ratios and supporting a move toward

table-top time-resolved experiments with high long-term stability requirements in the XUV.

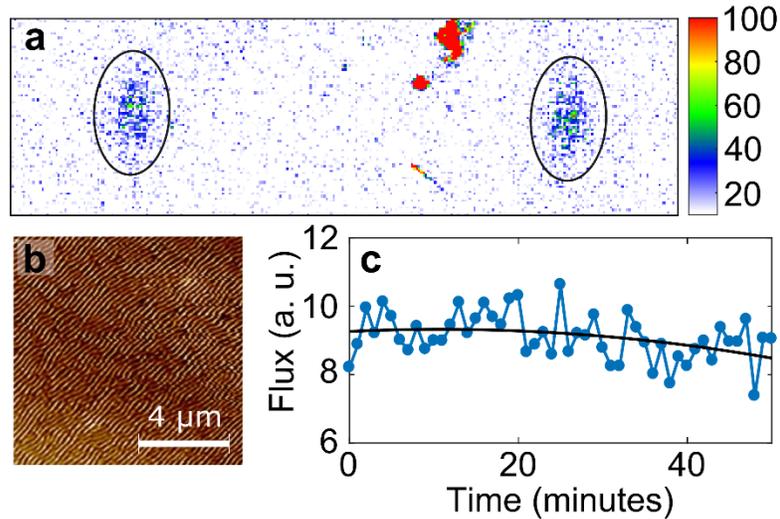


Figure 6.4 XRMS results

(a) Raw XRMS image after 5 s of exposure. The two spots highlighted by black ellipses correspond to the scattering pattern expected from the sample's magnetic domain network [136]. The bright, red regions are residual background photons that were not blocked by the sample or the beamstop. (b) Magnetic force microscopy image of a  $10 \times 10 \mu\text{m}$  region of the sample showing its magnetic domain network. The sample composition is Ta 3 nm/Pt 2 nm/[Co 0.6 nm/Pt 0.8 nm] $\times 20$ /Al 3 nm. (c) Stability of the XRMS signal over 50 min. One XRMS image with an exposure time of 20 s is recorded every minute. The blue points represent intensity in the scattered peaks for each image. The black line serves to guide the eye. The standard deviation is 7% of the average signal and between the first and the last 5 points, the signal decreased by 5%, which is due to a slow drift in our non-stabilized beam pointing.

## 6.5 Conclusion

In conclusion, we show that the nonlinear Raman process enhanced by the formation of MDSS pulses can be a powerful driver for HHG. The spatiotemporal quality of the MDSS pulse is verified by comparing the cut-off energy obtained from harmonics generated with MDSS pulses and SPM pulses. Furthermore, the convenience of this method for photon-hungry applications in the XUV is demonstrated through resonant magnetic scattering measurements on a Co/Pt multilayer, a valuable technique for studies of spatially resolved ultrafast magnetic dynamics that requires a high photon flux due to its low efficiency. Ultimately, driving HHG with compressed MDSS pulses is attractive for many applications that benefit from a slight increase in the cut-off energy of the XUV spectrum, while keeping a strong photon flux and a good long-term stability and while avoiding the technical challenges related to using high energy drivers. In contrast to OPAs, MDSS pulses are generated with a simple scheme and are not limited to the generation of long wavelengths; they can be used to induce a small red shift to the driver in a single stage, while simultaneously compressing the pulses. Consequently, our approach is especially attractive for

state-of-the-art high-power Ytterbium laser systems with long pulse duration. In addition, because the central wavelength of the MDSS pulses can be modified with ease through the control of the gas pressure in the fiber, this method is versatile and can readily be adapted to different applications. More research is required to achieve a thorough understanding of the capabilities and limitations of the MDSS process. For example, the duration, intensity, and wavelength of the input pulses along with the fiber parameters presumably play a role in the extension of the spectrum and in the conversion efficiency of the process. As such, this method has the potential to improve both efficiency and in reaching longer wavelengths. Eventually, it could be used, for example, as a spatiotemporal engineered source for the generation of photons in the spectral region of the water window (280–530 eV). Despite significant advances [281], the generation of ultrashort pulses in the water window and beyond remains challenging. Thus, the extension of MDSS Raman shifting into the mid-infrared could significantly extend their utility, and we are confident that such femtosecond X-ray sources derived from ultrafast lasers will be major players in the landscape of X-ray sources available to the scientific community.

## **6.6 Acknowledgments**

K.L. acknowledges financial support from the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC) Ph.D. scholarship program. R.S. acknowledges financial support from the Fonds de Recherche du Québec sur la Nature et les Technologies (FRQNT) Ph.D. scholarship program. G.B. acknowledges financial support from the NSERC and FRQNT undergraduate scholarship programs. The research received funding from the Canada Foundation for Innovation (CFI), the Ministère de l'Économie et de l'Innovation du Québec, the NSERC, and the FRQNT.

## 7 ARTICLE 4 – ANALYSE DE MONTAGES MOKE

---

### **Analytic description and optimization of magneto-optical Kerr setups with photoelastic modulation**

Description analytique et optimisation de montages Kerr magnéto-optiques avec modulation photo-élastique

#### **Auteurs :**

Katherine Légaré<sup>1</sup>, Valentin Chardonnet<sup>2</sup>, Ivette Bermúdez Macias<sup>3</sup>, Marcel Hennes<sup>2</sup>, Renaud Delaunay<sup>2</sup>, Philippe Lassonde<sup>1</sup>, François Légaré<sup>1</sup>, Guillaume Lambert<sup>4</sup>, Emmanuelle Jal<sup>2</sup> and Boris Vodungbo<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institut National de la Recherche Scientifique, Centre Énergie Matériaux Télécommunications (INRS-EMT), 1650 boulevard Lionel-Boulet, J3X1P7, Varennes, Québec, Canada

<sup>2</sup>Sorbonne Université, CNRS, Laboratoire de Chimie Physique – Matière et Rayonnement, LCPMR, 75005, Paris, France

<sup>3</sup>Deutsches Elektronen-Synchrotron - DESY Notkestraße 85, 22607 Hambourg, Allemagne

<sup>4</sup>Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA Paris, CNRS, École Polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, 828 boulevard des Maréchaux, Palaiseau Cedex 91762, France

#### **Titre de la revue ou de l'ouvrage :**

Article publié le 6 juin 2022 dans la revue Review of Scientific Instruments, volume 93, numéro 7, page 073001.

DOI : 10.1063/5.0088610

Reproduit de Légaré *et al.*, Review of Scientific Instruments 93, p. 073001 (2022), DOI : 10.1063/5.0088610, avec l'autorisation de AIP Publishing.

#### **Contribution des auteurs :**

Katherine Légaré a été mise en charge de l'analyse théorique, de l'interprétation des résultats théoriques et expérimentaux et de la rédaction du manuscrit. Elle a également participé à la définition des mesures expérimentales à compléter, et elle a collaboré à la création de l'échantillon utilisé pour les mesures statiques.

Les mesures MOKE statiques ont été effectuées par Valentin Chardonnet, Emmanuelle Jal et

Boris Vodungbo avec l'assistance de Renaud Delaunay. Valentin Chardonnet a également participé à la création de l'échantillon.

Le montage MOKE dynamique a été implémenté par Ivette Bermúdez Macias et Boris Vodungbo avec l'assistance d'Emmanuelle Jal. Marcel Hennes, Boris Vodungbo et Guillaume Lambert ont pris les mesures et les ont analysées. Guillaume Lambert a été le responsable du laser et de la salle Corail du LOA où les manipulations ont eu lieu.

Philippe Lassonde, Emmanuelle Jal et Boris Vodungbo ont offert leur support à la rédaction.

François Légaré a supervisé Katherine Légaré.

Le projet a été élaboré et supervisé par Emmanuelle Jal et Boris Vodungbo.

### **Lien entre les articles précédents et le suivant :**

Dans les trois articles présentés jusqu'ici, l'aimantation est sondée par diffusion résonante magnétique de rayons X. Bien que cette méthode présente de nombreux avantages, elle demeure complexe et requiert une source intense de photons dans l'ultraviolet extrême. Pour pouvoir faire des mesures de la désaimantation ultrarapide en utilisant des impulsions dans l'infrarouge moyen, il est donc préférable de simplifier la méthodologie. Par contre, tel que démontré dans l'article précédent (article 3), il n'a pas été possible d'améliorer significativement les performances de la source HHG pour compenser l'ajout de complexité causé par la génération d'impulsions de pompe dans l'infrarouge moyen. Une autre avenue doit donc être envisagée.

L'effet Kerr magnéto-optique offre une méthode simple de caractériser l'aimantation dans un matériau. En effet, il peut être implémenté à partir d'impulsions de sondes dans le visible ou le proche infrarouge, qui sont facilement accessibles à partir d'un laser titane-saphir, et ne requiert donc pas de montage sous vide. Puisque le signal MOKE est faible, le montage doit tout de même être optimisé. Dans l'article présenté dans ce chapitre, une analyse théorique des différentes configurations possibles du système de détection d'un montage MOKE est faite. Un exemple expérimental de MOKE résolu en temps est également présenté.

## 7.1 Abstract

Instruments based on the magneto-optical Kerr effect are routinely used to probe surface magnetic properties. These tools rely on the characterization of the polarization state of reflected light from the sample to collect information on its magnetization. Here, we present a theoretical optimization of common setups based on the magneto-optical Kerr effect. A detection scheme based on a simple analyzer and photodetector and one made from a polarizing beam splitter and balanced photodetectors are considered. The effect of including a photoelastic modulator (PEM) and a lock-in amplifier to detect the signal at harmonics of the modulating frequency is studied. Jones formalism is used to derive general expressions that link the intensity of the measured signal to the magneto-optical Fresnel reflection coefficients for any orientation of the polarizing optical components. Optimal configurations are then defined as those that allow measuring the Kerr rotation and ellipticity while minimizing nonmagnetic contributions from the diagonal Fresnel coefficients in order to improve the signal-to-noise ratio (SNR). The expressions show that with the PEM, setups based on polarizing beam splitters inherently offer a twofold higher signal than commonly used analyzers, and the experimental results confirm that the SNR is improved by more than 150%. Furthermore, we find that while all proposed detection schemes measure Kerr effects, only those with polarizing beam splitters allow measuring the Kerr rotation directly when no modulator is included. This accommodates, for instance, time-resolved measurements at relatively low laser pulse repetition rates. Ultrafast demagnetization measurements are presented as an example of such applications.

## 7.2 Introduction

The magneto-optical Kerr effect (MOKE) [107], which describes the change in the polarization and intensity of light upon reflection on a magnetic medium, has proven a valuable tool to probe the magnetic properties of material surfaces and thin films. Due to the simplicity of implementation of the technique, its advantageous temporal and spatial resolution [282], its high sensitivity down to the monolayer [283], and the possibility to resolve thin film layers in complex structures [284,285], the MOKE has been widely used for characterizing magnetic samples. It has proven to be useful in many fields, including micromagnetics [286,287], data recording technologies [288], and spintronics [289]. This method has also been applied to track the magnetic dynamics of solid-state samples in the context of ultrafast time-resolved experiments [7,10].

Several different experimental setups have been proposed to detect Kerr effects. In many cases, the measured signal is merely related to the Kerr rotation of the polarization, which is commonly assumed to be directly proportional to the magnetization [108]. However, in some contexts, a complete characterization of the final polarization is essential to gather an accurate understanding of the magnetic state of the system [290,291]. In particular, in the ultrafast magnetism community, research is ongoing to untangle the magnetic dynamics from charge dynamics, which may also affect the signal when the electronic system is strongly out of equilibrium [37,38,114]. In this prospect, studies have shown that both the Kerr rotation and the Kerr ellipticity must be retrieved in order to relate the measurement to the magnetization as each of these quantities alone offers incomplete information [97,116,117]. This is not possible with every MOKE detection scheme. For example, in the simple case where the magnetic sample is placed between two crossed polarizers, the measured signal corresponds to the intensity that is transferred to the orthogonal polarization component through Kerr effects. In this case, the signal simultaneously originates from the rotation of the polarization and from variations in the ellipticity, and it is not possible to decouple these contributions. In the following, we show that amendments to this detection scheme allow for direct, independent measurements of these quantities.

In magnetic materials, the presence of magnetization induces optical anisotropy, which is expressed by a dielectric tensor with complex off-diagonal elements [292]. Upon reflection of polarized light onto such materials, the interaction between the electromagnetic field and the electrons leads to changes in the polarization state, which can be described by a complex Fresnel reflection matrix with non-zero off-diagonal elements [293,294]. Using Jones matrices as a mathematical tool to describe the evolution of the polarization of the beam through the optical components of the experimental setup, it is possible to relate the measured signal to these Fresnel coefficients. This approach aims not only to ensure the independent measurement of Kerr rotation and ellipticity, which can also be defined from the Fresnel coefficients, but also to identify configurations with an optimal signal-to-noise ratio (SNR) by minimizing the nonmagnetic background brought by the contribution of the diagonal components of the Fresnel matrix.

Here, Jones formalism is used to study two common MOKE setups. The first setup relies on a simple polarizer to analyze changes in the polarization of the reflected beam. The second setup includes a half-waveplate and a polarizing beam splitter to simultaneously detect and eventually subtract the two orthogonal polarization components. In both cases, we also study the effect of adding a photoelastic modulator (PEM) and a lock-in amplifier to the detection scheme. This block is often included to reduce noise but can be inconvenient to use in conjunction with a pulsed laser

source with a low repetition rate. For each detection scheme, a general expression is derived, which describes the measured signal as a function of the Fresnel coefficients for all possible orientations of the polarizing optical elements. These expressions are then used to deduce optimal configurations in which the nonmagnetic contribution to the signal is canceled and configurations in which the signal is proportional to the Kerr rotation or ellipticity. Similar work, published by Polisetty et al. [295], has previously shown that for a detection scheme based on a simple polarizer and including a PEM, one optimal configuration is achieved by rotating the transmission axis of the analyzer by  $45^\circ$  with respect to the incident polarization, which is perpendicular to the plane of incidence (s-polarization). Indeed, this configuration maximizes the magnetic signal when reading the first or second harmonic of the modulating frequency. Here, we demonstrate from the more general equations that an equivalent configuration can be found for incident p-polarization (component lying in the plane of incidence). Furthermore, we establish that experimental setups based on a polarizing beam splitter offer a signal that is twice as large as setups based on analyzers and that the SNR scales accordingly. In addition, we find that when modulators and lock-in amplifiers are excluded, only the polarizing beam splitter setup allows for direct reading of the Kerr rotation and that it can also be adapted to measure the Kerr ellipticity. We show that this configuration is then suitable for pump-probe time-resolved experiments and that it can accommodate fast single-shot measurements. As an example, we apply it to the study of laser-induced ultrafast demagnetization in a Co/Pt multilayer sample. This article is organized into three parts: Sec. 7.3 describes the different detection schemes studied, Sec. 7.4 details how we used the Jones formalism to find the optimal MOKE configurations, and Sec. 7.5 shows the experimental confirmation of our theoretical optimization for static and time-resolved measurements.

### **7.3 Description of the detection schemes**

To detect changes in the polarization of a linearly polarized incident beam after reflection on the magnetic sample, some schemes rely on a simple polarizer followed by a photodetector [7,296–298]. Others exploit polarizing beam splitters to separate the reflected polarization components and subtract them [299,300]. Many experimental setups also include a modulator and a lock-in amplifier to improve the SNR [295,301,302], which is essential because Kerr effects are typically very small. The MOKE configurations studied in this work are presented in Figure 7.1(a). First, the laser beam passes through a polarizer before being focused by a lens onto the sample. Then, the reflected beam is recollimated by a second lens and optionally goes through a PEM before its polarization is finally analyzed. The effect of the PEM is to introduce a periodic phase shift

between the *s*- and *p*-polarization components of the beam. If the PEM is used, the collected signal is sent to a lock-in amplifier that only detects signals at harmonics of the modulating frequency, thereby reducing noise in the final measurement. In all configurations, the magnetic sample is placed in a magnetic field generated by an electromagnet so that a whole hysteresis curve can be measured.

The first MOKE setup studied in this work is the simple case where the polarization detection scheme consists of a mere analyzer followed by a photodetector. This configuration, used with the PEM and lock-in amplifier, will be termed the “modulator-analyzer setup” in the following [inset in Figure 7.1(a)]. In the second version of the setup presented here, the analyzer is replaced by a half-waveplate and a polarization beam splitter (PBS). The single photodetector is replaced by two balanced photodetectors. This way, instead of one vector component of the signal’s electric field being measured while the other is completely removed by the analyzer, the signal is split into its two orthogonal polarization components and both of them are detected. The output of the balanced photodetectors corresponds to the amplified difference between the two signals, leading to a theoretical twofold increase in the measured intensity compared to the analyzer schemes. In the following, this setup configuration will be termed the “modulator-PBS setup” [Figure 7.1(a)].

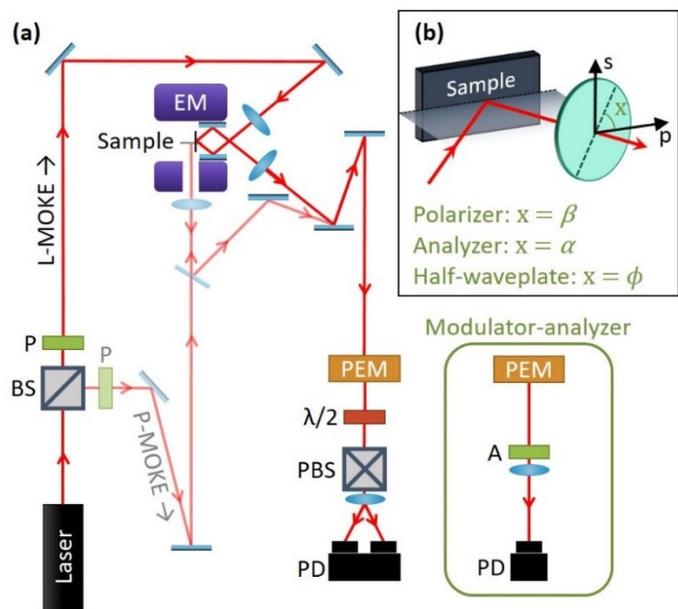


Figure 7.1 Experimental setup

(a) Sketch of the modulator-PBS MOKE setup. The equivalent modulator-analyzer detection scheme is shown in the inset. The bright path corresponds to a longitudinal MOKE setup, while the pale path corresponds to a polar MOKE setup. The components are the beam splitter (BS), polarizer (P), electromagnet (EM), photoelastic modulator (PEM), half-waveplate ( $\lambda/2$ ), analyzer (A), polarizing beam splitter (PBS), and photodetectors (PDs). The magnetic field is in the sample plane for the longitudinal MOKE and out-of-plane for the polar MOKE. (b) Definition of the orientation of the optical axis or transmission axis of each optical component with respect to the plane of incidence.

Conventionally, three different magneto-optical Kerr effects are identified, differing only in the relative orientation of the magnetization with respect to the plane of incidence and the surface of the sample. The polar, longitudinal, and transverse Kerr effects correspond to the cases in which the magnetization is perpendicular to the sample surface, parallel to the surface and to the plane of incidence, or parallel to the surface and perpendicular to the plane of incidence, respectively. It should be noted that this work pertains solely to the polar and longitudinal MOKE and that no conclusion has been drawn concerning the transverse Kerr effect, which yields variations in the reflected intensity rather than changes in the polarization state.

#### 7.4 Jones formalism

In Jones formalism, a polarization state is described by a two-element vector  $\mathbf{E} = \begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}$ , where  $E_p$  and  $E_s$  represent the proportion of the electric field in  $p$ - and  $s$ -polarizations, respectively. Each optical component of the setup can be described by a two by two transformation matrix that modifies this polarization state. For the MOKE setups, the initial polarization after the first polarizer is represented by the vector  $\mathbf{P} = \begin{bmatrix} \cos \beta \\ \sin \beta \end{bmatrix}$ . In the analyzer-based setups, the analyzer is a mere polarizer and is represented by the following matrix:

$$A = \begin{bmatrix} \cos^2 \alpha & \cos \alpha \sin \alpha \\ \cos \alpha \sin \alpha & \sin^2 \alpha \end{bmatrix}. \quad (7.1)$$

The matrix of the half-waveplate used in the PBS-based MOKE setups is

$$H = \begin{bmatrix} -i \cos(2\phi) & -i \sin(2\phi) \\ -i \sin(2\phi) & i \cos(2\phi) \end{bmatrix}. \quad (7.2)$$

The arguments  $\beta$ ,  $\alpha$  and  $\phi$  correspond to the angles between the optical axis or transmission axis of the component and the plane of incidence [Figure 7.1(b)]. For simplicity, we consider that the PBS is set to split the  $s$ - and  $p$ -polarization components of the beam. Thus, the PBS is not represented by a matrix. Instead, the vector components of the final polarization state are considered independently to simulate the separation of the  $s$ - and  $p$ -polarizations. The sample is represented by the corresponding magneto-optical Fresnel reflection matrix as follows [294]:

$$S = \begin{bmatrix} \tilde{r}_{pp} & \tilde{r}_{ps} \\ \tilde{r}_{sp} & \tilde{r}_{ss} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_{pp} e^{i\delta_{pp}} & r_{ps} e^{i\delta_{ps}} \\ r_{sp} e^{i\delta_{sp}} & r_{ss} e^{i\delta_{ss}} \end{bmatrix}, \quad (7.3)$$

where  $\tilde{r}_{kl}$  is the ratio of the component of the reflected electric field polarized along the  $k$  axis and the component of the incident electric field polarized along the  $l$  axis. Each complex Fresnel coefficient can be separated into the amplitude of the reflectivity  $r_{kl}$  and its phase  $\delta_{kl}$ . The

magnetic information is contained in the off-diagonal elements. Indeed, if these elements were equal to zero, there would be no change in the polarization state upon reflection on the magnetic sample. Hence, the complex Kerr angles are defined as  $\Theta_p = \frac{\tilde{r}_{sp}}{\tilde{r}_{pp}} = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} e^{i(\delta_{sp} - \delta_{pp})}$  and  $\Theta_s = \frac{\tilde{r}_{ps}}{\tilde{r}_{ss}} = \frac{r_{ps}}{r_{ss}} e^{i(\delta_{ps} - \delta_{ss})}$ . The real part of the complex Kerr angle can be associated with the Kerr rotation  $\theta_{s,p}$  while the imaginary part represents the Kerr ellipticity  $\varepsilon_{s,p}$ ,

$$\begin{aligned}\theta_s &= \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}), \\ \theta_p &= \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \cos(\delta_{sp} - \delta_{pp}), \\ \varepsilon_s &= \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss}), \\ \varepsilon_p &= \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \sin(\delta_{sp} - \delta_{pp}).\end{aligned}\tag{7.4}$$

The following matrix expresses the retardation  $\varphi = \varphi_0 \sin(\omega t)$  caused by the PEM:

$$O = \begin{bmatrix} e^{i\frac{\varphi}{2}} & 0 \\ 0 & e^{-i\frac{\varphi}{2}} \end{bmatrix}.\tag{7.5}$$

The elements of the matrix  $O$  can be expanded in a Fourier series using [303]

$$\begin{aligned}\cos \varphi &= J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) + \dots \\ \sin \varphi &= 2J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) + \dots\end{aligned}\tag{7.6}$$

where  $J_k(\varphi_0)$  is the Bessel function of harmonic order  $k$ . In this work, only a signal up to the second harmonic order was considered. After signal processing by the lock-in amplifier, it is possible to select only parts of the signal with a periodicity corresponding to the first or second harmonic of the modulating frequency. The Bessel functions for these harmonics are maximized when the phase  $\varphi_0$  is set to  $\varphi_0 = 1.885$  rad or  $\varphi_0 = 3.054$  rad, respectively. However, to reduce any possible noise caused by the zeroth-order terms, it is often useful to set  $\varphi_0 = 2.405$  rad instead, so that  $J_0(\varphi_0) = 0$ . With the matrices presented above, we present in the following simulations for both the modulator-analyzer and the modulator-PBS setups.

#### 7.4.1 Modulator-analyzer (M-A) setup

For the modulator-analyzer (M-A) setup, the final polarization state is given by the product of the matrices corresponding to the relevant optical components as follows:

$$\begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}^f = AOSP.\tag{7.7}$$

The intensity of the signal detected is  $I^{M-A} = |\mathbf{E}^f|^2 = |E_p|^2 + |E_s|^2$ . It is the sum of the static signal

$I_0^{M-A}$ , the first harmonic signal  $I_\omega^{M-A}$  and the second harmonic signal  $I_{2\omega}^{M-A}$ ,

$$\begin{aligned}
I_0^{M-A} = J_0(\varphi_0) & \left[ \cos^2 \beta \theta_p r_{pp}^2 + \sin^2 \beta \theta_s r_{ss}^2 \right. \\
& + \frac{1}{2} \sin(2\beta) r_{pp} r_{ss} \cos(\delta_{ss} - \delta_{pp}) \\
& + \left. \frac{1}{2} \sin(2\beta) r_{ps} r_{sp} \cos(\delta_{sp} - \delta_{ps}) \right] \sin(2\alpha) \\
& + \sin(2\beta) r_{pp} r_{ps} \cos(\delta_{ps} - \delta_{pp}) \cos^2 \alpha \\
& + \sin(2\beta) r_{ss} r_{sp} \cos(\delta_{sp} - \delta_{ss}) \sin^2 \alpha \\
& + \cos^2 \beta r_{pp}^2 \cos^2 \alpha + \sin^2 \beta r_{ps}^2 \cos^2 \alpha \\
& + \sin^2 \beta r_{ss}^2 \sin^2 \alpha + \cos^2 \beta r_{sp}^2 \sin^2 \alpha,
\end{aligned} \tag{7.8}$$

$$\begin{aligned}
I_\omega^{M-A} = J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) & \left[ 2 \cos^2 \beta \varepsilon_p r_{pp}^2 - 2 \sin^2 \beta \varepsilon_s r_{ss}^2 \right. \\
& - \sin(2\beta) \sin(\delta_{pp} - \delta_{ss}) r_{pp} r_{ss} \\
& \left. - \sin(2\beta) \sin(\delta_{ps} - \delta_{sp}) r_{ps} r_{sp} \right] \sin(2\alpha),
\end{aligned} \tag{7.9}$$

$$\begin{aligned}
I_{2\omega}^{M-A} = J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) & \left[ 2 \cos^2 \beta \theta_p r_{pp}^2 + 2 \sin^2 \beta \theta_s r_{ss}^2 \right. \\
& + \sin(2\beta) \sin(\delta_{pp} + \delta_{ss}) r_{pp} r_{ss} \\
& \left. + \sin(2\beta) \sin(\delta_{ps} + \delta_{sp}) r_{ps} r_{sp} \right] \sin(2\alpha).
\end{aligned} \tag{7.10}$$

As shown by Polisetty et al. [295], the optimal configurations for the modulator-analyzer setup are  $\beta = 90^\circ$  and  $\alpha = 45^\circ$  or  $135^\circ$ . In these configurations, the detected intensity is

$$\begin{aligned}
I^{M-A}(\beta = 90^\circ, \alpha = 45^\circ, 135^\circ) = \frac{r_{ss}^2}{2} + \frac{r_{ps}^2}{2} & \pm J_0(\varphi_0) \theta_s r_{ss}^2 \\
& \mp 2J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) \varepsilon_s r_{ss}^2 \\
& \pm 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) \theta_s r_{ss}^2.
\end{aligned} \tag{7.11}$$

Using the lock-in amplifier to read the first or second harmonic individually makes it possible to measure only the amplitude of one of the last two terms of Eq. (7.11), effectively isolating the Kerr ellipticity  $\varepsilon_s$  or rotation  $\theta_s$  from other contributions. For example, in the present case, the intensity read in the first harmonic would be  $2J_1(\varphi_0) \varepsilon_s r_{ss}^2$ . To retrieve the Kerr ellipticity (or the Kerr rotation in the second harmonic), the signal must be normalized by a factor that contains  $r_{ss}^2$ , which is usually constant for a given material and incidence angle. However, in the context of ultrafast magnetic dynamics,  $r_{ss}^2$  can exhibit a time-dependent behavior which should be carefully characterized to allow the proper retrieval of the transient Kerr rotation or ellipticity [117]. Fortunately, since the incident beam is s-polarized,  $r_{ss}^2$  simply corresponds to the reflectivity of the s-polarized component of the beam and can easily be measured. From Eqs (7.8)-(7.10), we can further establish that the setup can be optimized for  $\beta = 0^\circ$  (*p*-polarization). In that case, the

detected intensity would be equivalent to Eq. (7.11), but with references to the Kerr rotation and ellipticity  $\theta_p$  and  $\varepsilon_p$  instead of  $\theta_s$  and  $\varepsilon_s$ .

#### 7.4.2 Modulator-PBS (M-PBS) setup

The final polarization state for the modulator–PBS (M–PBS) setup is given by

$$\begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}^f = HOSP. \quad (7.12)$$

As mentioned above, there is no matrix to describe the polarization beamsplitter. Instead, each component of the polarization (s and p) is independently detected. Then, those two signals are subtracted to one another and the difference is amplified by the balanced photodetectors. Therefore, the detected signal is proportional to  $I^{M-PBS} = |E_p|^2 - |E_s|^2$ . It corresponds to the sum of the static signal  $I_0^{M-PBS}$ , the first harmonic  $I_\omega^{M-PBS}$  and the second harmonic  $I_{2\omega}^{M-PBS}$ ,

$$\begin{aligned} I_0^{M-PBS} = & 2J_0(\varphi_0) \left[ \cos^2 \beta \theta_p r_{pp}^2 + \sin^2 \beta \theta_s r_{ss}^2 \right. \\ & + \frac{1}{2} \sin(2\beta) r_{pp} r_{ss} \cos(\delta_{ss} - \delta_{pp}) \\ & + \frac{1}{2} \sin(2\beta) r_{ps} r_{sp} \cos(\delta_{sp} - \delta_{ps}) \left. \right] \sin(4\phi) \\ & + \sin(2\beta) r_{pp} r_{ps} \cos(\delta_{ps} - \delta_{pp}) \cos(4\phi) \\ & - \sin(2\beta) r_{ss} r_{sp} \cos(\delta_{sp} - \delta_{ss}) \cos(4\phi) \\ & + \cos^2 \beta r_{pp}^2 \cos(4\phi) + \sin^2 \beta r_{ps}^2 \cos(4\phi) \\ & - \sin^2 \beta r_{ss}^2 \cos(4\phi) - \cos^2 \beta r_{sp}^2 \cos(4\phi), \end{aligned} \quad (7.13)$$

$$\begin{aligned} I_\omega^{M-PBS} = & J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) \left[ 4 \cos^2 \beta \varepsilon_p r_{pp}^2 - 4 \sin^2 \beta \varepsilon_s r_{ss}^2 \right. \\ & - 2 \sin(2\beta) \sin(\delta_{pp} - \delta_{ss}) r_{pp} r_{ss} \\ & \left. - 2 \sin(2\beta) \sin(\delta_{ps} - \delta_{sp}) r_{ps} r_{sp} \right] \sin(4\phi), \end{aligned} \quad (7.14)$$

$$\begin{aligned} I_{2\omega}^{M-PBS} = & J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) \left[ 4 \cos^2 \beta \theta_p r_{pp}^2 + 4 \sin^2 \beta \theta_s r_{ss}^2 \right. \\ & + 2 \sin(2\beta) \cos(\delta_{pp} - \delta_{ss}) r_{pp} r_{ss} \\ & \left. + 2 \sin(2\beta) \cos(\delta_{ps} - \delta_{sp}) r_{ps} r_{sp} \right] \sin(4\phi). \end{aligned} \quad (7.15)$$

From the expressions for the first and second harmonics, it is obvious that the signal is maximized when  $\phi = \{22.5^\circ, 67.5^\circ, 112.5^\circ, \dots\}$ . Then, setting  $\beta = 0^\circ$  or  $90^\circ$  cancels the terms that are not related to the Kerr rotation  $\theta_{s,p}$  or ellipticity  $\varepsilon_{s,p}$  while simultaneously maximizing the terms that are related to those quantities. Under such conditions, one example of the detected intensity is

$$\begin{aligned}
I^{M-PBS}(\beta = 90^\circ, \phi = 22.5^\circ) = & 2J_0(\varphi_0)\theta_s r_{ss}^2 \\
& -4J_1(\varphi_0)\sin(\omega t)\varepsilon_s r_{ss}^2 \\
& +4J_2(\varphi_0)\cos(2\omega t)\theta_s r_{ss}^2.
\end{aligned} \tag{7.16}$$

Once again, the lock-in amplifier allows selecting only the amplitude of the first (second) harmonic, which here corresponds to the second (third) term of the equation and allows to isolate the Kerr ellipticity (rotation) from other contributions. As in the modulator-analyzer case, the result would be similar to different combinations of the optimized  $\phi$  and  $\beta$  values. A different orientation of the half-waveplate may induce a sign change in one of the terms of the equation, and a switch from s-polarization to  $p$ -polarization would cause the intensity to be dependent on elements of the complex Kerr angle  $\theta_p$  instead of  $\theta_s$ , but no major change would occur in the form of the equation. It is interesting to note that this configuration is completely equivalent to the optimized modulator-analyzer setup while also being lossless. Indeed, in the case of the modulator-analyzer setup, the analyzer detects one component of the polarization in a basis that is rotated by  $45^\circ$  with respect to the plane of incidence. Equivalently, in the optimized configuration of the modulator-PBS setup, the half-waveplate is set to rotate an incident s- or  $p$ -polarization by  $45^\circ$  before both components of the polarization are detected in a basis that is aligned with the plane of incidence. While one component of the polarization of the beam would be rejected by the analyzer in the modulator-analyzer setup, here it is retained and measured. For this reason, Eq. (7.16) gives a detected intensity that is twice as strong as that given by Eq. (7.11). In addition, when  $J_0(\varphi_0) = 0$ , the static signal is cancelled in the case of the modulator-PBS setup, which can contribute to improving the SNR.

### 7.4.3 Setups without modulator and lock-in amplifier

The proposed setups described above can be used unchanged with MHz femtosecond pulse systems [304]. However, the relatively low pulse energy offered by these systems is insufficient to trigger ultrafast magnetic processes in magnetic thin films, making them unsuitable for time-resolved pump-probe investigations of these phenomena. Multi-kHz, millijoule, femtosecond laser systems are better adapted for this kind of study. Unfortunately, their rather low frequency makes the use of a modulator inconvenient, so time-resolved MOKE experiments based on these systems are routinely performed with the lock-in amplifier set at the laser pulse repetition frequency or half this frequency [81]. The response from the photodetector is typically faster than a microsecond, resulting in a low duty cycle (the period of the signal being on the order of hundreds of microseconds for a multi-kHz laser). For such a signal, the Fourier components are almost constant for tens to hundreds of harmonics, drastically reducing the amplitude measured

by the lock-in amplifier in one harmonic (for example, the fundamental) and consequently the SNR.

As an alternative, it is possible to use a setup without any modulator or chopper to improve the SNR [305]. Then, instead of going through the lock-in amplifier, either the detected signal can be electronically integrated over a defined time-period (boxcar detection) [306], or every pulse can be digitized. When removing the modulator, the detected intensity corresponds to  $I_0^{M-A}$  or  $I_0^{M-PBS}$  with  $J_0(\varphi_0) = 1$ . Therefore, the detected intensity in the optimal configuration calculated before for the PBS-based setup still delivers an isolated measurement of the Kerr rotation,

$$I^{PBS}(\beta = 90^\circ, \phi = 22.5^\circ) = 2\theta_s r_{ss}^2. \quad (7.17)$$

It should be noted that this PBS setup configuration does not allow for measurements of the Kerr ellipticity. However, if the half-waveplate is replaced by a quarter-waveplate oriented such that an s- or p-polarized incident beam becomes circularly polarized, the resulting signal is proportional to the Kerr ellipticity (see the supplementary material).

For the analyzer setup, by replacing  $J_0(\varphi_0) = 1$  in Eq. (7.8), it becomes clear that no configuration allows for a direct measurement of the Kerr rotation. Indeed, there exists no combination of  $\beta$  and  $\alpha$  for which the only non-zero term of the equation is proportional to the Kerr rotation or ellipticity. To overcome this, one strategy used in the literature is to slightly rotate the analyzer with respect to the crossed-polarizers case [297]. Then, considering that  $r_{ps} \ll r_{ss}$ , the signal can be approximated to

$$I^A(\beta = 90^\circ, \alpha \text{ small}) \approx 2\theta_s r_{ss}^2 \alpha + r_{ss}^2 \alpha^2 \quad (7.18)$$

for incident s-polarization, with an equivalent result for incident p-polarization. The Kerr rotation can be deduced if the nonmagnetic contribution  $r_{ss}$  is also measured. One more configuration of the analyzer-based setup deserves some attention: the simple case in which the analyzer is rotated by  $90^\circ$  with respect to the incident polarization. In this case, the measured intensity is, for incident s-polarisation,

$$I^A(\beta = 90^\circ, \alpha = 0^\circ) = r_{ps}^2. \quad (7.19)$$

Then, it is not possible to directly determinate the Kerr rotation or ellipticity. Still, the measurement is of purely magneto-optical origin, making this simple configuration practical in certain contexts.

## 7.5 Experimental results

### 7.5.1 Static experiment

Static measurements with varying magnetic field intensities were performed in order to compare the SNR of the modulator–analyzer and modulator–PBS setups. In both cases, the measurements were done on an iron sample with platinum capping deposited on a silicon substrate [Si/Ta 3/Pt 3/Fe 15/Pt 3 (nm)]. Since the orientation of magnetization for this sample is preferably in-plane, the setup geometry was chosen to be suitable for detecting the longitudinal MOKE [Figure 7.1(a)]. The frequency of the PEM was set to 50 kHz. A Wollaston prism was chosen as the polarizing beam splitter. The orientation of the prism was set so that both output beams have the same height. Since the beam height is kept constant throughout the setup, this ensures that the PBS adequately splits the *s*- and *p*-polarization components. The orientations of the polarizer and the half-waveplate were then defined from this basis. Balanced amplified photodetectors were used to further improve the SNR (PDB220A2/M, Thorlabs, Inc.). In order to make as few changes as possible between the measurements, the modulator-PBS setup was implemented and the modulator-analyzer setup was simulated by blocking one of the balanced photodetector’s input while keeping the half-waveplate at 22.5°. Since the PBS separates *s*- and *p*-polarizations, this is equivalent to an analyzer set at 45°. The measured signal corresponds to the second harmonic of the modulating frequency detected by the lock-in amplifier, meaning that it is related to the Kerr rotation. The results are presented in Figure 7.2.

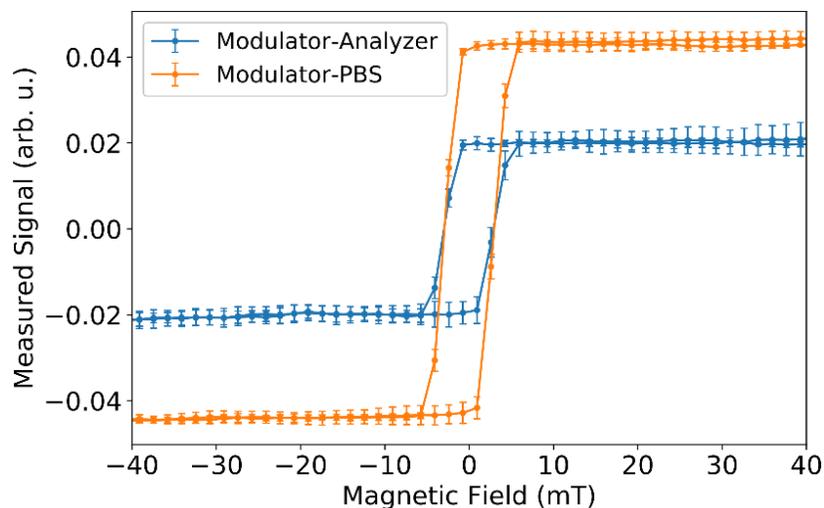


Figure 7.2 MOKE measurements

Second harmonic of longitudinal MOKE measurements made with the modulator–analyzer (blue) and modulator–PBS (orange) setups for a Si/Ta 3/Pt 3/Fe 15/Pt 3 (nm) sample. The error bars correspond to the standard deviation of a set of four measurements.

As expected from the theoretical analysis, the signal obtained from the modulator-PBS setup is twice as strong as the one obtained from the modulator-analyzer setup. Consequently, the modulator-PBS setup also offers a much better SNR. Here, the SNR is defined as the ratio of the averaged intensity in the range of applied magnetic fields for which the magnetization of the sample is saturated to the standard deviation of the signal in the same range. The SNR for the modulator-analyzer setup is found to be 36.7, while it reaches 56.8 for the modulator-PBS setup, an improvement of >150%. More generally, the cancellation of common mode noise in balanced photodetectors leads to a greater SNR than the single photodetectors often used in analyzer-based MOKE setups, making PBS-based setups quite attractive.

As shown in Figure 7.1(a), the longitudinal MOKE setup contains several reflections on mirrors. Mirrors, especially metallic ones, typically do not conserve the polarization state of the incident beam unless it is perfectly *s*- or *p*-polarized. This can have a considerable effect on the measured signal. For the optimized modulator-PBS and modulator-analyzer setups, the incident beam is *s*- or *p*-polarized, so the effect of the mirrors up to the sample position can be neglected. However, between the sample and the detection scheme, there are three reflections on protected silver mirrors (Thorlabs, Inc.) that should be taken into account. By adding a matrix representing a mirror to the calculations presented in section 7.4, it can be shown that the signals of the Kerr rotation and ellipticity become mixed (see the supplementary material). For a mirror with a complex reflectivity  $r_{m,p}e^{i\xi_p}$  for the *p*-polarization and  $r_{m,s}e^{i\xi_s}$  for the *s*-polarization, the measured signal of the optimized modulator-PBS becomes

$$\begin{aligned}
I^{M-PBS}(\beta = 90^\circ, \phi = 22.5^\circ) = & 2J_0(\varphi_0)[\theta_s \cos(\Delta\xi) - \varepsilon_s \sin(\Delta\xi)]r_{m,p}r_{m,s}r_{ss}^2 \\
& - 4J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) [\varepsilon_s \cos(\Delta\xi) + \theta_s \sin(\Delta\xi)]r_{m,p}r_{m,s}r_{ss}^2 \\
& + 4J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) [\theta_s \cos(\Delta\xi) - \varepsilon_s \sin(\Delta\xi)]r_{m,p}r_{m,s}r_{ss}^2.
\end{aligned} \tag{7.20}$$

For protected silver mirrors near  $45^\circ$  incidence, the phase difference  $\Delta\xi = \xi_p - \xi_s$  is significant. Consequently, a strong MOKE signal can still be obtained, but the Kerr rotation and ellipticity can not be independently retrieved. This implies that in our experiment, we are only sensitive to a relative change in the magnetization and not to the absolute Kerr rotation and ellipticity.

However, by carefully choosing the mirrors and designing the setup as to minimize reflections, the phase difference  $\Delta\xi$  can become negligible, and such MOKE setup can be used to retrieve absolute values of the Kerr rotation and ellipticity. To do so, it is necessary to calibrate the signal to extract the amplifying factor of the detectors. As described in the study by Buchmeier et al. [307], this can be achieved by using a non-magnetic sample with a known refractive index for the calibration.

### 7.5.2 Time-resolved experiment

As an example of time-resolved measurements, we have characterized the ultrafast demagnetization of a Co/Pt multilayer sample excited by a femtosecond laser pulse. This phenomenon, discovered in 1996 by Beaurepaire et al. [7], occurs within a few hundred femtoseconds after the excitation of a ferromagnetic material by a laser pulse [53]. Despite having been studied for many years, the underlying mechanisms of ultrafast demagnetization are still the subject of intense research [230].

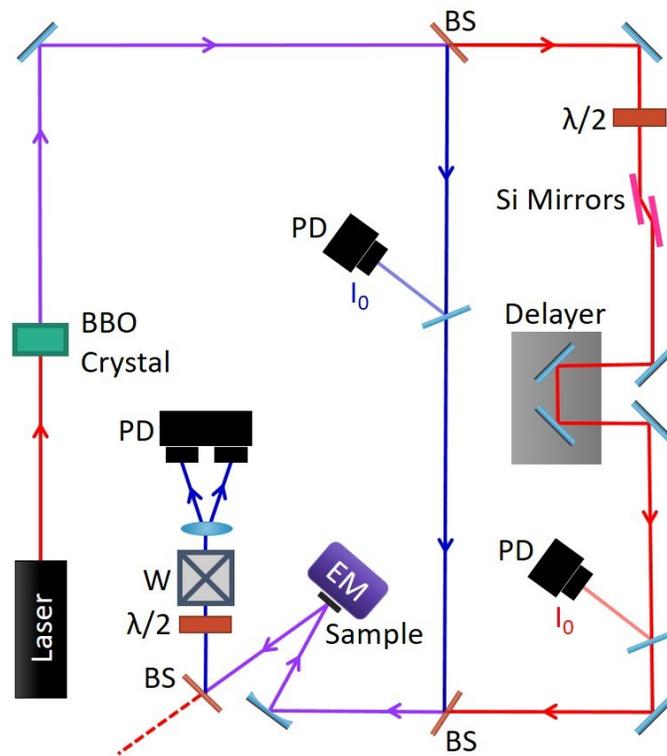


Figure 7.3 Experimental time-resolved MOKE setup

The laser is a titanium–sapphire system with an output wavelength of 800 nm. The beam is frequency-doubled in a BBO crystal. Dichroic beam splitters are used to separate and recombine the pump (red) and probe (blue) beams. The fluence of the pump beam on the sample is controlled by a half-waveplate coupled with a pair of Si mirrors acting as polarizers. Photodetectors are placed along the paths of the beams to keep track of their intensities.

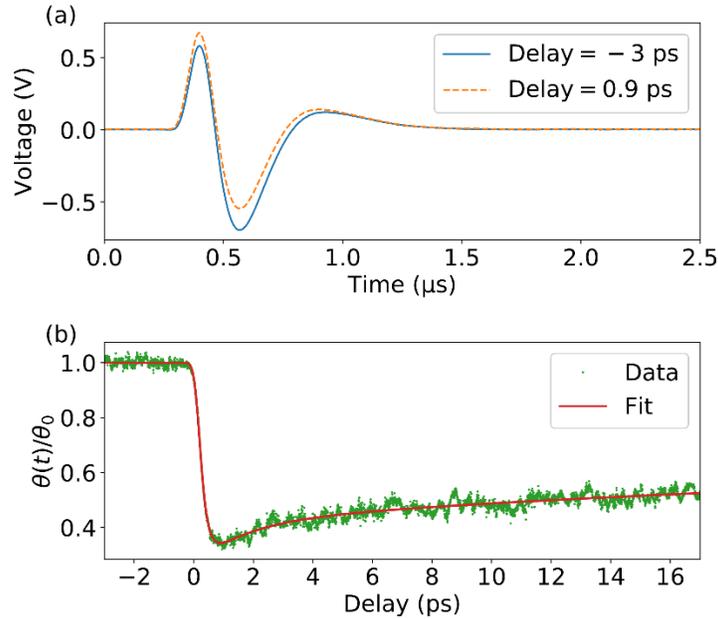
A sketch of the experimental pump-probe setup is shown in Figure 7.3. The experiment was performed in the Corail room of the Laboratoire d’Optique Appliquée. A titanium-sapphire laser system delivers femtosecond pulses with an energy of 2 mJ at 800 nm. About 1% of this energy is used for this experiment. Because the beam is transmitted through thick optical elements that stretch the pulse before reaching the MOKE setup, the pulse duration is  $\sim 100$  fs long. The beam is frequency-doubled, and the fundamental and second-harmonic beams are used as the pump

and probe, respectively. A delay line is placed in the pump beam path, making it possible to record the Kerr rotation as a function of time. To avoid issues related to modulation and signal recovery at the low repetition rate of the laser system (5 kHz), the PBS setup is used without the modulator and the lock-in amplifier. The sample is magnetized out-of-plane by an electromagnet, which provides a weak magnetic field (<200 mT). Because this electromagnet can only be used to generate a magnetic field normal to the sample surface, a typical multilayer sample (Si/Ta3/Pt5/[Co 0.6/Pt 0.8]×20/Al 3 (nm)) with high out-of-plane magnetic anisotropy was chosen along with a polar MOKE geometry [308]. For each laser shot, a digitizer (WaveCatcher) is used to record at least four waveforms: the three outputs of the balanced photodetectors, namely, both photodiodes and their amplified difference (RF signal), and the intensity of the pump pulse [309]. An additional photodetector placed on the probe path can also be used to measure the probe intensity. These measurements allow us to normalize the Kerr signal by the probe intensity to compensate for fluctuations of the laser power and could be used to sort the data by pump fluence if the variations in the pump intensity were sufficiently large. Each detected signal is digitized. This approach was favored in this work as it has the advantage that the waveform is recorded on a shot by shot basis, allowing for more complex sorting and integration of the data.

Figure 7.4(a) shows two RF signal waveforms recorded for a single shot at positive (orange line) and negative (blue line) delays. To obtain a full demagnetization curve, we record such waveforms for each laser pulse while slowly and continuously varying the position of the delay stage. The position of the stage is recorded with the same frequency as the repetition rate of the laser, allowing us to retrieve the actual delay position for each laser pulse. We perform such a delay scan for each of the opposite magnetization directions. Then, we extract the integral of the waveforms normalized by the incoming probe intensity as a function of delay [variable named  $I^{+/-}(t)$  in the following]. By taking the difference between the recorded intensities with the two magnetization directions, we can retrieve the amplitude of the change in the Kerr rotation,

$$\frac{\theta(t)}{\theta_0} = \frac{I^+(t) - I^-(t)}{I^+(t < 0) - I^-(t < 0)} \quad (7.21)$$

This time trace is shown in Figure 7.4(b). To produce this curve, 200 000 shots were recorded (100 000 for each magnetization direction), within a total of only 40 s. By fitting the curve with a typical expression used for transient demagnetization [310], we find a demagnetization time of  $187 \pm 9$  fs, in agreement with previous studies on this type of sample [311]. It should be noted that studies are ongoing to define whether Kerr rotation measurements constitute a pure representation of the ultrafast magnetization dynamics [116,117].



**Figure 7.4 Time-resolved MOKE measurements**

(a) RF output waveforms of the balanced photodetector recorded before (blue solid line) and after (orange dotted line) excitation by the optical pump pulse. The difference between the two waveforms is a consequence of the demagnetization of the sample. (b) Normalized Kerr rotation as a function of time delay for the same sample (green dots). The solid red line shows a bi-exponential fit of the data.

## 7.6 Conclusion

The Jones formalism is used to derive mathematical expressions to analyze the signal measured from different MOKE setups and define the optimal orientation of their optical components. When a photoelastic modulator and a lock-in amplifier are used, it is found that the Kerr ellipticity and rotation can be measured directly by looking at the first or second harmonic of the modulating frequency of the signal, respectively, in both analyzer-based and polarizing beam splitter-based detection schemes. Additionally, we demonstrate, through the theoretical analysis and experimental results, that the polarizing beam splitter-based setup improves the intensity of the signal by a factor of two. As a result, and because the use of balanced photodetectors helps reduce the noise, the signal-to-noise ratio is demonstrated to increase by at least 150% compared to the analyzer-based detection scheme. Furthermore, it is shown that the polarizing beam splitter-based setup is also suitable for measuring the Kerr rotation without the use of a modulator and lock-in amplifier, which can be advantageous for pulsed laser sources with low repetition rates. In contrast, equations show that the Kerr rotation cannot be isolated with an analyzer-based setup. In this case, the only configuration that allows for purely magneto-optical measurements consists of placing the optical axis of the analyzer at  $90^\circ$  with respect to the incident polarization.

To assess the applicability of the optimal setup configuration, time-resolved measurements of laser-induced ultrafast demagnetization from a kHz laser system are recorded. The high signal-to-noise ratio offered by the balanced photodetectors allows for sensitive, single-shot measurements of the Kerr rotation for each delay, leading to a fast acquisition time. Importantly, we demonstrate that reflections on mirrors can be detrimental to the independent measurement of Kerr rotation and ellipticity and should be carefully considered in the design of MOKE setups. This illustrates how the general expressions presented in this work can serve as a valuable tool to guide the design of future MOKE setups by revealing the optimal experimental parameters for the measurement of any component of the complex Kerr angles.

## **7.7 Supplementary material**

See the supplementary material (Annexe III) for a detailed example of the matrix calculation for the optimized modulator-analyzer setup, the analytic description of the PBS setup with the half-waveplate replaced by a quarter-waveplate for Kerr ellipticity measurements, and also a thorough description of the effect of mirror reflections on the measured MOKE signal.

## **7.8 Acknowledgment**

This work was supported by the Agence nationale de la recherche (ANR) (Grant No. ANR-15-CE24-0009-03), the Investissements d’Avenir of LabEx PALM (Grant No. ANR-10LABX-0039-PALM), CNRS-MOMENTUM, CNRS-IEA STERIOD, and the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC).

## **7.9 Author declarations**

### **Conflict of Interest**

The authors have no conflicts to disclose.

### **Author Contributions**

Katherine Légaré: Formal analysis (lead); Writing – original draft (lead); Writing – review & editing (lead). Valentin Chardonnet: Data curation (supporting). Ivette Bermúdez Macias: Data curation (equal). Marcel Hennes: Conceptualization (equal); Data curation (equal). Renaud Delaunay: Data curation (equal); Resources (equal). Philippe Lassonde: Writing – review & editing (equal). François Légaré: Funding acquisition (equal). Guillaume Lambert: Data curation (equal); Resources (equal); Writing – review & editing (equal). Emmanuelle Jal: Conceptualization (equal);

Data curation (equal); Funding acquisition (equal); Methodology (equal); Supervision (equal); Writing – original draft (supporting); Writing – review & editing (equal). Boris Vodungbo: Conceptualization (equal); Data curation (equal); Funding acquisition (equal); Methodology (equal); Supervision (equal); Writing – original draft (supporting); Writing – review & editing (equal).

### **7.10 Data availability**

The data that support the findings of this study are available from the corresponding authors upon reasonable request.



## 8 L'INFRAROUGE MOYEN COMME SOURCE D'EXCITATION DE LA DÉSAIMENTATION ULTRARAPIDE

---

Dans les articles présentés aux chapitres précédents, différentes méthodes ont été utilisées pour observer la désaimantation ultrarapide dans un alliage ferrimagnétique de terre rare (chapitre 4) ou dans un échantillon multicouche ferromagnétique de métaux de transition (chapitres 5 et 7). Dans tous les cas, la désaimantation a été excitée par une impulsion laser ultracourte ( $<100$  fs) dans le visible ou le proche infrarouge. Dans la littérature, d'autres bandes spectrales ont été considérées, dont l'ultraviolet extrême [312,313] et le régime térahertz [105,226,314–316]. Par contre, très peu d'incursions dans l'infrarouge moyen ont été réalisées, à l'exception notable d'un article de colloque par Zagdoud *et al.* [317] dans lequel la désaimantation par des impulsions d'une longueur d'onde centrale de  $4.88 \mu\text{m}$  est présentée.

Dans ce chapitre, la désaimantation ultrarapide d'un échantillon multicouche de cobalt/platine est étudiée pour des longueurs d'onde d'excitation entre  $0.8 \mu\text{m}$  et  $8.7 \mu\text{m}$ . Tel que présenté au chapitre 7, l'aimantation de l'échantillon est mesurée à partir de l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE). Les détails du montage expérimental sont présentés à la section 8.1. La section 8.2 contient les résultats ainsi qu'une discussion sur les effets de la longueur d'onde et du profil temporel des impulsions de pompe sur les dynamiques de la désaimantation ultrarapide.

### 8.1 Montage expérimental

Les mesures MOKE de la désaimantation ultrarapide excitée par des impulsions allant de l'infrarouge proche à moyen sont effectuées à partir d'un montage semblable à celui présenté à la section 7.5.2. Le montage expérimental est présenté à la Figure 8.3. Un laser titane-saphir fournit des impulsions de 45 fs à 800 nm avec un taux de répétition de 100 Hz. Le faisceau est divisé en deux parties qui sont amplifiées séparément. À la sortie du système, la partie de basse énergie (impulsions de 5 mJ) est divisée en un faisceau de sonde et un faisceau de pompe par un séparateur de faisceau.

Le faisceau de sonde contient moins de  $200 \mu\text{J}$  d'énergie par impulsion. Un cristal de BBO est inséré dans la ligne afin d'en doubler la fréquence pour que la longueur d'onde de la sonde soit éloignée de celles de la pompe. Ceci permet d'éviter les effets du remplissage des états (voir section 2.4.1). Ensuite, deux miroirs dichroïques (UBS20, Thorlabs, Inc.) ainsi qu'un filtre passe-bande (FBH400-40, Thorlabs, Inc.) permettent de ne conserver que la radiation à 400 nm. Une plaque de verre placée à l'angle de Brewster fixe la polarisation  $s$  de la sonde.

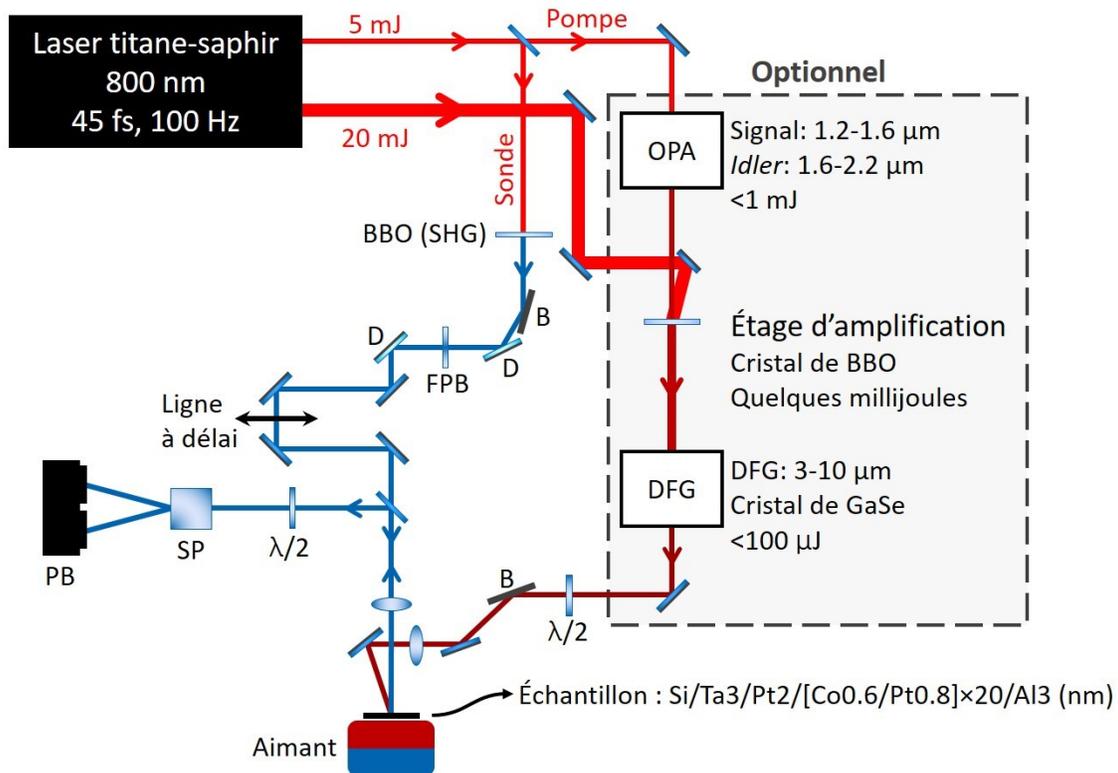
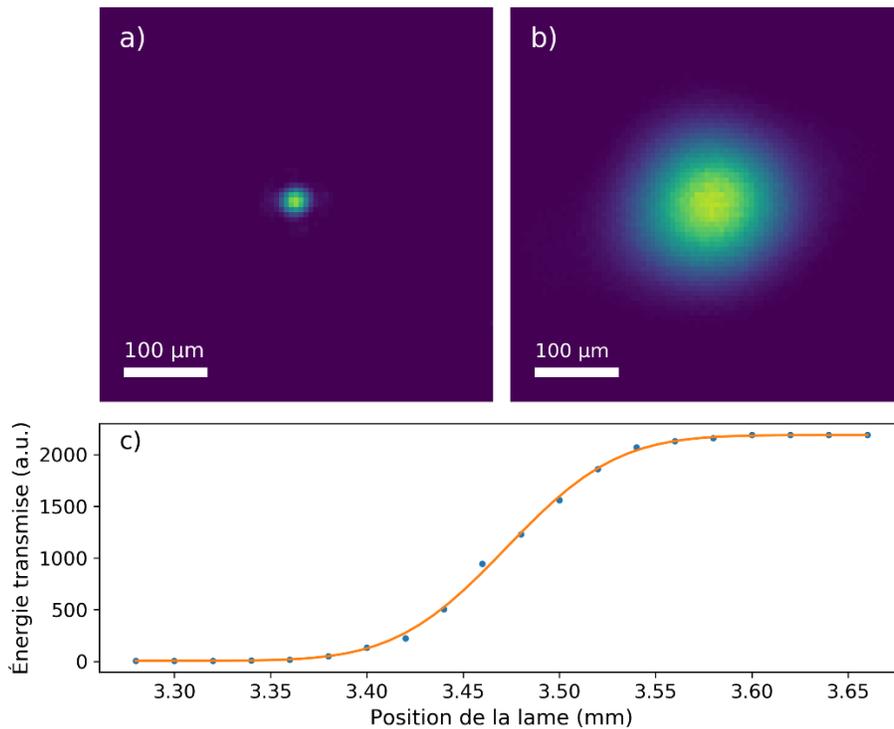


Figure 8.1 Schéma du montage expérimental

Schéma du montage ayant permis de mesurer la désaimantation ultrarapide pompée par des impulsions dans l'infrarouge moyen. Les composants sont: (B) plaque de verre ou de silicium à l'angle de Brewster, (D) miroir dichroïque, (FPB) filtre passe-bande, ( $\lambda/2$ ) lame demi-onde, (SP) séparateur de polarisations, (PB) photodiodes balancées.

Après avoir parcouru une ligne à délai, la sonde est focalisée sur l'échantillon par une lentille. La tache focale fait environ  $50 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  et contient  $\ll 1 \mu\text{J}$  par impulsion. L'échantillon est composé de vingt répétitions d'une multicouche de  $[\text{Co } 0.6 \text{ nm}/\text{Pt } 0.8 \text{ nm}]$  protégées par une couche de  $3 \text{ nm}$  d'aluminium. Un aimant permanent est placé derrière l'échantillon pour garantir la saturation de son état magnétique. Puisque l'échantillon est préférablement aimanté hors-plan, le montage est conçu pour mesurer le MOKE polaire et le faisceau de sonde est normal à l'échantillon. La réflexion est ensuite récupérée et envoyée vers une lame demi-onde suivie d'un séparateur de polarisations (WP10-A, Thorlabs, Inc.) et de photodiodes balancées (PDB220A2/M, Thorlabs, Inc.), ce qui permet de caractériser la rotation de la polarisation. Tel que décrit au chapitre 7, cette configuration permet d'obtenir un ratio de signal sur bruit élevé. À chaque délai, le signal est mesuré pour les deux orientations de l'aimantation (voir l'équation (7.21)). La différence entre ces signaux est considérée proportionnelle à l'aimantation de l'échantillon.

Le faisceau de pompe passe optionnellement par des étages non-linéaires qui permettent d'en varier la longueur d'onde. Pour obtenir des longueurs d'onde dans le proche infrarouge (de 1.25  $\mu\text{m}$  à 2.1  $\mu\text{m}$ ), un amplificateur paramétrique optique (OPA) commercial est utilisé (HE-TOPAS, Light Conversion, Inc.). Pour l'infrarouge moyen, la génération par différence de fréquences (DFG) entre le signal et l'*idler* générés par l'OPA doit être effectuée. Dans ce cas, un étage supplémentaire d'amplification dans un cristal de BBO est employé. La sortie de haute énergie du laser ( $\sim 20$  mJ) est utilisée pour pomper cet étage afin d'obtenir des impulsions de quelques millijoules. Ensuite, pour les longueurs d'onde de 3.15  $\mu\text{m}$  à 5.9  $\mu\text{m}$ , le signal et l'*idler* sont séparés par des miroirs dichroïques et synchronisés à l'aide d'une ligne à délai. Pour la longueur d'onde de 8.7  $\mu\text{m}$ , la synchronisation est atteinte par le simple ajout d'une lame de verre dispersive dans le faisceau. Finalement, un cristal de GaSe est inséré dans le faisceau pour la DFG. Le signal et l'*idler* sont ensuite rejetés par un filtre passe-long.



**Figure 8.2 Taches focales de la sonde et de la pompe**

(a) Image de la tache focale de la sonde à 400 nm, avec un diamètre à  $1/e^2$  d'environ 50  $\mu\text{m}$ . (b) Exemple de tache focale pour la pompe dans le proche infrarouge, avec un diamètre d'environ 200  $\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ . Cette image est mesurée à une longueur d'onde de 1.8  $\mu\text{m}$ . (c) Exemple de mesure du profil de la tache focale de la pompe alors qu'elle est progressivement couverte par une lame de rasoir. Les points correspondent aux données expérimentales et la ligne pleine est une courbe de tendance basée sur le résultat attendu pour un profil Gaussien. Cette courbe, mesurée à une longueur d'onde de 5.9  $\mu\text{m}$ , correspond à une tache focale d'un diamètre de 180  $\mu\text{m}$ . Le diamètre de la tache focale se situe entre 180  $\mu\text{m}$  et 220  $\mu\text{m}$  pour toutes les longueurs d'onde de pompe.

L'énergie des impulsions de pompe est contrôlée par une lame demi-onde suivie d'une plaque

de silicium à l'angle de Brewster. Le faisceau est ensuite focalisé sur l'échantillon avec un angle d'incidence presque normal (moins de 10°) par un miroir sphérique ou un miroir parabolique hors axe. Pour chaque longueur d'onde, l'élément focalisant est choisi de façon à ce que la tache focale de la pompe ait une taille d'environ 200 µm sur l'échantillon. Dans le proche infrarouge, la tache focale est mesurée par une caméra. Dans l'infrarouge moyen, la taille de la tache focale est estimée par des mesures de l'énergie du profil alors qu'il est progressivement couvert par une lame de rasoir (*knife-edge method*). La Figure 8.2 montre quelques exemples du profil des taches focales de la sonde et de la pompe.

Il est important de noter que les caractéristiques temporelles des impulsions de pompe peuvent être affectées par les étapes non-linéaires consécutives ainsi que par la propagation du faisceau dans l'air et au travers d'éléments optiques. Par exemple, ces processus peuvent causer un allongement de la durée de l'impulsion, l'apparition d'un piédestal contenant une fraction importante de l'énergie totale ou l'apparition de répliques, soit des impulsions moins intenses qui suivent l'impulsion principale. Tous ces effets peuvent avoir des conséquences importantes sur les dynamiques de la désaimantation ultrarapide [318,319]. Afin d'éliminer au moins les effets de l'absorption lors de la propagation dans l'air, le montage expérimental est optionnellement plongé dans une atmosphère d'azote. Cependant, cette précaution ne s'est avérée nécessaire que pour la longueur d'onde de pompe de 5.9 µm. Plus de détails sur l'effet de l'absorption sont donnés à la section 8.2.3.

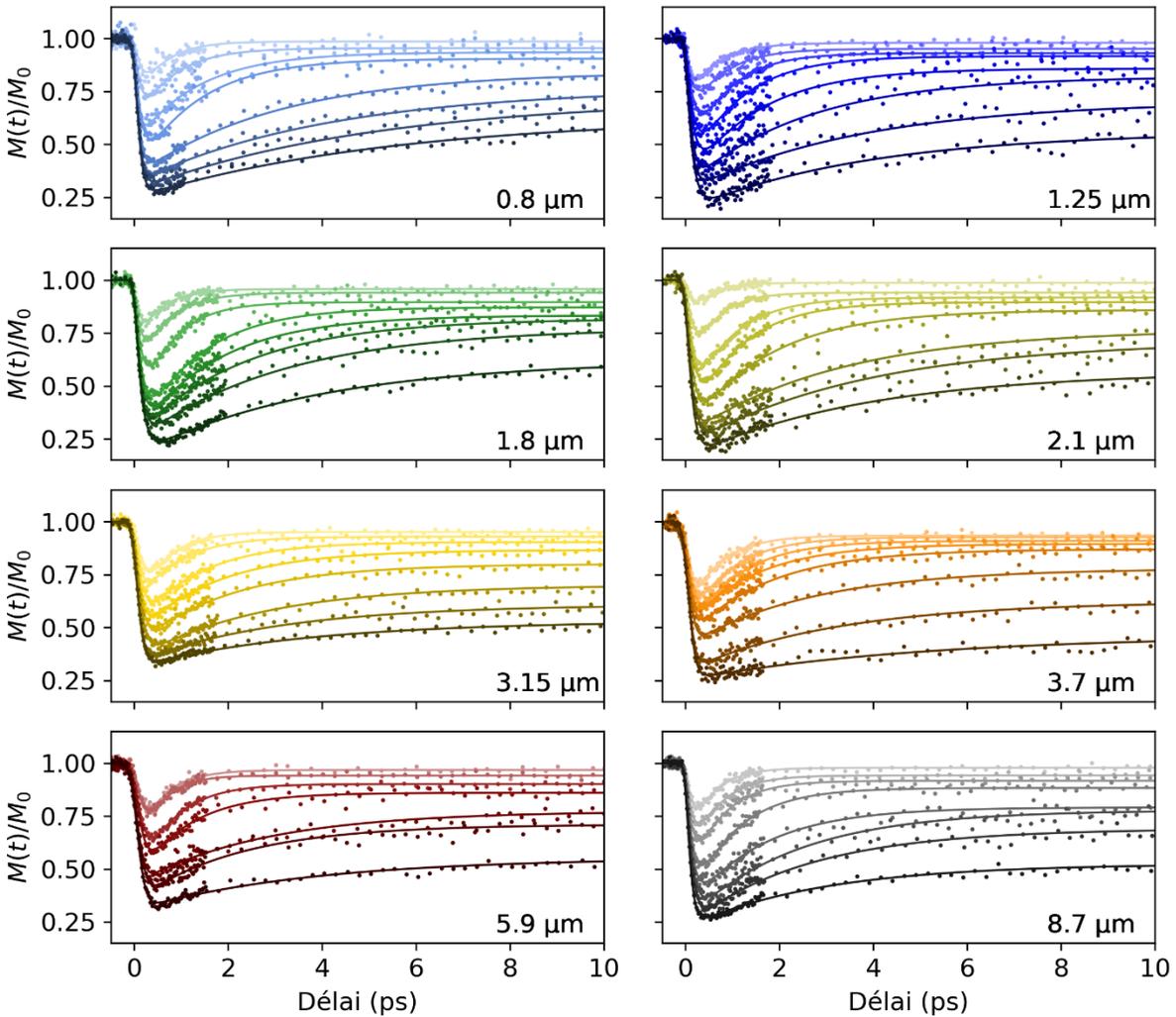
## 8.2 Résultats et discussion

La Figure 8.3 présente des courbes de désaimantation ultrarapide obtenues à différentes longueurs d'onde de pompe. Pour chaque mesure, une courbe de tendance est générée à partir de l'équation (5.1), soit :

$$\frac{\theta(t)}{\theta_0} = \frac{M(t)}{M_0} = G(t) \otimes \left[ 1 - H(t) \left[ B \left( 1 - \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_1}\right) \right) \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_2}\right) + C \left( 1 - \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_2}\right) \right) \right] \right]. \quad (8.1)$$

La variation de la rotation de Kerr  $\theta(t)$  est considérée équivalente à la variation de l'aimantation  $M(t)$ . La fonction  $G(t)$  est une fonction Gaussienne dont la largeur représente la résolution temporelle de l'expérience. Plusieurs effets contribuent à la largeur de  $G(t)$  : la durée des impulsions de sonde et de pompe, la géométrie du montage (le faisceau de pompe a un angle d'incidence d'au plus 10° sur l'échantillon, ce qui ajoute un temps de ~30 fs au maximum), et le phénomène de désaimantation lui-même, qui n'est pas nécessairement instantané. Cette largeur est laissée en paramètre libre pour l'optimisation numérique de la courbe de tendance. La fonction

Heaviside,  $H(t)$ , décrit la chute abrupte de l'aimantation au temps zéro. Les paramètres  $\tau_1$  et  $\tau_2$  décrivent le temps caractéristique de désaimantation et de récupération, respectivement. Le paramètre  $B$  décrit le niveau d'atténuation maximal de l'aimantation tandis que le paramètre  $C$  décrit le niveau d'atténuation après la récupération partielle de l'aimantation, soit plusieurs picosecondes après l'excitation. La valeur du temps zéro  $t_0$  est également laissée libre pour l'optimisation numérique du modèle.



**Figure 8.3** Désaimantation à différentes longueurs d'onde

Exemples de courbes de désaimantation ultrarapide obtenues pour différentes longueurs d'onde d'excitation, soit de  $0.8 \mu\text{m}$  à  $8.7 \mu\text{m}$ . Les points correspondent aux données expérimentales tandis que les lignes pleines correspondent aux courbes de tendance obtenues à partir de l'équation (8.1). À chaque longueur d'onde, plusieurs courbes sont obtenues en variant la fluence de l'impulsion d'excitation. Plus la fluence est élevée, plus la désaimantation est prononcée.

Déjà à partir de la Figure 8.3, quelques constats peuvent déjà être faits. D'abord, on observe bel et bien le phénomène de désaimantation ultrarapide à partir d'impulsions dans l'infrarouge

moyen. De plus, les dynamiques de la désaimantation ne sont pas fondamentalement altérées par la longueur d'onde de pompe. Dans tous les cas, l'aimantation atteint un minimum après quelques centaines de femtosecondes, puis elle récupère en quelques picosecondes avant d'atteindre un plateau qui dépend de l'énergie déposée dans l'échantillon. Une analyse plus poussée est nécessaire pour extraire les dynamiques exactes pour chaque condition expérimentale.

En premier lieu, intéressons-nous à l'efficacité de la désaimantation. Selon les résultats présentés au chapitre 5, l'énergie nécessaire pour désaimanter efficacement ne dépend pas significativement de la longueur d'onde de pompe. En effet, toutes les mesures sont obtenues avec une fluence absorbée de quelques  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ . Est-ce toujours le cas dans l'infrarouge moyen?

Afin de répondre à cette question, la fluence absorbée par l'échantillon doit être calculée pour chaque condition expérimentale. Toutefois, ce calcul est imparfait, car il repose sur deux mesures incertaines ainsi qu'une estimation. D'abord, le calcul de la fluence dépend du profil de la tache focale, dont la mesure par la méthode de la lame de rasoir est imprécise, et de l'énergie des impulsions, qui sont si faibles (quelques  $\mu\text{J}$ ) qu'elles se trouvent à la limite de la sensibilité des instruments disponibles au laboratoire. De plus, la fluence absorbée dépend de l'absorbance de l'échantillon. Pour chaque longueur d'onde, celle-ci est estimée à partir d'un logiciel de modélisation des propriétés optiques de matériaux multicouches, soit IMD [320]. Les résultats sont présentés dans le Tableau 8.1. Il est important de noter que ces estimations ne permettent pas de savoir quelle proportion de l'énergie absorbée est véritablement transmise aux couches magnétiques de l'échantillon. Malgré ces sources d'imprécision, il est possible de conclure que la désaimantation se produit bel et bien lorsqu'une fluence de  $\sim 1\text{-}10 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  est absorbée pour toutes les longueurs d'onde.

**Tableau 8.1 Absorbance de l'échantillon**

Longueur d'onde	0.8 $\mu\text{m}$	1.25 $\mu\text{m}$	1.8 $\mu\text{m}$	2.1 $\mu\text{m}$	3.15 $\mu\text{m}$	3.7 $\mu\text{m}$	5.9 $\mu\text{m}$	8.7 $\mu\text{m}$
Absorbance	0.25	0.22	0.26	0.28	0.16	0.13	0.09	0.06

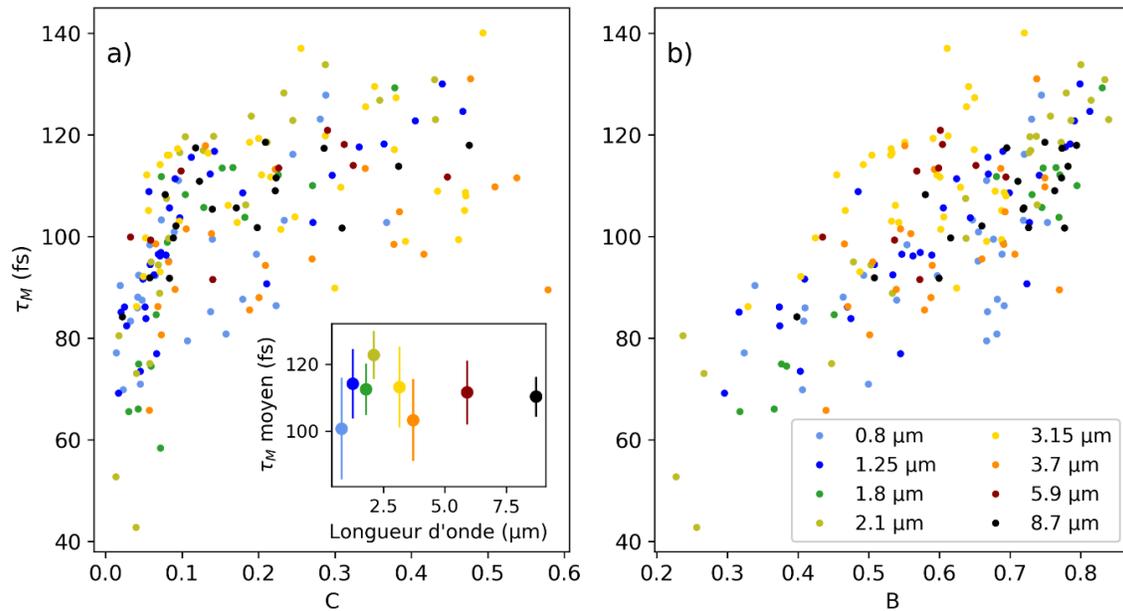
**Absorbance de l'échantillon de Si/Ta<sub>3</sub>/Pt<sub>2</sub>/[Co<sub>0.6</sub>/Pt<sub>0.8</sub>] $\times$ 20/Al<sub>3</sub> (nm) en fonction de la longueur d'onde telle que calculée par le logiciel IMD.**

Les difficultés liées au calcul de la fluence absorbée en font un paramètre inadéquat pour l'analyse. Tel que décrit au chapitre 5, d'autres paramètres peuvent être utilisés à sa place. Par exemple, le paramètre  $C$  est une excellente jauge de la fluence absorbée car, plusieurs picosecondes après l'excitation, le niveau de désaimantation ne dépend plus que de l'énergie

transmise au matériau et des propriétés de celui-ci. Dans ce qui suit, on comparera donc l'évolution de certains paramètres en fonction de  $C$  pour différentes longueurs d'onde de pompe.

### 8.2.1 Temps de désaimantation

Il est intéressant de vérifier quel impact la longueur d'onde de pompe a-t-elle sur le temps que met le matériau à se désaimanter. Ce temps caractéristique peut être décrit de plusieurs façons, par exemple en utilisant directement le paramètre  $\tau_1$  ou en définissant  $\tau_M$ , soit le délai pour que la désaimantation atteigne  $(1 - e^{-1})$  de son maximum [31]. Afin de s'appuyer le moins possible sur les paramètres modélisés par la courbe de tendance, qui sont tous interdépendants, et pour faciliter la comparaison avec la littérature,  $\tau_M$  est favorisé. Ce paramètre est tout de même rattaché à la courbe de tendance, car il dépend du bon placement de  $t_0$ .



**Figure 8.4** Temps de désaimantation

(a) Temps de désaimantation  $\tau_M$  en fonction du paramètre  $C$ , soit la désaimantation plusieurs picosecondes après l'excitation. L'encadré donne le  $\tau_M$  moyen pour  $C > 0.12$  à chaque longueur d'onde de pompe. Les barres d'erreurs correspondent à l'écart type des points considérés. (b) Temps de désaimantation  $\tau_M$  en fonction du paramètre  $B$ , soit la désaimantation maximale atteinte.

La Figure 8.4(a) montre  $\tau_M$  en fonction de  $C$  pour chaque mesure de la désaimantation ultrarapide. Les couleurs des points correspondent aux longueurs d'onde de pompe selon le code de couleur présenté dans la légende de la Figure 8.4(b). Pour chaque longueur d'onde, l'étendue du nuage de points provient entre autre de l'incertitude sur  $t_0$ , qui est tiré de la modélisation numérique de la courbe de tendance. Globalement, on observe tout de même que  $\tau_M$  augmente

rapidement à faible fluence (ou faible  $C$ ) avant de se stabiliser pour  $C > 0.12$ . En affichant plutôt  $\tau_M$  en fonction de  $B$  (Figure 8.4(b)), on obtient une douce pente ascendante, tel que prévu par le modèle M3T de Koopmans et al. [53]. Par contre,  $\tau_M$  reste assez petit, ce qui peut être expliqué par la structure en couches minces de l'échantillon [321].

La Figure 8.4 permet de faire une observation notable; les nuages de points associés à toutes les longueurs d'onde sont superposés. Ceci signifie que la longueur d'onde de pompe n'a pas d'incidence significative sur le temps de désaimantation. D'ailleurs, l'encadré de la Figure 8.4(a) montre que pour  $C > 0.12$ , le temps de désaimantation  $\tau_M$  reste en moyenne autour de  $\sim 110$  fs pour toutes les longueurs d'onde de pompe. Il s'agit là d'un résultat qui avait déjà été démontré pour le proche infrarouge (voir la Figure 12.2 de l'annexe II), mais qui s'avère également exact dans le moyen infrarouge.

## 8.2.2 Désaimantation maximale

Selon les résultats présentés au chapitre 5, la désaimantation maximale augmente lorsque la longueur d'onde d'excitation passe de  $0.4 \mu\text{m}$  à  $1.8 \mu\text{m}$  (voir la Figure 5.3(b)). Ici, une analyse semblable est effectuée avec les données obtenues dans l'infrarouge moyen et les résultats sont présentés à la Figure 8.5(a). Pour les longueurs d'onde dans le proche infrarouge, les résultats concordent avec ceux du chapitre 5. En effet, pour une valeur fixe de  $C$ , la désaimantation maximale  $B$  augmente lorsque la longueur d'onde augmente de  $0.8 \mu\text{m}$  vers  $1.8 \mu\text{m}$ .

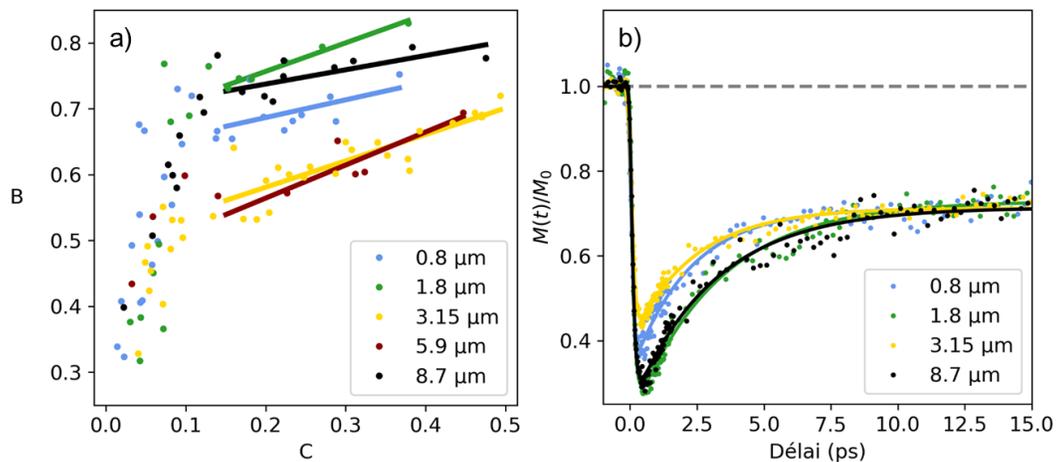


Figure 8.5 Désaimantation maximale

(a) Désaimantation maximale  $B$  en fonction du paramètre  $C$  pour quelques-unes des longueurs d'onde étudiées. Les lignes pleines servent à guider le regard; elles correspondent à une courbe de tendance linéaire de la région  $C > 0.15$ . Étant donné la faible densité de points expérimentaux, la différence de pente entre ces courbes de tendance n'est pas nécessairement significative. (b) Exemples des différences de dynamiques pour la désaimantation pompée dans le proche infrarouge et dans l'infrarouge moyen.

Par contre, dans l'infrarouge moyen, cette tendance ne semble pas continuer. Entre 3.15  $\mu\text{m}$  et 5.9  $\mu\text{m}$ , on observe plutôt une diminution de  $B$  par rapport au proche infrarouge, tandis que les résultats à 8.7  $\mu\text{m}$  sont semblables à ceux du proche infrarouge. Il doit être noté, cependant, que ces variations de dynamiques ne sont pas nécessairement dues à l'impact de la longueur d'onde. Elles semblent plutôt causées par les différentes conditions de génération des impulsions de pompe.

Afin de faciliter la comparaison entre les différentes conditions expérimentales, la Figure 8.6(a) montre le paramètre  $B$  obtenu lorsque  $C = 0.25$  pour chaque longueur d'onde utilisée. Trois régimes peuvent être définis. Dans le proche infrarouge ( $\leq 2.1 \mu\text{m}$ ),  $B$  augmente avec la longueur d'onde. Ensuite,  $B$  diminue brusquement et demeure faible entre 3.15  $\mu\text{m}$  et 5.9  $\mu\text{m}$ . Finalement, à 8.7  $\mu\text{m}$ ,  $B$  reprend approximativement la même valeur qu'à 0.8  $\mu\text{m}$ . Ces régimes correspondent à trois méthodes de génération des impulsions de pompe. Tel que décrit dans la section 8.1, les impulsions dans le proche infrarouge sont générées par un OPA commercial. Dans le régime intermédiaire, un étage supplémentaire d'amplification, une ligne à délai et un cristal de DFG sont ajoutés. À 8.7  $\mu\text{m}$ , la ligne à délai est remplacée par une plaque de verre dispersif. Étant donné la nature sensible de l'accord de phase qui doit être optimisé pour chaque processus non-linéaire, ces différentes méthodes peuvent donner lieu à des caractéristiques temporelles différentes pour chaque longueur d'onde.

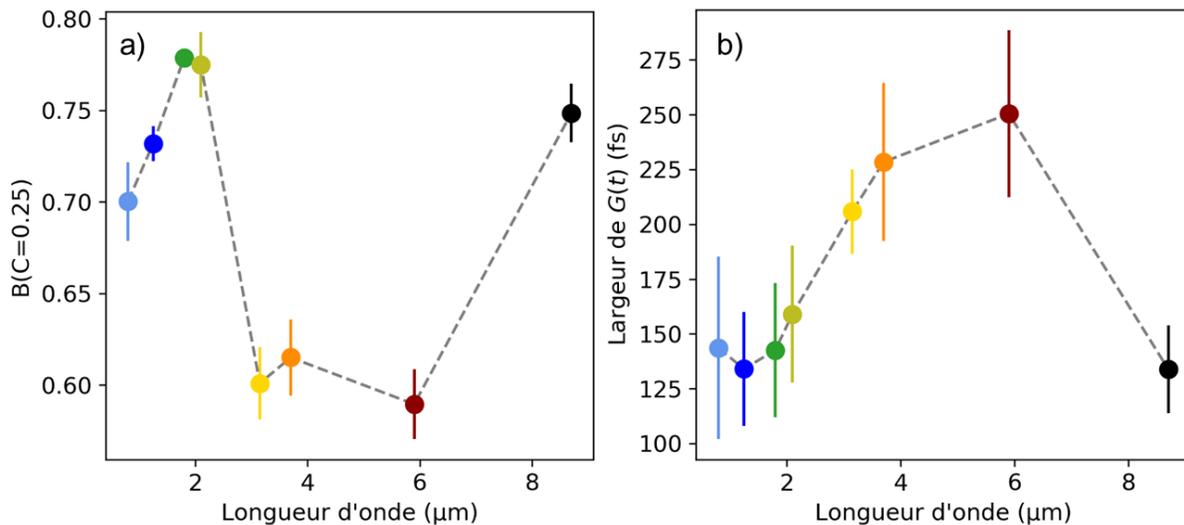


Figure 8.6 Résolution temporelle

(a) Désaimantation maximale obtenue pour différentes longueurs d'onde de pompe lorsque  $C = 0.25$ , tel qu'extrapolé des courbes de tendance linéaires de la Figure 8.5(b). (b) Largeur à mi-hauteur moyenne de la Gaussienne  $G(t)$  optimisée numériquement pour garantir le meilleur ajustement des courbes de tendance bi-exponentielles et ce, à chaque longueur d'onde de pompe.

Pour isoler l'impact des caractéristiques temporelles des impulsions, celle-ci devraient être caractérisées précisément. De plus, puisque les conditions d'accord de phase dans le cristal de DFG dépendent de multiples paramètres et peuvent varier de jour en jour, la caractérisation devrait être effectuée simultanément à l'expérience MOKE. Pour les résultats présentés ici, les particularités des impulsions ne sont pas bien connues. Il est tout de même possible d'extraire de l'information sur la durée des impulsions à partir des courbes de désaimantation. La Figure 8.6(b) montre la largeur à mi-hauteur moyenne de la fonction  $G(t)$  ayant été définie par l'optimisation numérique de la courbe de tendance pour chaque longueur d'onde. La présence des trois même régimes qu'à la Figure 8.6(a) semble indiquer que les impulsions de 3.15  $\mu\text{m}$  à 5.9  $\mu\text{m}$  sont effectivement plus longues que les autres, ce qui peut influencer les dynamiques de la désaimantation ultrarapide [319].

Finalement, les données présentées ci-haut permettent de déduire que la longueur d'onde de pompe n'a pas un impact significatif sur les dynamiques de la désaimantation ultrarapide. Cette conclusion concorde avec les résultats rapportés par Stiehl *et al.* [104] et Chekhov *et al.* [105], qui démontrent que la longueur d'onde n'a aucune incidence lorsque les processus non-locaux de transport de spins sont éliminés. Ici, la composition de l'échantillon ainsi que son épaisseur le rendent favorable aux effets de transport non-locaux au-travers desquels la longueur d'onde peut avoir un impact [16]. Néanmoins, dans l'expérience présente, les effets de la longueur d'onde sont suffisamment faibles pour être supplantés par l'influence des caractéristiques temporelles de l'impulsion de pompe.

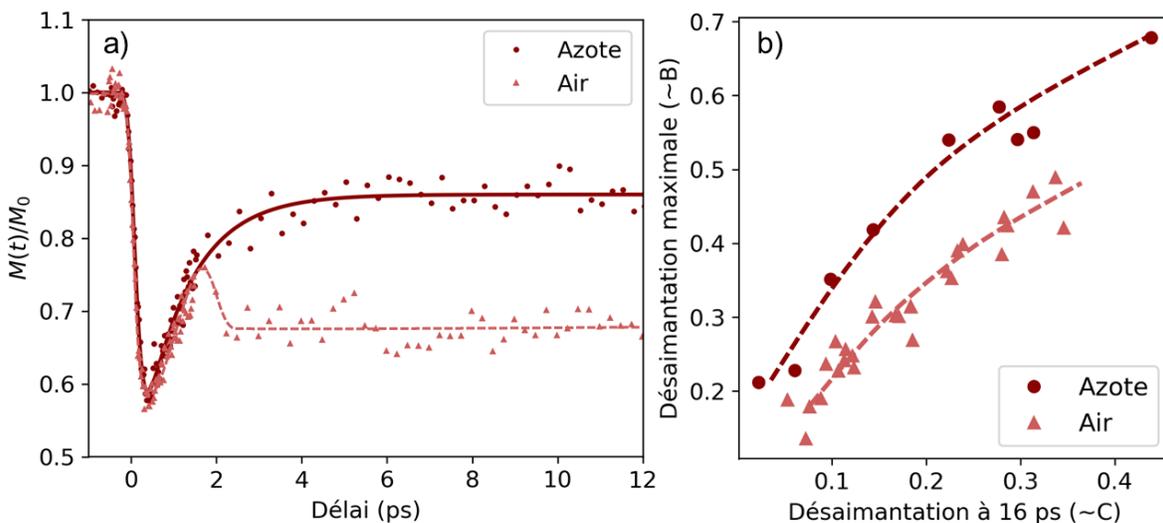
### 8.2.3 Effet de la propagation dans l'air

La région spectrale de l'infrarouge moyen couvre des fréquences qui correspondent à bon nombre de transitions ro-vibrationnelles des molécules présentes dans l'air, telles que le  $\text{CO}_2$  ou l' $\text{H}_2\text{O}$ . Conséquemment, lorsqu'une impulsion infrarouge ultracourte (donc large bande) se propage dans l'air, les molécules sont excitées de façon ro-vibrationnelle. Alors, les régions du spectre correspondant aux énergies de ces transitions sont atténuées, ce qui mène à l'apparition de nombreuses raies d'absorption fines dans le spectre. Les molécules excitées, tant qu'à elles, forment des dipôles oscillants qui émettent de la radiation jusqu'à ce que l'énergie absorbée soit complètement évacuée [322]. Ce processus est nommé décroissance libre de l'induction (ou *free induction decay*). Puisque l'excitation par l'impulsion laser est cohérente, les ondes émises par ces dipôles interfèrent entre elles et forment ainsi un paquet d'onde à large bande qui peut mener à la génération d'un écho de l'impulsion initiale après quelques picosecondes [323]. C'est ainsi

que la formation de répliques de l'impulsion laser peut découler de la simple propagation de la lumière dans l'air.

Afin de vérifier que ces répliques n'interfèrent pas avec l'expérience de MOKE résolue en temps, les mesures dans l'infrarouge moyen ont été reproduites en plongeant le montage sous atmosphère d'azote. L'enceinte recouvrant le montage n'étant pas parfaitement étanche, un apport constant d'azote a été maintenu au cours de ces mesures de façon à garantir un taux d'humidité de moins de 10%. À l'exception de la longueur d'onde de 5.9  $\mu\text{m}$ , les mesures obtenues dans l'azote ne révèlent aucune différence avec celles obtenues dans l'air.

À 5.9  $\mu\text{m}$ , cependant, la différence est frappante. Une comparaison entre la désaimantation ultrarapide mesurée dans l'air et dans l'azote est présentée à la Figure 8.7(a). Dans l'air, la récupération de l'aimantation est moins prononcée. Environ 2 ps après l'excitation, il est même possible de distinguer une seconde chute de l'aimantation qui pourrait être causée par une réplique de l'impulsion de pompe. En effet, Bühlmann et al. [318] ont démontrés que deux impulsions consécutives peuvent entamer le processus de désaimantation ultrarapide même si elles ne sont séparées que par un court délai. Par contre, cette étude est restreinte au cas où les deux impulsions ont la même intensité et pompent un échantillon refroidit, donc une comparaison plus poussée avec les résultats présents est inapplicable.



**Figure 8.7 Effet de la propagation sur le MOKE**

**(a) Désaimantation ultrarapide induite par des impulsions à 5.9  $\mu\text{m}$  lorsque le montage expérimental est plongé dans une atmosphère d'air (triangles) ou d'azote avec moins de 10% d'humidité (cercles). Deux courbes ayant le même niveau de désaimantation maximale sont choisies pour la comparaison. L'optimisation numérique de la courbe de tendance ne peut être utilisée pour cette comparaison, car les données mesurées dans l'air sont mal représentées par l'équation (8.1). La courbe pointillée est donc un lissage des données servant uniquement à guider le regard. (b) Désaimantation maximale (ce qui correspond à peu près au paramètre  $B$ )**

en fonction de la désaimantation atteinte 16 ps après l'excitation (ce qui correspond à peu près au paramètre  $C$ ) pour toutes les courbes obtenues avec une pompe de 5.9  $\mu\text{m}$ . Les courbes pointillées sont un lissage des données servant à guider le regard.

Ici, le résultat de la double excitation est que la désaimantation maximale est relativement faible, ce qui correspond à l'excitation par une seule impulsion, alors que le niveau de désaimantation subsistant après plusieurs picosecondes est relativement élevé, car l'énergie totale transmise à l'échantillon comprend les contributions de deux impulsions séparées temporellement. Ainsi, pour une valeur de  $C$  donnée,  $B$  est plus petit que dans le cas où le montage est plongé sous atmosphère d'azote (Figure 8.7(b)).

Remarquablement, le temps de désaimantation  $\tau_M$  ne semble pas affecté par les caractéristiques temporelles atypiques de l'impulsion de pompe. Lorsque  $C > 0.12$ , le temps moyen de désaimantation est de 109 fs, très près de la valeur obtenue lorsque le montage est plongé dans l'azote, soit 112 fs. Ce résultat constitue un indice supplémentaire que l'impulsion n'est pas simplement allongée par la propagation dans l'air, mais qu'elle acquiert plutôt un profil temporel complexe [318,319].

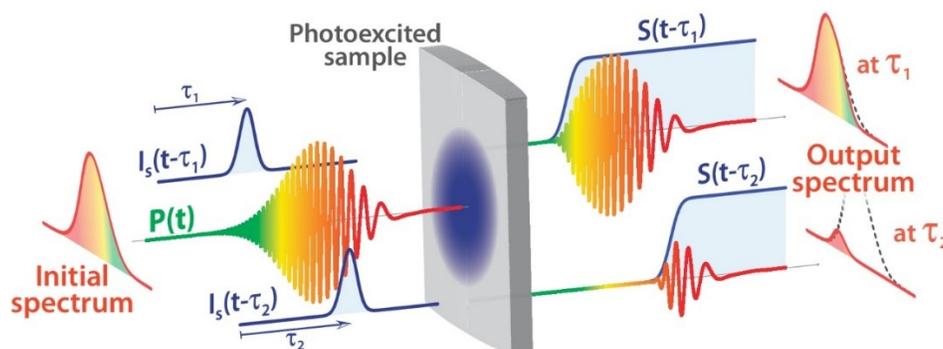


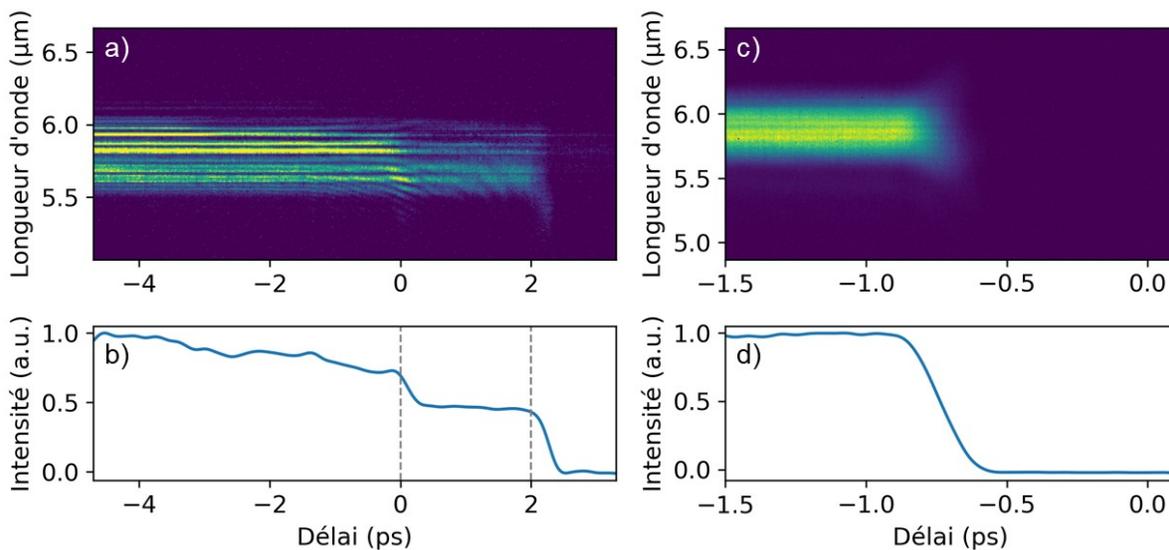
Figure 8.8 Principe du FROSt

Schéma explicatif du principe du FROSt. Une impulsion de pompe,  $I_s(t)$ , sert à exciter l'échantillon semi-conducteur avec un délai variable par rapport au signal à caractériser,  $P(t)$ . Deux exemples de délais,  $\tau_1$  et  $\tau_2$ , sont représentés. Puisque l'échantillon devient opaque sous l'effet de la pompe, le signal  $P(t)$  est partiellement atténué. À la sortie de l'échantillon, le spectre du signal transmis est mesuré à chaque délai, ce qui permet de reconstruire le signal ainsi que le profil de la chute de transmission,  $S(t)$ . Reproduit avec autorisation de [324] © The Optical Society.

Afin de caractériser le profil temporel des impulsions, la commutation optique résolue en temps (FROSt, de l'anglais *Frequency-Resolved Optical Switching*) est utilisée [324]. Le FROSt est une méthode développée au laboratoire ALLS qui permet de caractériser des impulsions sur une large gamme de longueurs d'ondes. Contrairement aux méthodes communes basées sur des interactions non-linéaires telles que le FROG, le FROSt ne nécessite pas d'accord de phase et permet donc de mesurer des signaux de large bande et de faible intensité. Tel que représenté à la Figure 8.8, le principe est le suivant : une première impulsion, la pompe, est envoyée sur un

matériau semi-conducteur. À la surface de l'échantillon, la pompe induit une chute de la transmission du matériau. Après un délai variable, le signal à caractériser est envoyé sur l'échantillon et le spectre transmis est mesuré. Cette mesure est répétée afin d'obtenir un spectrogramme du signal transmis en fonction du délai entre les impulsions. Finalement, un algorithme peut être utilisé pour reconstruire à la fois le signal et le profil de la chute de transmission. Pour ainsi caractériser des impulsions dans l'infrarouge moyen, il est possible d'utiliser directement les impulsions de 800 nm livrées par un laser titane-saphir pour photoexciter un échantillon de silicium ou de germanium.

Des spectrogrammes FROSt des impulsions à 5.9  $\mu\text{m}$  propagées dans l'air et dans l'air sec sont présentés aux Figure 8.9(a) et (c), respectivement. Puisque les molécules d'eau sont les principales sources d'absorption dans cette région du spectre, l'air sec est aussi efficace que l'azote pour réduire les sources de décroissance libre de l'induction.



**Figure 8.9** Profil temporel des impulsions à 5.9  $\mu\text{m}$

(a) Spectrogramme obtenu par la méthode FROSt pour une impulsion à 5.9  $\mu\text{m}$  après propagation dans 250 cm d'air. Aux délais négatifs, l'échantillon n'est pas encore excité par l'impulsion de pompe et tout le signal est détecté; le spectre est criblé de raies d'absorption. Puis, deux chutes d'intensités séparés d'environ 2 ps apparaissent. Ces chutes correspondent à une impulsion et sa réplique. (b) Intensité totale détectée à chaque délai. La réplique (à 0 ps) contient environ 54% de l'énergie de la première impulsion (à 2 ps). (c) Trace FROSt d'une impulsion de même longueur d'onde après propagation dans l'air sec à moins de 10% d'humidité. Les structures fines disparaissent du spectre, ce qui mène à une impulsion unique. (d) Profil d'intensité de cette trace.

En comparant les spectres obtenus à des délais négatifs, c'est-à-dire avant la photoexcitation de l'échantillon, l'effet de l'absorption de l'eau est déjà évident. Dans l'air, le spectre est irrégulier et contient de nombreuses raies d'absorption. Dans l'air sec, cependant, le spectre est plus uniforme. Alors que le délai augmente, la queue des impulsions est progressivement atténuée

par la chute de transmission de l'échantillon. Sur la Figure 8.9(a), on observe deux chutes d'intensité successives qui correspondent à l'impulsion principale et une réplique causée par la décroissance libre de l'induction. Ces impulsions sont séparées par environ 2 ps, ce qui correspond au délai entre les deux chutes d'aimantation visibles à la Figure 8.7(a). Il est donc vraisemblable que les dynamiques surprenantes de l'aimantation observées dans l'air soient causées par des répliques de l'impulsion de pompe induites par la décroissance libre de l'induction des molécules d'eau présentes dans l'atmosphère.

### **8.3 Conclusion**

En conclusion, il est démontré que la désaimantation ultrarapide peut être induite efficacement par une impulsion dans l'infrarouge moyen dans un échantillon multicouche de métaux de transition. Les résultats permettent de définir que même si des effets non-locaux de transport de spins sont présents dans l'échantillon, la longueur d'onde de l'impulsion de pompe n'influence pas les dynamiques de la désaimantation de manière significative. Par contre, les variations du profil temporel des impulsions ont un impact non négligeable, car la désaimantation est influencée par la durée de l'impulsion et par la présence de répliques. D'ailleurs, dans l'infrarouge moyen, l'absorption de la lumière par les molécules présentes dans l'air constitue une source inhérente de répliques via la décroissance libre de l'induction. Ce phénomène doit donc être tenu en compte pour toute expérience ultrarapide employant des impulsions dans cette région du spectre. Ainsi, les résultats obtenus ici pour la désaimantation ultrarapide peuvent servir d'appel à la prudence pour d'autres types d'expériences, par exemple pour la spectroscopie ultrarapide dans l'infrarouge moyen, qui continue à gagner en popularité [325].

## 9 CONCLUSION

---

Dans cette thèse, plusieurs expériences ont été présentées qui permettent d'étudier la désaimantation ultrarapide sous des conditions auparavant peu explorées. Le succès des méthodes utilisées repose en grande partie sur le développement de sources de lumières ultrarapides spécifiquement adaptées à ces applications. En retour, les exigences de chaque application en termes de flux de photons, d'énergie des photons et de durée des impulsions guident le développement de nouvelles sources de lumières. L'avancement des connaissances sur les phénomènes ultrarapides tels que la désaimantation va donc de pair avec l'évolution des sources de lumières disponibles.

Dans les travaux présentés ici, le développement d'une source à haut flux de photons autour de 155 eV a permis de sonder la désaimantation ultrarapide au seuil N d'absorption du terbium pour la première fois et ainsi d'observer un mouvement ultrarapide des murs de domaines magnétiques. Une source de photons à 60 eV couplée à une source de longueur d'onde variable du visible au proche infrarouge a permis d'étudier l'effet de la longueur d'onde d'excitation sur la désaimantation ultrarapide dans le cobalt. Ces travaux ont ensuite mené au développement d'une nouvelle technique de génération d'harmoniques d'ordres élevés qui permet d'accorder le spectre harmonique en contrôlant le profil spatio-temporel des impulsions laser utilisées pour la génération. Finalement, une source réglable dans l'infrarouge moyen a permis d'étudier l'effet des caractéristiques de l'impulsion de pompe sur la désaimantation ultrarapide dans un échantillon multicouche de métaux de transitions. L'optimisation analytique du montage MOKE, qui a permis de maximiser le rapport signal sur bruit, a également joué un rôle essentiel dans le succès de ce dernier projet.

À travers ces résultats, l'objectif principal d'étudier la désaimantation dans des régimes inexplorés a été atteint. Toutefois, bien du travail reste encore à faire afin de pouvoir formuler un modèle unifié de la désaimantation ultrarapide. En effet, les conclusions présentées dans ce document ne sont pas nécessairement transférables à d'autres types d'échantillons ou à différentes conditions expérimentales. Par exemple, le changement ultrarapide de la structure de domaines rapporté au chapitre 4 dans un alliage de terbium/cobalt n'a pu être observé lorsque l'échantillon est faiblement excité [310]. Lorsque l'excitation est suffisante, des phénomènes semblables mais se produisant sur différentes échelles de temps ont été constatés dans d'autres types d'échantillons [50,213,326]. De façon similaire, l'effet de la longueur d'onde rapporté dans la littérature semble dépendre grandement de la structure et de la composition de l'échantillon. Ceci

illustre la nécessité de recourir à des études diversifiées afin d'améliorer notre compréhension de la désaimantation ultrarapide dans le futur.

Pour exécuter de tels travaux de recherche, il est essentiel d'avoir accès à des sources de lumière variées. Le développement de nouvelles sources demeure donc un domaine de recherche d'importance. En particulier, les sources de génération d'harmoniques d'ordres élevés, qui sont bien plus accessibles que les sources de rayonnement XUV et X de grandes envergure telles que les synchrotrons et les FELs, ont le potentiel d'avoir un impact majeur sur le futur de la science ultrarapide. Tel que démontré au chapitre 6, le contrôle des caractéristiques spatio-temporelles des impulsions laser utilisées pour la génération constitue une avenue prometteuse pour créer des sources harmoniques versatiles. D'autres études devront cependant être complétées afin de déterminer les limites de cette méthode.

En définitive, les travaux rapportés dans ce document représentent un petit pas vers une meilleure compréhension des phénomènes magnétiques ultrarapides. Dans le futur, d'autres expériences devront être menées dans le but d'unir les différents résultats présents dans la littérature et formuler un modèle universel qui permettra, on l'espère, de créer de nouvelles technologies basées sur ces phénomènes. Cela représente de grands défis scientifiques et technologiques, mais étant donné les avancées qui s'opèrent constamment à travers chaque domaine de recherche, la porte est grande ouverte pour la suite.

## 10 BIBLIOGRAPHIE

---

- [1] A. McAfee et E. Brynjolfsson, « Big Data: The Management Revolution », *Harv. Bus. Rev.* **90**, 60-68 (2012).
- [2] T. M. Coughlin, *Digital Storage in Consumer Electronics*, 2e éd. (Springer International Publishing, 2018).
- [3] R. Kikuchi, « On the Minimum of Magnetization Reversal Time », *J. Appl. Phys.* **27**, 1352-1357 (1956).
- [4] H. W. Schumacher, C. Chappert, R. C. Sousa, P. P. Freitas, et J. Miltat, « Quasiballistic Magnetization Reversal », *Phys. Rev. Lett.* **90**, 017204 (2003).
- [5] K. Cai, Z. Zhu, J. M. Lee, R. Mishra, L. Ren, S. D. Pollard, P. He, G. Liang, K. L. Teo, et al., « Ultrafast and energy-efficient spin-orbit torque switching in compensated ferrimagnets », *Nat. Electron.* **3**, 37-42 (2020).
- [6] D. Sander, S. O. Valenzuela, D. Makarov, C. H. Marrows, E. E. Fullerton, P. Fischer, J. McCord, P. Vavassori, S. Mangin, et al., « The 2017 Magnetism Roadmap », *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 363001 (2017).
- [7] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, et J.-Y. Bigot, « Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel », *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
- [8] C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, R. Mitzner, T. Quast, K. Holldack, S. Khan, C. Lupulescu, E. F. Aziz, et al., « Femtosecond modification of electron localization and transfer of angular momentum in nickel », *Nat. Mater.* **6**, 740-743 (2007).
- [9] P. Scheid, Q. Remy, S. Lebègue, G. Malinowski, et S. Mangin, « Light induced ultrafast magnetization dynamics in metallic compounds », *J. Magn. Magn. Mater.* **560**, 169596 (2022).
- [10] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, et Th. Rasing, « All-Optical Magnetic Recording with Circularly Polarized Light », *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007).
- [11] C. Rullière, Éd., *Femtosecond Laser Pulses: Principles and Experiments*, 2nd éd. (Springer, New York, 2005).
- [12] S. Khan, « Ultrashort Pulses from Synchrotron Radiation Sources », dans *Synchrotron Light Sources and Free-Electron Lasers: Accelerator Physics, Instrumentation and Science Applications*, E. J. Jaeschke, S. Khan, J. R. Schneider, et J. B. Hastings, Éd. (Springer International Publishing, 2016).
- [13] U. Bierbrauer, S. T. Weber, D. Schummer, M. Barkowski, A.-K. Mahro, S. Mathias, H. Christian Schneider, B. Stadtmüller, M. Aeschlimann, et al., « Ultrafast magnetization dynamics in Nickel: impact of pump photon energy », *J. Phys. Condens. Matter* **29**, 244002 (2017).
- [14] V. Cardin, T. Balciunas, K. Légaré, A. Baltuska, H. Ibrahim, E. Jal, B. Vodungbo, N. Jaouen, C. Varin, et al., « Wavelength scaling of ultrafast demagnetization in Co/Pt multilayers », *Phys. Rev. B* **101**, 054430 (2020).
- [15] F. Mertens, M. Terschanski, D. Mönkebüscher, S. Ponzoni, D. Bossini, et M. Cinchetti, « Wide spectral range ultrafast pump-probe magneto-optical spectrometer at low temperature, high-magnetic and electric fields », *Rev. Sci. Instrum.* **91**, 113001 (2020).
- [16] C. Seibel, M. Weber, M. Stiehl, S. T. Weber, M. Aeschlimann, H. C. Schneider, B. Stadtmüller, et B. Rethfeld, « Control of transport phenomena in magnetic heterostructures by wavelength modulation », *arXiv:2112.04780 [cond-mat]* (2021).
- [17] R. Safaei, G. Fan, O. Kwon, K. Légaré, P. Lassonde, B. E. Schmidt, H. Ibrahim, et F. Légaré, « High-energy multidimensional solitary states in hollow-core fibres », *Nat. Photonics* **14**, 733-739 (2020).
- [18] G. Fan, K. Légaré, V. Cardin, X. Xie, R. Safaei, E. Kaksis, G. Andriukaitis, A. Pugžlys, B. E. Schmidt, et al., « Ultrafast magnetic scattering on ferrimagnets enabled by a bright Yb-based soft x-ray source », *Optica* **9**, 399-407 (2022).
- [19] K. Légaré, R. Safaei, G. Barrette, L. Arias, P. Lassonde, H. Ibrahim, B. Vodungbo, E. Jal, J. Lüning, et al., « Raman Red-Shift Compressor: A Simple Approach for Scaling the High Harmonic Generation Cut-Off », *Adv. Photonics Res.* **2**, 2100113 (2021).
- [20] K. Légaré, V. Chardonnet, I. Bermúdez Macias, M. Hennes, R. Delaunay, P. Lassonde, F. Légaré, G. Lambert, E. Jal, et al., « Analytic description and optimization of magneto-optical Kerr setups with photoelastic modulation », *Rev. Sci. Instrum.* **93**, 073001 (2022).
- [21] S. Blundell, *Magnetism in condensed matter* (Oxford University Press, Oxford ; New York, 2001).
- [22] J. M. D. Coey, *Magnetism and Magnetic Materials* (Cambridge University Press, 2010).

- [23] Y. Tokura et N. Nagaosa, « Orbital Physics in Transition-Metal Oxides », *Science* **288**, 462-468 (2000).
- [24] J. Stöhr et H. C. Siegmann, *Magnetism: from fundamentals to nanoscale dynamics* (Springer, Berlin ; New York, 2006).
- [25] C. Kittel, *Introduction to solid state physics*, 8e éd. (Wiley, Hoboken, NJ, 2004).
- [26] M. Matsubara, « Ultrafast Optical Control of Magnetic Interactions in Carrier-Density-Controlled Ferromagnetic Semiconductors », *Appl. Sci.* **9**, 948 (2019).
- [27] C. H. Back, D. Weller, J. Heidmann, D. Mauri, D. Guarisco, E. L. Garwin, et H. C. Siegmann, « Magnetization Reversal in Ultrashort Magnetic Field Pulses », *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4 (1998).
- [28] D.-K. Lee et K.-J. Lee, « Spin-orbit Torque Switching of Perpendicular Magnetization in Ferromagnetic Trilayers », *Sci. Rep.* **10**, 1772 (2020).
- [29] I. M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, et al., « Perpendicular switching of a single ferromagnetic layer induced by in-plane current injection », *Nature* **476**, 189-193 (2011).
- [30] O. J. Lee, D. C. Ralph, et R. A. Buhrman, « Spin-torque-driven ballistic precessional switching with 50 ps impulses », *Appl. Phys. Lett.* **99**, 102507 (2011).
- [31] B. Vodungbo, J. Gautier, G. Lambert, A. B. Sardinha, M. Lozano, S. Sebban, M. Ducouso, W. Boutu, K. Li, et al., « Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network », *Nat. Commun.* **3** (2012).
- [32] 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* **465**, 458-461 (2010).
- [33] C. Dornes, Y. Acremann, M. Savoini, M. Kubli, M. J. Neugebauer, E. Abreu, L. Huber, G. Lantz, C. A. F. Vaz, et al., « The ultrafast Einstein–de Haas effect », *Nature* **565**, 209-212 (2019).
- [34] A. Vaterlaus, T. Beutler, et F. Meier, « Spin-lattice relaxation time of ferromagnetic gadolinium determined with time-resolved spin-polarized photoemission », *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3314-3317 (1991).
- [35] A. Vaterlaus, T. Beutler, D. Guarisco, M. Lutz, et F. Meier, « Spin-lattice relaxation in ferromagnets studied by time-resolved spin-polarized photoemission », *Phys. Rev. B* **46**, 5280-5286 (1992).
- [36] M. B. Agranat, S. I. Ashitkov, A. B. Granovskii, et G. I. Rukman, « Interaction of picosecond laser pulses with the electron, spin, and phonon subsystems of nickel », *Zh. Eksp. Teor. Fiz* **86**, 10 (1984).
- [37] P. M. Oppeneer et A. Liebsch, « Ultrafast demagnetization in Ni: theory of magneto-optics for non-equilibrium electron distributions », *J. Phys. Condens. Matter* **16**, 5519-5530 (2004).
- [38] B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, et W. J. M. de Jonge, « Ultrafast Magneto-Optics in Nickel: Magnetism or Optics? », *Phys. Rev. Lett.* **85**, 844-847 (2000).
- [39] B. Koopmans, M. van Kampen, et W. J. M. de Jonge, « Experimental access to femtosecond spin dynamics », *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, S723-S736 (2003).
- [40] G. Ju, A. Vertikov, A. V. Nurmikko, C. Canady, G. Xiao, R. F. C. Farrow, et A. Cebollada, « Ultrafast nonequilibrium spin dynamics in a ferromagnetic thin film », *Phys. Rev. B* **57**, R700-R703 (1998).
- [41] T. Ogasawara, K. Ohgushi, Y. Tomioka, K. S. Takahashi, H. Okamoto, M. Kawasaki, et Y. Tokura, « General Features of Photoinduced Spin Dynamics in Ferromagnetic and Ferrimagnetic Compounds », *Phys. Rev. Lett.* **94**, 087202 (2005).
- [42] J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, et K. H. Bennemann, « Nonequilibrium Magnetization Dynamics of Nickel », *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4861-4864 (1997).
- [43] J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, J. Hohlfeld, et E. Matthias, « Magnetization dynamics of Ni and Co films on Cu(001) and of bulk nickel surfaces », *Phys. Rev. B* **59**, R6608-R6611 (1999).
- [44] A. Scholl, L. Baumgarten, R. Jacquemin, et W. Eberhardt, « Ultrafast Spin Dynamics of Ferromagnetic Thin Films Observed by fs Spin-Resolved Two-Photon Photoemission », *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5146-5149 (1997).
- [45] H. Petek et S. Ogawa, « Femtosecond time-resolved two-photon photoemission studies of electron dynamics in metals », *Prog. Surf. Sci.* **56**, 239-310 (1997).
- [46] A. F. Bartelt, A. Comin, J. Feng, J. R. Nasiatka, T. Eimüller, B. Ludescher, G. Schütz, H. A. Padmore, A. T. Young, et al., « Element-specific spin and orbital momentum dynamics of Fe/Gd multilayers », *Appl. Phys.*

- Letf.* **90**, 162503 (2007).
- [47] H. A. Durr, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, R. Mitzner, T. Quast, K. Holldack, S. Khan, C. Lupulescu, et al., « Ultrafast Electron and Spin Dynamics in Nickel Probed With Femtosecond X-Ray Pulses », *IEEE Trans. Magn.* **44**, 1957-1961 (2008).
- [48] A. Melnikov, H. Prima-Garcia, M. Lisowski, T. Gießel, R. Weber, R. Schmidt, C. Gahl, N. M. Bulgakova, U. Bovensiepen, et al., « Nonequilibrium Magnetization Dynamics of Gadolinium Studied by Magnetic Linear Dichroism in Time-Resolved  $4f$  Core-Level Photoemission », *Phys. Rev. Lett.* **100**, 107202 (2008).
- [49] B. Wu, D. Zhu, Y. Acremann, T. A. Miller, A. M. Lindenberg, O. Hellwig, J. Stöhr, et A. Scherz, « Observations of laser induced magnetization dynamics in Co/Pd multilayers with coherent x-ray scattering », *Appl. Phys. Lett.* **99**, 252505 (2011).
- [50] B. Pfau, S. Schaffert, L. Müller, C. Gutt, A. Al-Shemmary, F. Büttner, R. Delaunay, S. Düsterer, S. Flewett, et al., « Ultrafast optical demagnetization manipulates nanoscale spin structure in domain walls », *Nat. Commun.* **3**, 1100 (2012).
- [51] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, et T. L. Perelman, « Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses », *Zh. Eksp. Teor. Fiz* **66**, 776-781 (1974).
- [52] A. Kirilyuk, A. V. Kimel, et T. Rasing, « Laser-induced magnetization dynamics and reversal in ferrimagnetic alloys », *Rep. Prog. Phys.* **76**, 026501 (2013).
- [53] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, et M. Aeschlimann, « Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization », *Nat. Mater.* **9**, 259-265 (2010).
- [54] P.-W. Ma, S. L. Dudarev, et C. H. Woo, « Spin-lattice-electron dynamics simulations of magnetic materials », *Phys. Rev. B* **85**, 184301 (2012).
- [55] A. Manchon, Q. Li, L. Xu, et S. Zhang, « Theory of laser-induced demagnetization at high temperatures », *Phys. Rev. B* **85**, 064408 (2012).
- [56] J. Kimling, J. Kimling, R. B. Wilson, B. Hebler, M. Albrecht, et D. G. Cahill, « Ultrafast demagnetization of FePt:Cu thin films and the role of magnetic heat capacity », *Phys. Rev. B* **90**, 224408 (2014).
- [57] J.-H. Shim, A. A. Syed, J.-I. Kim, H.-G. Piao, S.-H. Lee, S.-Y. Park, Y. S. Choi, K. M. Lee, H.-J. Kim, et al., « Role of non-thermal electrons in ultrafast spin dynamics of ferromagnetic multilayer », *Sci. Rep.* **10**, 6355 (2020).
- [58] B. Koopmans, J. J. M. Ruigrok, F. D. Longa, et W. J. M. de Jonge, « Unifying Ultrafast Magnetization Dynamics », *Phys. Rev. Lett.* **95**, 267207 (2005).
- [59] R. J. Elliott, « Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors », *Phys. Rev.* **96**, 266-279 (1954).
- [60] Y. Yafet, *Solid state physics: advances in research and applications*, F. Seitz et D. Turnbull, Éd. (Academic Press Inc., New York; London, 1963).
- [61] C. La-O-Vorakiat, E. Turgut, C. A. Teale, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, S. Mathias, M. Aeschlimann, C. M. Schneider, J. M. Shaw, et al., « Ultrafast Demagnetization Measurements Using Extreme Ultraviolet Light: Comparison of Electronic and Magnetic Contributions », *Phys. Rev. X* **2**, 011005 (2012).
- [62] S. Mathias, C. La-O-Vorakiat, P. Grychtol, P. Granitzka, E. Turgut, J. M. Shaw, R. Adam, H. T. Nembach, M. E. Siemens, et al., « Probing the timescale of the exchange interaction in a ferromagnetic alloy », *Proceedings of the National Academy of Sciences* **109**, 4792-4797 (2012).
- [63] M. Lisowski, P. A. Loukakos, A. Melnikov, I. Radu, L. Ungureanu, M. Wolf, et U. Bovensiepen, « Femtosecond Electron and Spin Dynamics in Gd(0001) Studied by Time-Resolved Photoemission and Magneto-optics », *Phys. Rev. Lett.* **95**, 137402 (2005).
- [64] M. Wietstruk, A. Melnikov, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, M. Sultan, C. Gahl, M. Weinelt, H. A. Dürr, et al., « Hot-Electron-Driven Enhancement of Spin-Lattice Coupling in Gd and Tb  $4f$  Ferromagnets Observed by Femtosecond X-Ray Magnetic Circular Dichroism », *Phys. Rev. Lett.* **106** (2011).
- [65] P. Kurz, G. Bihlmayer, et S. Blügel, « Magnetism and electronic structure of hcp Gd and the Gd(0001) surface », *J. Phys.: Condens. Matter* **14**, 6353-6371 (2002).
- [66] D. Steiauf et M. Fähnle, « Elliott-Yafet mechanism and the discussion of femtosecond magnetization

- dynamics », *Phys. Rev. B* **79**, 140401 (2009).
- [67] K. Carva, M. Battiato, et P. M. Oppeneer, « Ab Initio Investigation of the Elliott-Yafet Electron-Phonon Mechanism in Laser-Induced Ultrafast Demagnetization », *Phys. Rev. Lett.* **107**, 207201 (2011).
- [68] S. Essert et H. C. Schneider, « Electron-phonon scattering dynamics in ferromagnetic metals and their influence on ultrafast demagnetization processes », *Phys. Rev. B* **84**, 224405 (2011).
- [69] B. Y. Mueller, A. Baral, S. Vollmar, M. Cinchetti, M. Aeschlimann, H. C. Schneider, et B. Rethfeld, « Feedback Effect during Ultrafast Demagnetization Dynamics in Ferromagnets », *Phys. Rev. Lett.* **111**, 167204 (2013).
- [70] C. Illg, M. Haag, et M. Fähnle, « Ultrafast demagnetization after laser irradiation in transition metals: *Ab initio* calculations of the spin-flip electron-phonon scattering with reduced exchange splitting », *Phys. Rev. B* **88**, 214404 (2013).
- [71] M. Haag, C. Illg, et M. Fähnle, « Role of electron-magnon scatterings in ultrafast demagnetization », *Phys. Rev. B* **90**, 014417 (2014).
- [72] K. Leckron, S. Vollmar, et H. C. Schneider, « Ultrafast spin-lattice relaxation in ferromagnets including spin-orbit fields », *Phys. Rev. B* **96**, 140408 (2017).
- [73] V. Shokeen, M. Sanchez Piaia, J.-Y. Bigot, T. Müller, P. Elliott, J. K. Dewhurst, S. Sharma, et E. K. U. Gross, « Spin Flips versus Spin Transport in Nonthermal Electrons Excited by Ultrashort Optical Pulses in Transition Metals », *Phys. Rev. Lett.* **119**, 107203 (2017).
- [74] G. P. Zhang et W. Hübner, « Laser-Induced Ultrafast Demagnetization in Ferromagnetic Metals », *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3025-3028 (2000).
- [75] A. Einstein et W. J. de Haas, « Experimenteller Nachweis der Ampèreschen Molekularströme », *Verhandl. Deut. Phys. Ges.* **17**, 152-170 (1915).
- [76] M. Fähnle, M. Haag, et C. Illg, « Is the angular momentum of a ferromagnetic sample after exposure to a fs laser pulse conserved? », *J. Magn. Magn. Mater.* **347**, 45-46 (2013).
- [77] L. Zhang et Q. Niu, « Angular Momentum of Phonons and the Einstein–de Haas Effect », *Phys. Rev. Lett.* **112**, 085503 (2014).
- [78] T. Tsatsoulis, C. Illg, M. Haag, B. Y. Mueller, L. Zhang, et M. Fähnle, « Ultrafast demagnetization after femtosecond laser pulses: Transfer of angular momentum from the electronic system to magnetoelastic spin-phonon modes », *Phys. Rev. B* **93**, 134411 (2016).
- [79] S. R. Tauchert, M. Volkov, D. Ehberger, D. Kazenwadel, M. Evers, H. Lange, A. Donges, A. Book, W. Kreuzpaintner, et al., « Polarized phonons carry angular momentum in ultrafast demagnetization », *Nature* **602**, 73-77 (2022).
- [80] M. Krauß, T. Roth, S. Alebrand, D. Steil, M. Cinchetti, M. Aeschlimann, et H. C. Schneider, « Ultrafast demagnetization of ferromagnetic transition metals: The role of the Coulomb interaction », *Phys. Rev. B* **80**, 180407 (2009).
- [81] E. Carpena, E. Mancini, C. Dallera, M. Brenna, E. Puppini, et S. De Silvestri, « Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron films », *Phys. Rev. B* **78** (2008).
- [82] B. Frietsch, A. Donges, R. Carley, M. Teichmann, J. Bowlan, K. Döbrich, K. Carva, D. Legut, P. M. Oppeneer, et al., « The role of ultrafast magnon generation in the magnetization dynamics of rare-earth metals », *Sci. Adv.* **6**, eabb1601 (2020).
- [83] J.-Y. Bigot, M. Vomir, et E. Beaurepaire, « Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses », *Nat. Phys.* **5**, 515-520 (2009).
- [84] M. Aeschlimann, M. Bauer, S. Pawlik, W. Weber, R. Burgermeister, D. Oberli, et H. C. Siegmann, « Ultrafast Spin-Dependent Electron Dynamics in fcc Co », *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5158-5161 (1997).
- [85] V. P. Zhukov, E. V. Chulkov, et P. M. Echenique, « Lifetimes and inelastic mean free path of low-energy excited electrons in Fe, Ni, Pt, and Au: *Ab initio*  $\text{GW}+\text{T}$  calculations », *Phys. Rev. B* **73**, 125105 (2006).
- [86] G. Malinowski, F. Dalla Longa, J. H. H. Rietjens, P. V. Paluskar, R. Huijink, H. J. M. Swagten, et B. Koopmans, « Control of speed and efficiency of ultrafast demagnetization by direct transfer of spin angular momentum », *Nat. Phys.* **4**, 855-858 (2008).
- [87] M. Battiato, K. Carva, et P. M. Oppeneer, « Superdiffusive Spin Transport as a Mechanism of Ultrafast

- Demagnetization », *Phys. Rev. Lett.* **105** (2010).
- [88] M. Battiato, K. Carva, et P. M. Oppeneer, « Theory of laser-induced ultrafast superdiffusive spin transport in layered heterostructures », *Phys. Rev. B* **86** (2012).
- [89] A. Melnikov, I. Razdolski, T. O. Wehling, E. Th. Papaioannou, V. Roddatis, P. Fumagalli, O. Aktsipetrov, A. I. Lichtenstein, et U. Bovensiepen, « Ultrafast Transport of Laser-Excited Spin-Polarized Carriers in Au / Fe / MgO ( 001 ) », *Phys. Rev. Lett.* **107**, 076601 (2011).
- [90] D. Rudolf, C. La-O-Vorakiat, M. Battiato, R. Adam, J. M. Shaw, E. Turgut, P. Maldonado, S. Mathias, P. Grychtol, et al., « Ultrafast magnetization enhancement in metallic multilayers driven by superdiffusive spin current », *Nat. Commun.* **3**, 1037 (2012).
- [91] E. Turgut, C. La-o-vorakiat, J. M. Shaw, P. Grychtol, H. T. Nembach, D. Rudolf, R. Adam, M. Aeschlimann, C. M. Schneider, et al., « Controlling the Competition between Optically Induced Ultrafast Spin-Flip Scattering and Spin Transport in Magnetic Multilayers », *Phys. Rev. Lett.* **110**, 197201 (2013).
- [92] A. Eschenlohr, M. Battiato, P. Maldonado, N. Pontius, T. Kachel, K. Holldack, R. Mitzner, A. Föhlisch, P. M. Oppeneer, et al., « Ultrafast spin transport as key to femtosecond demagnetization », *Nat. Mater.* **12**, 332-336 (2013).
- [93] A. R. Khorsand, M. Savoini, A. Kirilyuk, et T. Rasing, « Optical excitation of thin magnetic layers in multilayer structures », *Nat. Mater.* **13**, 101-102 (2014).
- [94] A. Eschenlohr, M. Battiato, P. Maldonado, N. Pontius, T. Kachel, K. Holldack, R. Mitzner, A. Föhlisch, P. M. Oppeneer, et al., « Reply to “Optical excitation of thin magnetic layers in multilayer structures” », *Nat. Mater.* **13**, 102-103 (2014).
- [95] B. Vodungbo, B. Tudu, J. Perron, R. Delaunay, L. Müller, M. H. Berntsen, G. Grübel, G. Malinowski, C. Weier, et al., « Indirect excitation of ultrafast demagnetization », *Sci. Rep.* **6**, 18970 (2016).
- [96] A. J. Schellekens, W. Verhoeven, T. N. Vader, et B. Koopmans, « Investigating the contribution of superdiffusive transport to ultrafast demagnetization of ferromagnetic thin films », *Appl. Phys. Lett.* **102**, 252408 (2013).
- [97] J. Wieczorek, A. Eschenlohr, B. Weidtmann, M. Rösner, N. Berggaard, A. Tarasevitch, T. O. Wehling, et U. Bovensiepen, « Separation of ultrafast spin currents and spin-flip scattering in Co/Cu(001) driven by femtosecond laser excitation employing the complex magneto-optical Kerr effect », *Phys. Rev. B* **92**, 174410 (2015).
- [98] J. K. Dewhurst, P. Elliott, S. Shallcross, E. K. U. Gross, et S. Sharma, « Laser-Induced Intersite Spin Transfer », *Nano Lett.* **18**, 1842-1848 (2018).
- [99] F. Siegrist, J. A. Gessner, M. Ossiander, C. Denker, Y.-P. Chang, M. C. Schröder, A. Guggenmos, Y. Cui, J. Walowski, et al., « Light-wave dynamic control of magnetism », *Nature* **571**, 240-244 (2019).
- [100] P. Drude, « Zur Elektronentheorie der Metalle », *Annalen der Physik* **306**, 566-613 (1900).
- [101] P. Drude, « Zur Elektronentheorie der Metalle; II. Teil. Galvanomagnetische und thermomagnetische Effecte », *Annalen der Physik* **308**, 369-402 (1900).
- [102] D. J. Griffiths, *Introduction to Electrodynamics*, 3rd éd. (Pearson Education, Upper Saddle River, N.J., 1998).
- [103] A. F. J. Levi, « The Drude model », dans *Essential Classical Mechanics for Device Physics* (2016).
- [104] M. Stiehl, M. Weber, C. Seibel, J. Hofer, S. T. Weber, D. M. Nenno, H. C. Schneider, B. Rethfeld, B. Stadtmüller, et al., « Role of primary and secondary processes in the ultrafast spin dynamics of nickel », *Appl. Phys. Lett.* **120**, 062410 (2022).
- [105] A. L. Chekhov, Y. Behovits, J. J. F. Heitz, C. Denker, D. A. Reiss, M. Wolf, M. Weinelt, P. W. Brouwer, M. Münzenberg, et al., « Ultrafast Demagnetization of Iron Induced by Optical versus Terahertz Pulses », *Phys. Rev. X* **11**, 041055 (2021).
- [106] K. Bobowski, M. Gleich, N. Pontius, C. Schüßler-Langeheine, C. Trabant, M. Wietstruk, B. Frietsch, et M. Weinelt, « Influence of the pump pulse wavelength on the ultrafast demagnetization of Gd(0 0 1) thin films », *J. Phys. Condens. Matter* **29**, 234003 (2017).
- [107] J. Kerr, « XLIII. On rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet », *Lond. Edinb. Dublin Philos. Mag. J. Sci.* **3**, 321-343 (1877).
- [108] T. Haider, « A Review of Magneto-Optic Effects and Its Application », *Int. J. Electromagn. Appl.* **7**, 17-24

- (2017).
- [109] K. Shinagawa, « Faraday and Kerr Effects in Ferromagnets », dans *Magneto-Optics*, S. Sugano et N. Kojima, Éd. (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2000).
  - [110] E. Hecht, *Optics*, 4e éd. (Addison-Wesley, 2001).
  - [111] U. Tiwari, R. Ghosh, et P. Sen, « Theory of magneto-optic Kerr effects », *Phys. Rev. B* **49**, 2159-2162 (1994).
  - [112] L. Guidoni, E. Beaurepaire, et J.-Y. Bigot, « Magneto-optics in the Ultrafast Regime: Thermalization of Spin Populations in Ferromagnetic Films », *Phys. Rev. Lett.* **89**, 017401 (2002).
  - [113] J.-Y. Bigot, L. Guidoni, E. Beaurepaire, et P. N. Saeta, « Femtosecond Spectrotemporal Magneto-optics », *Phys. Rev. Lett.* **93**, 077401 (2004).
  - [114] G. P. Zhang, W. Hübner, G. Lefkidis, Y. Bai, et T. F. George, « Paradigm of the time-resolved magneto-optical Kerr effect for femtosecond magnetism », *Nat. Phys.* **5**, 499-502 (2009).
  - [115] K. Carva, M. Battiato, et P. M. Oppeneer, « Is the controversy over femtosecond magneto-optics really solved? », *Nat. Phys.* **7**, 665-665 (2011).
  - [116] I. Razdolski, A. Alekhin, U. Martens, D. Bürstel, D. Diesing, M. Münzenberg, U. Bovensiepen, et A. Melnikov, « Analysis of the time-resolved magneto-optical Kerr effect for ultrafast magnetization dynamics in ferromagnetic thin films », *J. Phys. Condens. Matter* **29**, 174002 (2017).
  - [117] E. Carpene, F. Boschini, H. Hedayat, C. Piovera, C. Dallera, E. Puppini, M. Mansurova, M. Münzenberg, X. Zhang, et al., « Measurement of the magneto-optical response of Fe and CrO<sub>2</sub> epitaxial films by pump-probe spectroscopy: Evidence for spin-charge separation », *Phys. Rev. B* **87**, 174437 (2013).
  - [118] R. Wilks, N. D. Hughes, et R. J. Hicken, « Investigation of ultrafast spin dynamics in a Ni thin film », *J. Appl. Phys.* **91**, 8670-8672 (2002).
  - [119] E. Carpene, H. Hedayat, F. Boschini, et C. Dallera, « Ultrafast demagnetization of metals: Collapsed exchange versus collective excitations », *Phys. Rev. B* **91**, 174414 (2015).
  - [120] M. Cinchetti, M. Sánchez Albaneda, D. Hoffmann, T. Roth, J.-P. Wüstenberg, M. Krauß, O. Andreyev, H. C. Schneider, M. Bauer, et al., « Spin-Flip Processes and Ultrafast Magnetization Dynamics in Co: Unifying the Microscopic and Macroscopic View of Femtosecond Magnetism », *Phys. Rev. Lett.* **97**, 177201 (2006).
  - [121] J. L. Erskine et E. A. Stern, « Calculation of the M23 magneto-optical absorption spectrum of ferromagnetic nickel », *Phys. Rev. B* **12**, 5016-5024 (1975).
  - [122] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm, et G. Materlik, « Absorption of circularly polarized x rays in iron », *Phys. Rev. Lett.* **58**, 737-740 (1987).
  - [123] J. Stöhr et Y. Wu, « X-Ray Magnetic Circular Dichroism: Basic Concepts and Theory for 3D Transition Metal Atoms », dans *New Directions in Research with Third-Generation Soft X-Ray Synchrotron Radiation Sources*, A. S. Schlachter et F. J. Wuilleumier, Éd. (Springer Netherlands, Dordrecht, 1994).
  - [124] J. Stöhr, « X-ray magnetic circular dichroism spectroscopy of transition metal thin films », *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **75**, 253-272 (1995).
  - [125] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, et G. van der Laan, « X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization », *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1943-1946 (1992).
  - [126] P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli, et X. Wang, « X-ray circular dichroism and local magnetic fields », *Phys. Rev. Lett.* **70**, 694-697 (1993).
  - [127] O. Kfir, P. Grychtol, E. Turgut, R. Knut, D. Zusin, D. Popmintchev, T. Popmintchev, H. Nembach, J. M. Shaw, et al., « Generation of bright phase-matched circularly-polarized extreme ultraviolet high harmonics », *Nat. Photonics* **9**, 99-105 (2015).
  - [128] T. Fan, P. Grychtol, R. Knut, C. Hernández-García, D. D. Hickstein, D. Zusin, C. Gentry, F. J. Dollar, C. A. Mancuso, et al., « Bright circularly polarized soft X-ray high harmonics for X-ray magnetic circular dichroism », *PNAS* **112**, 14206-14211 (2015).
  - [129] F. Willems, C. T. L. Smeenk, N. Zhavoronkov, O. Kornilov, I. Radu, M. Schmidbauer, M. Hanke, C. von Korff Schmising, M. J. J. Vrakking, et al., « Probing ultrafast spin dynamics with high-harmonic magnetic circular dichroism spectroscopy », *Phys. Rev. B* **92**, 220405 (2015).
  - [130] N. Bergeard, V. López-Flores, V. Halté, M. Hehn, C. Stamm, N. Pontius, E. Beaurepaire, et C. Boeglin,

- « Ultrafast angular momentum transfer in multisublattice ferrimagnets », *Nat. Commun.* **5**, 3466 (2014).
- [131] J. B. Kortright et S.-K. Kim, « Resonant magneto-optical properties of Fe near its 2 p levels: Measurement and applications », *Phys. Rev. B* **62**, 12216-12228 (2000).
- [132] H. A. Durr, T. Eimuller, H.-J. Elmers, S. Eisebitt, M. Farle, W. Kuch, F. Matthes, M. Martins, H.-C. Mertins, et al., « A Closer Look Into Magnetism: Opportunities With Synchrotron Radiation », *IEEE Trans. Magn.* **45**, 15-57 (2009).
- [133] J. W. Goodman, *Introduction to Fourier optics* (Roberts & Company Publishers, Englewood, 2005).
- [134] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Blume, et D. Gibbs, « X-Ray Resonance Exchange Scattering », *Phys. Rev. Lett.* **61**, 1245-1248 (1988).
- [135] T. O. Menteş, C. Sánchez-Hanke, et C. C. Kao, « Reconstruction of magnetization density in two-dimensional samples from soft X-ray speckle patterns using the multiple-wavelength anomalous diffraction method », *J. Synchrotron Rad.* **9**, 90-95 (2002).
- [136] B. Vodungbo, A. B. Sardinha, J. Gautier, G. Lambert, M. Lozano, S. Sebban, E. Meltchakov, F. Delmotte, V. Lopez-Flores, et al., « Table-top resonant magnetic scattering with extreme ultraviolet light from high-order harmonic generation », *EPL* **94**, 54003 (2011).
- [137] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, et G. Weinreich, « Generation of Optical Harmonics », *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118-119 (1961).
- [138] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3e éd. (Academic Press, Amsterdam ; Boston, 2008).
- [139] K. H. Yang, P. L. Richards, et Y. R. Shen, « Generation of Far-Infrared Radiation by Picosecond Light Pulses in LiNbO<sub>3</sub> », *Appl. Phys. Lett.* **19**, 320-323 (1971).
- [140] B. Ferguson et X.-C. Zhang, « Materials for terahertz science and technology », *Nat. Mater.* **1**, 26-33 (2002).
- [141] Y. R. Shen, « Surface Second Harmonic Generation: A New Technique for Surface Studies », *Annu. Rev. Mater. Sci.* **16**, 69-86 (1986).
- [142] P. j. Campagnola et C.-Y. Dong, « Second harmonic generation microscopy: principles and applications to disease diagnosis », *Laser Photonics Rev.* **5**, 13-26 (2011).
- [143] R. Li, X. Wang, Y. Zhou, H. Zong, M. Chen, et M. Sun, « Advances in nonlinear optical microscopy for biophotonics », *JNP* **12**, 033007 (2018).
- [144] N. Thiré, S. Beaulieu, V. Cardin, A. Laramée, V. Wanie, B. E. Schmidt, et F. Légaré, « 10 mJ 5-cycle pulses at 1.8  $\mu\text{m}$  through optical parametric amplification », *Appl. Phys. Lett.* **106**, 091110 (2015).
- [145] Y. R. Shen, *The principles of nonlinear optics* (Wiley-Interscience, Hoboken, N.J., 2003).
- [146] T. Brabec et F. Krausz, « Nonlinear Optical Pulse Propagation in the Single-Cycle Regime », *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3282-3285 (1997).
- [147] P. B. Corkum, « Plasma perspective on strong field multiphoton ionization », *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994-1997 (1993).
- [148] A. D. Shiner, C. Trallero-Herrero, N. Kajumba, H.-C. Bandulet, D. Comtois, F. Légaré, M. Giguère, J.-C. Kieffer, P. B. Corkum, et al., « Wavelength Scaling of High Harmonic Generation Efficiency », *Phys. Rev. Lett.* **103**, 073902 (2009).
- [149] J. Tate, T. Augustine, H. G. Muller, P. Salières, P. Agostini, et L. F. DiMauro, « Scaling of Wave-Packet Dynamics in an Intense Midinfrared Field », *Phys. Rev. Lett.* **98**, 013901 (2007).
- [150] P. Dietrich, N. H. Burnett, M. Ivanov, et P. B. Corkum, « High-harmonic generation and correlated two-electron multiphoton ionization with elliptically polarized light », *Phys. Rev. A* **50**, R3585-R3588 (1994).
- [151] R. Thomson, C. Leburn, et D. Reid, *Ultrafast Nonlinear Optics* (Springer Science & Business Media, 2013).
- [152] M. Meckel, D. Comtois, D. Zeidler, A. Staudte, D. Pavičić, H. C. Bandulet, H. Pépin, J. C. Kieffer, R. Dörner, et al., « Laser-Induced Electron Tunneling and Diffraction », *Science* **320**, 1478-1482 (2008).
- [153] L. V. Keldysh, « Ionization in the field of a strong electromagnetic wave », *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307-1314 (1965).
- [154] T. Popmintchev, M.-C. Chen, A. Bahabad, M. Gerrity, P. Sidorenko, O. Cohen, I. P. Christov, M. M. Murnane, et H. C. Kapteyn, « Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard X-ray regions of the

- spectrum », *PNAS* **106**, 10516-10521 (2009).
- [155] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier, et P. B. Corkum, « Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields », *Phys. Rev. A* **49**, 2117-2132 (1994).
  - [156] P. Salières, P. Antoine, A. de Bohan, et M. Lewenstein, « Temporal and Spectral Tailoring of High-Order Harmonics », *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5544-5547 (1998).
  - [157] M. Bellini, C. Lyngå, A. Tozzi, M. B. Gaarde, T. W. Hänsch, A. L'Huillier, et C.-G. Wahlström, « Temporal Coherence of Ultrashort High-Order Harmonic Pulses », *Phys. Rev. Lett.* **81**, 297-300 (1998).
  - [158] M. B. Gaarde, F. Salin, E. Constant, Ph. Balcou, K. J. Schafer, K. C. Kulander, et A. L'Huillier, « Spatiotemporal separation of high harmonic radiation into two quantum path components », *Phys. Rev. A* **59**, 1367-1373 (1999).
  - [159] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovačev, R. Taïeb, et al., « Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-rays », *Science* **302**, 1540-1543 (2003).
  - [160] M. B. Gaarde, J. L. Tate, et K. J. Schafer, « Macroscopic aspects of attosecond pulse generation », *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41**, 132001 (2008).
  - [161] T. Pfeifer, C. Spielmann, et G. Gerber, « Femtosecond x-ray science », *Rep. Prog. Phys.* **69**, 443-505 (2006).
  - [162] Ph. Balcou et A. L'Huillier, « Phase-matching effects in strong-field harmonic generation », *Phys. Rev. A* **47**, 1447-1459 (1993).
  - [163] P. Rudawski, C. M. Heyl, F. Brizuela, J. Schwenke, A. Persson, E. Mansten, R. Rakowski, L. Rading, F. Campi, et al., « A high-flux high-order harmonic source », *Rev. Sci. Instrum.* **84**, 073103 (2013).
  - [164] P. Salières, A. L'Huillier, et M. Lewenstein, « Coherence Control of High-Order Harmonics », *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776-3779 (1995).
  - [165] J. Rothhardt, M. Krebs, S. Hädrich, S. Demmler, J. Limpert, et A. Tünnermann, « Absorption-limited and phase-matched high harmonic generation in the tight focusing regime », *New J. Phys.* **16**, 033022 (2014).
  - [166] 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.* **82**, 1668 (1999).
  - [167] A. Rundquist, « Phase-Matched Generation of Coherent Soft X-rays », *Science* **280**, 1412-1415 (1998).
  - [168] E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka, M. Obara, et K. Midorikawa, « Generation of highly coherent submicrojoule soft x rays by high-order harmonics », *Phys. Rev. A* **66**, 021802 (2002).
  - [169] E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, et K. Midorikawa, « Low-divergence coherent soft x-ray source at 13 nm by high-order harmonics », *Appl. Phys. Lett.* **84**, 4-6 (2004).
  - [170] A. Kirilyuk, A. V. Kimel, et T. Rasing, « Ultrafast optical manipulation of magnetic order », *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2731-2784 (2010).
  - [171] Z. Tao, C. Chen, T. Szilvási, M. Keller, M. Mavrikakis, H. Kapteyn, et M. Murnane, « Direct time-domain observation of attosecond final-state lifetimes in photoemission from solids », *Science* **353**, 62-67 (2016).
  - [172] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller, et P. Agostini, « Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation », *Science* **292**, 1689-1692 (2001).
  - [173] A. Fleischer, O. Kfir, T. Diskin, P. Sidorenko, et O. Cohen, « Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation », *Nat. Photonics* **8**, 543-549 (2014).
  - [174] C. Chen, Z. Tao, C. Hernandez-Garcia, P. Matyba, A. Carr, R. Knut, O. Kfir, D. Zusin, C. Gentry, et al., « Tomographic reconstruction of circularly polarized high-harmonic fields: 3D attosecond metrology », *Sci. Adv.* **2**, e1501333 (2016).
  - [175] K. M. Dorney, L. Rego, N. J. Brooks, J. San Román, C.-T. Liao, J. L. Ellis, D. Zusin, C. Gentry, Q. L. Nguyen, et al., « Controlling the polarization and vortex charge of attosecond high-harmonic beams via simultaneous spin-orbit momentum conservation », *Nat. Photonics* **13**, 123-130 (2019).
  - [176] L. Rego, K. M. Dorney, N. J. Brooks, Q. L. Nguyen, C.-T. Liao, J. San Román, D. E. Couch, A. Liu, E. Pisanty, et al., « Generation of extreme-ultraviolet beams with time-varying orbital angular momentum », *Science* **364**, 1253 (2019).
  - [177] T. Popmintchev, M.-C. Chen, D. Popmintchev, P. Arpin, S. Brown, S. Ališauskas, G. Andriukaitis, T. Balčiunas,

- O. D. Mücke, et al., « Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers », *Science* **336**, 1287-1291 (2012).
- [178] D. F. Gardner, M. Tanksalvala, E. R. Shanblatt, X. Zhang, B. R. Galloway, C. L. Porter, R. Karl Jr, C. Bevis, D. E. Adams, et al., « Subwavelength coherent imaging of periodic samples using a 13.5 nm tabletop high-harmonic light source », *Nat. Photonics* **11**, 259-263 (2017).
- [179] J. Miao, T. Ishikawa, I. K. Robinson, et M. M. Murnane, « Beyond crystallography: Diffractive imaging using coherent x-ray light sources », *Science* **348**, 530-535 (2015).
- [180] N. X. Truong, R. Safaei, V. Cardin, S. M. Lewis, X. L. Zhong, F. Légaré, et M. A. Denecke, « Coherent Tabletop EUV Ptychography of Nanopatterns », *Sci. Rep.* **8**, 16693 (2018).
- [181] J. B. Kortright, S.-K. Kim, G. P. Denbeaux, G. Zeltzer, K. Takano, et E. E. Fullerton, « Soft-x-ray small-angle scattering as a sensitive probe of magnetic and charge heterogeneity », *Phys. Rev. B* **64** (2001).
- [182] S. Valencia, A. Gaupp, W. Gudat, H.-C. Mertins, P. M. Oppeneer, D. Abramssohn, et C. M. Schneider, « Faraday rotation spectra at shallow core levels: 3p edges of Fe, Co, and Ni », *New J. Phys.* **8**, 254 (2006).
- [183] T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, U. Atxitia, O. Chubykalo-Fesenko, S. El Moussaoui, L. Le Guyader, E. Mengotti, et al., « Ultrafast heating as a sufficient stimulus for magnetization reversal in a ferrimagnet », *Nat. Commun.* **3** (2012).
- [184] S. Mangin, M. Gottwald, C.-H. Lambert, D. Steil, V. Uhlř, L. Pang, M. Hehn, S. Alebrand, M. Cinchetti, et al., « Engineered materials for all-optical helicity-dependent magnetic switching », *Nat. Mater.* **13**, 286-292 (2014).
- [185] S. Woo, K. M. Song, X. Zhang, M. Ezawa, Y. Zhou, X. Liu, M. Weigand, S. Finizio, J. Raabe, et al., « Deterministic creation and deletion of a single magnetic skyrmion observed by direct time-resolved X-ray microscopy », *Nat. Electron.* **1**, 288-296 (2018).
- [186] L. Caretta, M. Mann, F. Büttner, K. Ueda, B. Pfau, C. M. Günther, P. Hessler, A. Churikova, C. Klose, et al., « Fast current-driven domain walls and small skyrmions in a compensated ferrimagnet », *Nat. Nanotechnol.* **13**, 1154-1160 (2018).
- [187] I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. Dürr, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, et al., « Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins », *Nature* **472**, 205-208 (2011).
- [188] V. López-Flores, N. Berggaard, V. Halté, C. Stamm, N. Pontius, M. Hehn, E. Otero, E. Beaupaire, et C. Boeglin, « Role of critical spin fluctuations in ultrafast demagnetization of transition-metal rare-earth alloys », *Phys. Rev. B* **87** (2013).
- [189] C. E. Graves, A. H. Reid, T. Wang, B. Wu, S. De Jong, K. Vahaplar, I. Radu, D. P. Bernstein, M. Messerschmidt, et al., « Nanoscale spin reversal by non-local angular momentum transfer following ultrafast laser excitation in ferrimagnetic GdFeCo », *Nat. Mater.* **12**, 293 (2013).
- [190] J. Barker, U. Atxitia, T. A. Ostler, O. Hovorka, O. Chubykalo-Fesenko, et R. W. Chantrell, « Two-magnon bound state causes ultrafast thermally induced magnetisation switching », *Sci. Rep.* **3**, 3262 (2013).
- [191] R. Medapalli, I. Razdolski, M. Savoini, A. R. Khorsand, A. M. Kalashnikova, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, A. V. Kimel, et al., « The role of magnetization compensation point for efficient ultrafast control of magnetization in Gd<sub>24</sub>Fe<sub>66.5</sub>Co<sub>9.5</sub> alloy », *Eur. Phys. J. B* **86**, 183 (2013).
- [192] A. R. Khorsand, M. Savoini, A. Kirilyuk, A. V. Kimel, A. Tsukamoto, A. Itoh, et Th. Rasing, « Element-Specific Probing of Ultrafast Spin Dynamics in Multisublattice Magnets with Visible Light », *Phys. Rev. Lett.* **110**, 107205 (2013).
- [193] W. Legrand, J.-Y. Chauleau, D. Maccariello, N. Reyren, S. Collin, K. Bouzehouane, N. Jaouen, V. Cros, et A. Fert, « Hybrid chiral domain walls and skyrmions in magnetic multilayers », *Sci. Adv.* **4**, eaat0415 (2018).
- [194] J.-Y. Chauleau, T. Chirac, S. Fusil, V. Garcia, W. Akhtar, J. Tranchida, P. Thibaudeau, I. Gross, C. Blouzon, et al., « Electric and antiferromagnetic chiral textures at multiferroic domain walls », *Nat. Mater.* **19**, 386-390 (2020).
- [195] M. V. Gerasimov, S. V. Ilin, M. V. Logunov, S. A. Nikitov, A. V. Spirin, et A. N. Chaldyshkin, « A magneto-optical setup for studying the time evolution of nanoscale domain-wall displacements under pulsed magnetization », *Instrum. Exp. Tech.* **60**, 716-721 (2017).
- [196] J. K. Dewhurst, F. Willems, P. Elliott, Q. Z. Li, C. von K. Schmising, C. Strüber, D. W. Engel, S. Eisebitt, et S.

- Sharma, « Element Specificity of Transient Extreme Ultraviolet Magnetic Dichroism », *Phys. Rev. Lett.* **124**, 077203 (2020).
- [197] M.-C. Chen, P. Arpin, T. Popmintchev, M. Gerrity, B. Zhang, M. Seaberg, D. Popmintchev, M. M. Murnane, et H. C. Kapteyn, « Bright, Coherent, Ultrafast Soft X-Ray Harmonics Spanning the Water Window from a Tabletop Light Source », *Phys. Rev. Lett.* **105**, 173901 (2010).
- [198] E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa, et K. Midorikawa, « Coherent Water Window X Ray by Phase-Matched High-Order Harmonic Generation in Neutral Media », *Phys. Rev. Lett.* **101**, 253901 (2008).
- [199] S. L. Cousin, F. Silva, S. Teichmann, M. Hemmer, B. Buades, et J. Biegert, « High-flux table-top soft x-ray source driven by sub-2-cycle, CEP stable, 1.85- $\mu\text{m}$  1-kHz pulses for carbon K-edge spectroscopy », *Opt. Lett.* **39**, 5383-5386 (2014).
- [200] S. M. Teichmann, F. Silva, S. L. Cousin, M. Hemmer, et J. Biegert, « 0.5-keV Soft X-ray attosecond continua », *Nat. Commun.* **7**, 11493 (2016).
- [201] A. S. Johnson, D. R. Austin, D. A. Wood, C. Brahms, A. Gregory, K. B. Holzner, S. Jarosch, E. W. Larsen, S. Parker, et al., « High-flux soft x-ray harmonic generation from ionization-shaped few-cycle laser pulses », *Sci. Adv.* **4**, eaar3761 (2018).
- [202] J. Li, X. Ren, Y. Yin, K. Zhao, A. Chew, Y. Cheng, E. Cunningham, Y. Wang, S. Hu, et al., « 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge », *Nat. Commun.* **8**, 186 (2017).
- [203] Y. Fu, K. Nishimura, R. Shao, A. Suda, K. Midorikawa, P. Lan, et E. J. Takahashi, « High efficiency ultrafast water-window harmonic generation for single-shot soft X-ray spectroscopy », *Commun. Phys.* **3**, 1-10 (2020).
- [204] T. Nagy, S. Hädrich, S. Hädrich, P. Simon, P. Simon, A. Blumenstein, N. Walther, R. Klas, R. Klas, et al., « Generation of three-cycle multi-millijoule laser pulses at 318 W average power », *Optica* **6**, 1423-1424 (2019).
- [205] B. E. Schmidt, A. Hage, T. Mans, F. Légaré, et H. J. Wörner, « Highly stable, 54mJ Yb-InnoSlab laser platform at 0.5kW average power », *Opt. Express* **25**, 17549-17555 (2017).
- [206] H. Fattahi, H. G. Barros, M. Gorjan, T. Nubbemeyer, B. Alsaif, C. Y. Teisset, M. Schultze, S. Prinz, M. Haefner, et al., « Third-generation femtosecond technology », *Optica* **1**, 45-63 (2014).
- [207] J. Rothhardt, S. Hädrich, A. Klenke, S. Demmler, A. Hoffmann, T. Gotschall, T. Eidam, M. Krebs, J. Limpert, et al., « 53 W average power few-cycle fiber laser system generating soft x rays up to the water window », *Opt. Lett.* **39**, 5224-5227 (2014).
- [208] J. E. Prieto, F. Heigl, O. Krupin, G. Kaindl, et K. Starke, « Magneto-optics of Gd and Tb in the soft x-ray resonance regions », *Phys. Rev. B* **68**, 134453 (2003).
- [209] E. A. Gibson, A. Paul, N. Wagner, R. Tobey, D. Gaudiosi, S. Backus, I. P. Christov, A. Aquila, E. M. Gullikson, et al., « Coherent Soft X-ray Generation in the Water Window with Quasi-Phase Matching », *Science* **302**, 95-98 (2003).
- [210] K.-H. Hong, C.-J. Lai, J. P. Siqueira, P. Krogen, J. Moses, C.-L. Chang, G. J. Stein, L. E. Zapata, et F. X. Kärtner, « Multi-mJ, kHz, 2.1  $\mu\text{m}$  optical parametric chirped-pulse amplifier and high-flux soft x-ray high-harmonic generation », *Opt. Lett.* **39**, 3145-3148 (2014).
- [211] C. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, et F. Krausz, « Generation of coherent X-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses », *Science* **278**, 661-664 (1997).
- [212] A. Paul, E. A. Gibson, X. Zhang, A. Lytle, T. Popmintchev, X. Zhou, M. M. Murnane, I. P. Christov, et H. C. Kapteyn, « Phase-matching techniques for coherent soft X-ray generation », *IEEE J. Quantum Electron.* **42**, 14-26 (2006).
- [213] A. E. D. Merhe, « Ultrafast modification of the magnetic anisotropy in a CoTb alloy », PhD Thesis (Sorbonne Université, 2018).
- [214] T. Ferté, N. Bergeard, G. Malinowski, R. Abrudan, T. Kachel, K. Holldack, M. Hehn, et C. Boeglin, « Ultrafast hot-electron induced quenching of Tb 4 f magnetic order », *Phys. Rev. B* **96**, 144427 (2017).
- [215] M. Elzo, E. Jal, O. Bunau, S. Grenier, Y. Joly, A. Y. Ramos, H. C. N. Tolentino, J. M. Tonnerre, et N. Jaouen, « X-ray resonant magnetic reflectivity of stratified magnetic structures: Eigenwave formalism and application to a W/Fe/W trilayer », *J. Magn. Magn. Mater.* **324**, 105-112 (2012).

- [216] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Blume, et D. Gibbs, « X-Ray Resonance Exchange Scattering », *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2644-2644 (1989).
- [217] P. Salières, B. Carré, L. Le Déroff, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, D. B. Milošević, et al., « Feynman's Path-Integral Approach for Intense-Laser-Atom Interactions », *Science* **292**, 902-905 (2001).
- [218] R. A. Bartels, A. Paul, H. Green, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, S. Backus, I. P. Christov, Y. Liu, D. Attwood, et al., « Generation of Spatially Coherent Light at Extreme Ultraviolet Wavelengths », *Science* **297**, 376-378 (2002).
- [219] O. Kfir, S. Zayko, C. Nolte, M. Sivilis, M. Möller, B. Hebler, S. S. P. K. Arekapudi, D. Steil, S. Schäfer, et al., « Nanoscale magnetic imaging using circularly polarized high-harmonic radiation », *Sci. Adv.* **3**, eaao4641 (2017).
- [220] J.-W. Kim, K.-D. Lee, J.-W. Jeong, et S.-C. Shin, « Ultrafast spin demagnetization by nonthermal electrons of TbFe alloy film », *Appl. Phys. Lett.* **94**, 192506 (2009).
- [221] A. Eschenlohr, M. Sultan, A. Melnikov, N. Bergeard, J. Wiczorek, T. Kachel, C. Stamm, et U. Bovensiepen, « Role of spin-lattice coupling in the ultrafast demagnetization of Gd<sub>1-x</sub>Tb<sub>x</sub> alloys », *Phys. Rev. B* **89** (2014).
- [222] M. van Veenendaal et I. McNulty, « Prediction of Strong Dichroism Induced by X Rays Carrying Orbital Momentum », *Phys. Rev. Lett.* **98**, 157401 (2007).
- [223] W. Yang, H. Yang, Y. Cao, et P. Yan, « Photonic orbital angular momentum transfer and magnetic skyrmion rotation », *Opt. Express* **26**, 8778-8790 (2018).
- [224] S. Zhang, Z. Fu, B. Zhu, G. Fan, Y. Chen, S. Wang, Y. Liu, A. Baltuska, C. Jin, et al., « Solitary beam propagation in periodic layered Kerr media enables high-efficiency pulse compression and mode self-cleaning », *Light Sci. Appl.* **10**, 53 (2021).
- [225] C. Vicario, C. Ruchert, F. Ardana-Lamas, P. M. Derlet, B. Tudu, J. Luning, et C. P. Hauri, « Off-resonant magnetization dynamics phase-locked to an intense phase-stable terahertz transient », *Nat. Photonics* **7**, 720-723 (2013).
- [226] D. Polley, M. Pancaldi, M. Hudl, P. Vavassori, S. Urazhdin, et S. Bonetti, « THz-driven demagnetization with perpendicular magnetic anisotropy: towards ultrafast ballistic switching », *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51**, 084001 (2018).
- [227] R. Gort, K. Bühlmann, S. Däster, G. Salvatella, N. Hartmann, Y. Zemp, S. Hohenstein, C. Stieger, A. Foghini, et al., « Early Stages of Ultrafast Spin Dynamics in a 3 d Ferromagnet », *Phys. Rev. Lett.* **121** (2018).
- [228] S. Pan, O. Hellwig, et A. Barman, « Controlled coexcitation of direct and indirect ultrafast demagnetization in Co/Pd multilayers with large perpendicular magnetic anisotropy », *Phys. Rev. B* **98** (2018).
- [229] G. Rohde, T. Rohwer, A. Stange, C. Sohr, K. Hanff, L. X. Yang, L. Kipp, K. Rossnagel, et M. Bauer, « Does the excitation wavelength affect the ultrafast quenching dynamics of the charge-density wave in 1T-TiSe<sub>2</sub>? », *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **195**, 244-248 (2014).
- [230] M. Fähnle, M. Haag, C. Illg, B. Mueller, W. Weng, T. Tsatsoulis, H. Huang, J. Briones, N. Teeny, et al., « Review of Ultrafast Demagnetization After Femtosecond Laser Pulses: A Complex Interaction of Light with Quantum Matter », *Am. J. Mod. Phys.* **7**, 68 (2018).
- [231] K. Krieger, P. Elliott, T. Müller, N. Singh, J. K. Dewhurst, E. K. U. Gross, et S. Sharma, « Ultrafast demagnetization in bulk versus thin films: an ab initio study », *J. Phys. Condens. Matter* **29**, 224001 (2017).
- [232] P. Tengdin, W. You, C. Chen, X. Shi, D. Zusin, Y. Zhang, C. Gentry, A. Blonsky, M. Keller, et al., « Critical behavior within 20 fs drives the out-of-equilibrium laser-induced magnetic phase transition in nickel », *Sci. Adv.* **4**, eaap9744 (2018).
- [233] W. You, P. Tengdin, C. Chen, X. Shi, D. Zusin, Y. Zhang, C. Gentry, A. Blonsky, M. Keller, et al., « Revealing the Nature of the Ultrafast Magnetic Phase Transition in Ni by Correlating Extreme Ultraviolet Magneto-Optic and Photoemission Spectroscopies », *Phys. Rev. Lett.* **121**, 077204 (2018).
- [234] G. Salvatella, R. Gort, K. Bühlmann, S. Däster, A. Vaterlaus, et Y. Acremann, « Ultrafast demagnetization by hot electrons: Diffusion or super-diffusion? », *Struct. Dyn.* **3**, 055101 (2016).
- [235] N. Bergeard, M. Hehn, S. Mangin, G. Lengaigne, F. Montaigne, M. L. M. Lalieu, B. Koopmans, et G. Malinowski, « Hot-Electron-Induced Ultrafast Demagnetization in Co/Pt Multilayers », *Phys. Rev. Lett.* **117**,

- 147203 (2016).
- [236] X. Liu, Z. Xu, R. Gao, H. Hu, Z. Chen, Z. Wang, J. Du, S. Zhou, et T. Lai, « Dynamics of magnetization, reversal, and ultrafast demagnetization of TbFeCo amorphous films », *Appl. Phys. Lett.* **92**, 232501 (2008).
- [237] 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* **45**, 5079-5082 (1992).
- [238] V. Halté, J.-Y. Bigot, B. Palpant, M. Broyer, B. Prével, et A. Pérez, « Size dependence of the energy relaxation in silver nanoparticles embedded in dielectric matrices », *Appl. Phys. Lett.* **75**, 3799-3801 (1999).
- [239] A. G. Mathewson et H. P. Myers, « Absolute Values of the Optical Constants of Some Pure Metals », *Phys. Scr.* **4**, 291-292 (1971).
- [240] W. S. M. Werner, K. Glantschnig, et C. Ambrosch-Draxl, « Optical Constants and Inelastic Electron-Scattering Data for 17 Elemental Metals », *J. Phys. Chem. Ref. Data* **38**, 1013-1092 (2009).
- [241] P. B. Johnson et R. W. Christy, « Optical constants of transition metals: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, and Pd », *Phys. Rev. B* **9**, 5056-5070 (1974).
- [242] N. Cabrera et N. F. Mott, « Theory of the oxidation of metals », *Rep. Prog. Phys.* **12**, 163-184 (1949).
- [243] N. Cai, G. Zhou, K. Müller, et D. E. Starr, « Tuning the Limiting Thickness of a Thin Oxide Layer on Al(111) with Oxygen Gas Pressure », *Phys. Rev. Lett.* **107**, 035502 (2011).
- [244] N. Cai, G. Zhou, K. Müller, et D. E. Starr, « Effect of oxygen gas pressure on the kinetics of alumina film growth during the oxidation of Al(111) at room temperature », *Phys. Rev. B* **84**, 125445 (2011).
- [245] L. Wang, P. Han, Z. Zhang, C. Zhang, et B. Xu, « Effects of thickness on the structural, electronic, and optical properties of MgF<sub>2</sub> thin films: The first-principles study », *Comput. Mater. Sci.* **77**, 281-285 (2013).
- [246] M. Born et E. Wolf, *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*, 7e éd. (Cambridge University Press, Cambridge, 1999).
- [247] E. A. Seddon, J. A. Clarke, D. J. Dunning, C. Masciovecchio, C. J. Milne, F. Parmigiani, D. Rugg, J. C. H. Spence, N. R. Thompson, et al., « Short-wavelength free-electron laser sources and science: a review », *Rep. Prog. Phys.* **80**, 115901 (2017).
- [248] A. Rousse, K. T. Phuoc, R. Shah, A. Pukhov, E. Lefebvre, V. Malka, S. Kiselev, F. Burgy, J.-P. Rousseau, et al., « Production of a keV X-Ray Beam from Synchrotron Radiation in Relativistic Laser-Plasma Interaction », *Phys. Rev. Lett.* **93**, 135005 (2004).
- [249] S. Fourmaux, S. Corde, K. T. Phuoc, P. M. Leguay, S. Payeur, P. Lassonde, S. Gnedyuk, G. Lebrun, C. Fourment, et al., « Demonstration of the synchrotron-type spectrum of laser-produced Betatron radiation », *New J. Phys.* **13**, 033017 (2011).
- [250] J. Weisshaupt, V. Juvé, M. Holtz, S. Ku, M. Woerner, T. Elsaesser, S. Ališauskas, A. Pugžlys, et A. Baltuška, « High-brightness table-top hard X-ray source driven by sub-100-femtosecond mid-infrared pulses », *Nat. Photonics* **8**, 927-930 (2014).
- [251] M. A. Fareed, V. V. Strelkov, N. Thiré, S. Mondal, B. E. Schmidt, F. Légaré, et T. Ozaki, « High-order harmonic generation from the dressed autoionizing states », *Nat. Commun.* **8**, 16061 (2017).
- [252] C. Thaur, F. Quéré, J.-P. Geindre, A. Levy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Réau, P. d'Oliveira, et al., « Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics », *Nat. Phys.* **3**, 424-429 (2007).
- [253] B. Dromey, M. Zepf, A. Gopal, K. Lancaster, M. S. Wei, K. Krushelnick, M. Tatarakis, N. Vakis, S. Moustazis, et al., « High harmonic generation in the relativistic limit », *Nat. Phys.* **2**, 456-459 (2006).
- [254] 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* **4**, 822-832 (2010).
- [255] T. Gaumnitz, A. Jain, Y. Pertot, M. Huppert, I. Jordan, F. Ardana-Lamas, et H. J. Wörner, « Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver », *Opt. Express* **25**, 27506-27518 (2017).
- [256] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, et al., « Attosecond metrology », *Nature* **414**, 509-513 (2001).
- [257] F. Calegari, D. Ayuso, A. Trabattoni, L. Belshaw, S. D. Camillis, S. Anumula, F. Frassetto, L. Poletto, A. Palacios, et al., « Ultrafast electron dynamics in phenylalanine initiated by attosecond pulses », *Science* **346**,

- 336-339 (2014).
- [258] M. Ossiander, J. Riemensberger, S. Neppl, M. Mittermair, M. Schäffer, A. Duensing, M. S. Wagner, R. Heider, M. Wurzer, et al., « Absolute timing of the photoelectric effect », *Nature* **561**, 374-377 (2018).
  - [259] E. Goulielmakis, Z.-H. Loh, A. Wirth, R. Santra, N. Rohringer, V. S. Yakovlev, S. Zherebtsov, T. Pfeifer, A. M. Azzeer, et al., « Real-time observation of valence electron motion », *Nature* **466**, 739-743 (2010).
  - [260] M. Schultze, K. Ramasesha, C. D. Pemmaraju, S. A. Sato, D. Whitmore, A. Gandman, J. S. Prell, L. J. Borja, D. Prendergast, et al., « Attosecond band-gap dynamics in silicon », *Science* **346**, 1348-1352 (2014).
  - [261] F. Willems, C. von Korff Schmising, C. Strüber, D. Schick, D. W. Engel, J. K. Dewhurst, P. Elliott, S. Sharma, et S. Eisebitt, « Optical inter-site spin transfer probed by energy and spin-resolved transient absorption spectroscopy », *Nat. Commun.* **11**, 871 (2020).
  - [262] J. J. Carrera, S.-I. Chu, et X. M. Tong, « Very-high-order harmonic generation from Ar atoms and Ar<sup>+</sup> ions in superintense pulsed laser fields: An ab initio self-interaction-free time-dependent density-functional approach », *Phys. Rev. A* **71**, 063813 (2005).
  - [263] 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.* **77**, 1743-1746 (1996).
  - [264] B. E. Schmidt, A. D. Shiner, M. Giguère, P. Lassonde, C. A. Trallero-Herrero, J.-C. Kieffer, P. B. Corkum, D. M. Villeneuve, et F. Légaré, « High harmonic generation with long-wavelength few-cycle laser pulses », *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45**, 074008 (2012).
  - [265] J. E. Beetar, M. Nrisimhamurty, T.-C. Truong, G. C. Nagar, Y. Liu, J. Nesper, O. Suarez, F. Rivas, Y. Wu, et al., « Multioctave supercontinuum generation and frequency conversion based on rotational nonlinearity », *Sci. Adv.* **6**, eabb5375 (2020).
  - [266] P. A. Carpeggiani, G. Coccia, G. Fan, E. Kaksis, A. Pugžlys, A. Baltuška, R. Piccoli, Y.-G. Jeong, A. Rovere, et al., « Extreme Raman red shift: ultrafast multimode nonlinear space-time dynamics, pulse compression, and broadly tunable frequency conversion », *Optica* **7**, 1349-1354 (2020).
  - [267] G. Cerullo et S. De Silvestri, « Ultrafast optical parametric amplifiers », *Rev. Sci. Instrum.* **74**, 1-18 (2003).
  - [268] C. Jordan, K. A. Stankov, G. Marowsky, et E. J. Canto-Said, « Efficient compression of femtosecond pulses by stimulated Raman scattering », *Appl. Phys. B* **59**, 471-473 (1994).
  - [269] C. Vicario, M. Shalaby, A. Konyashchenko, L. Losev, et C. P. Hauri, « High-power femtosecond Raman frequency shifter », *Opt. Lett.* **41**, 4719-4722 (2016).
  - [270] B. M. Trabold, A. Abdolvand, T. G. Euser, A. M. Walser, et P. S. J. Russell, « Amplification of higher-order modes by stimulated Raman scattering in H<sub>2</sub>-filled hollow-core photonic crystal fiber », *Opt. Lett.* **38**, 600-602 (2013).
  - [271] S. Loranger, P. S. J. Russell, P. S. J. Russell, et D. Novoa, « Sub-40 fs pulses at 1.8 μm and MHz repetition rates by chirp-assisted Raman scattering in hydrogen-filled hollow-core fiber », *J. Opt. Soc. Am. B* **37**, 3550-3556 (2020).
  - [272] C. Li, K. P. M. Rishad, P. Horak, Y. Matsuura, et D. Faccio, « Spectral broadening and temporal compression of ~100 fs pulses in air-filled hollow core capillary fibers », *Opt. Express* **22**, 1143 (2014).
  - [273] G. Fan, R. Safaei, O. Kwon, V. Schuster, K. Légaré, P. Lassonde, A. Ehteshami, L. Arias, A. Laramée, et al., « High energy redshifted and enhanced spectral broadening by molecular alignment », *Opt. Lett.* **45**, 3013-3016 (2020).
  - [274] F. Willems, C. von Korff Schmising, D. Weder, C. M. Günther, M. Schneider, B. Pfau, S. Meise, E. Guehrs, J. Geilhufe, et al., « Multi-color imaging of magnetic Co/Pt heterostructures », *Struct. Dyn.* **4**, 014301 (2017).
  - [275] S. Bohman, A. Suda, T. Kanai, S. Yamaguchi, et K. Midorikawa, « Generation of 5.0 fs, 5.0 mJ pulses at 1 kHz using hollow-fiber pulse compression », *Opt. Lett.* **35**, 1887-1889 (2010).
  - [276] I. J. Kim, C. M. Kim, H. T. Kim, G. H. Lee, Y. S. Lee, J. Y. Park, D. J. Cho, et C. H. Nam, « Highly Efficient High-Harmonic Generation in an Orthogonally Polarized Two-Color Laser Field », *Phys. Rev. Lett.* **94**, 243901 (2005).
  - [277] B. Bergues, D. E. Rivas, M. Weidman, A. A. Muschet, W. Helml, A. Guggenmos, V. Pervak, U. Kleineberg, G. Marcus, et al., « Tabletop nonlinear optics in the 100-eV spectral region », *Optica* **5**, 237 (2018).
  - [278] J. Hüve, T. Haarlammert, T. Steinbrück, J. Kutzner, G. Tsilimis, et H. Zacharias, « High-flux high harmonic

- soft X-ray generation up to 10kHz repetition rate », *Opt. Commun.* **266**, 261-265 (2006).
- [279] L. Young, K. Ueda, M. Gühr, P. H. Bucksbaum, M. Simon, S. Mukamel, N. Rohringer, K. C. Prince, C. Masciovecchio, et al., « Roadmap of ultrafast x-ray atomic and molecular physics », *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51**, 032003 (2018).
- [280] J.-Y. Chauleau, W. Legrand, N. Reyren, D. Maccariello, S. Collin, H. Popescu, K. Bouzehouane, V. Cros, N. Jaouen, et al., « Chirality in Magnetic Multilayers Probed by the Symmetry and the Amplitude of Dichroism in X-Ray Resonant Magnetic Scattering », *Phys. Rev. Lett.* **120**, 037202 (2018).
- [281] V. Cardin, B. E. Schimdt, N. Thiré, S. Beaulieu, V. Wanie, M. Negro, C. Vozzi, V. Tosa, et F. Légaré, « Self-channelled high harmonic generation of water window soft x-rays », *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51**, 174004 (2018).
- [282] R. Schäfer et J. McCord, « Magneto-Optical Microscopy », dans *Magnetic Measurement Techniques for Materials Characterization*, V. Franco et B. Dodrill, Éd. (Springer International Publishing, Cham, 2021).
- [283] E. R. Moog et S. D. Bader, « Smoke signals from ferromagnetic monolayers:  $p(1\times 1)$  Fe/Au(100) », *Superlattices Microstruct.* **1**, 543-552 (1985).
- [284] M. R. Pufall, C. Platt, et A. Berger, « Layer-resolved magnetometry of a magnetic bilayer using the magneto-optical Kerr effect with varying angle of incidence », *J. Appl. Phys.* **85**, 4818-4820 (1999).
- [285] S. Maat, L. Shen, C. Hou, H. Fujiwara, et G. J. Mankey, « Optical interference in magneto-optic Kerr-effect measurements of magnetic multilayers », *J. Appl. Phys.* **85**, 1658-1662 (1999).
- [286] Y. Guan, T. Koyama, et D. Chiba, « Current-induced magnetic domain wall motion in Pt/Co/Pd and Pd/Co/Pt structures with opposite sign of Dzyaloshinskii-Moriya interaction », *AIP Adv.* **7**, 085123 (2017).
- [287] A. Neudert, J. McCord, R. Schäfer, et L. Schultz, « Subnanosecond vortex transformation in ferromagnetic film elements observed by stroboscopic wide-field Kerr microscopy », *J. Appl. Phys.* **97**, 10E701 (2005).
- [288] D. Jenkins, W. Clegg, J. Windmill, S. Edmund, P. Davey, D. Newman, C. D. Wright, M. Loze, M. Armand, et al., « Advanced optical and magneto-optical recording techniques: a review », *Microsyst. Technol.* **10**, 66-75 (2003).
- [289] A. Hirohata, K. Yamada, Y. Nakatani, I.-L. Prejbeanu, B. Diény, P. Pirro, et B. Hillebrands, « Review on spintronics: Principles and device applications », *J. Magn. Magn. Mater.* **509**, 166711 (2020).
- [290] S.-K. Kim, J.-W. Lee, S.-C. Shin, et K. Y. Kim, « Contrasting hysteresis behavior between the magneto-optical Kerr rotation and ellipticity in NiFe/FeMn/Co trilayer films », *J. Appl. Phys.* **91**, 3099-3102 (2002).
- [291] L. Lounis, M. Eddrief, M. Sacchi, et F. Vidal, « Layer-sensitive magneto-optical Kerr effect study of magnetization reversal in Fe/MnAs/GaAs(001) », *Appl. Phys. Lett.* **111**, 232403 (2017).
- [292] R. P. Hunt, « Magneto-Optic Scattering from Thin Solid Films », *J. Appl. Phys.* **38**, 1652-1671 (1967).
- [293] C.-Y. You et S.-C. Shin, « Generalized analytic formulae for magneto-optical Kerr effects », *J. Appl. Phys.* **84**, 541-546 (1998).
- [294] J. Zak, E. R. Moog, C. Liu, et S. D. Bader, « Universal approach to magneto-optics », *J. Magn. Magn. Mater.* **89**, 107-123 (1990).
- [295] S. Polisetty, J. Scheffler, S. Sahoo, Y. Wang, T. Mukherjee, X. He, et Ch. Binek, « Optimization of magneto-optical Kerr setup: Analyzing experimental assemblies using Jones matrix formalism », *Rev. Sci. Instrum.* **79**, 055107 (2008).
- [296] V. Usov, S. Murphy, L. Seravalli, et I. V. Shvets, « Developments in surface magneto-optical Kerr effect setup for ultrahigh vacuum analysis of magnetic ultrathin films », *Rev. Sci. Instrum.* **76**, 046102 (2005).
- [297] Z. Q. Qiu et S. D. Bader, « Surface magneto-optic Kerr effect », *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 1243-1255 (2000).
- [298] A. Berger et M. R. Pufall, « Generalized magneto-optical ellipsometry », *Appl. Phys. Lett.* **71**, 965-967 (1997).
- [299] W. W. Clegg, N. A. E. Heyes, E. W. Hill, et C. D. Wright, « Development of a scanning laser microscope for magneto-optic studies of thin magnetic films », *J. Magn. Magn. Mater.* **95**, 49-57 (1991).
- [300] M. R. Freeman et J. F. Smyth, « Picosecond time-resolved magnetization dynamics of thin-film heads », *J. Appl. Phys.* **79**, 5898-5900 (1996).
- [301] K. Sato, « Measurement of Magneto-Optical Kerr Effect Using Piezo-Birefringent Modulator », *Jpn. J. Appl.*

- Phys.* **20**, 2403-2409 (1981).
- [302] P. Kasiraj, R. Shelby, J. Best, et D. Horne, « Magnetic domain imaging with a scanning Kerr effect microscope », *IEEE Trans. Magn.* **22**, 837-839 (1986).
- [303] I. S. Gradshtēin et I. M. Ryzhik, *Table of integrals, series, and products*, 7e éd. (Academic Press, 2007).
- [304] T. Henn, T. Kiessling, W. Ossau, L. W. Molenkamp, K. Biermann, et P. V. Santos, « Ultrafast supercontinuum fiber-laser based pump-probe scanning magneto-optical Kerr effect microscope for the investigation of electron spin dynamics in semiconductors at cryogenic temperatures with picosecond time and micrometer spatial resolution », *Rev. Sci. Instrum.* **84**, 123903 (2013).
- [305] A. Weber, F. Pressacco, S. Günther, E. Mancini, P. M. Oppeneer, et C. H. Back, « Ultrafast demagnetization dynamics of thin Fe/W(110) films: Comparison of time- and spin-resolved photoemission with time-resolved magneto-optic experiments », *Phys. Rev. B* **84** (2011).
- [306] J. Wang, G. A. Khodaparast, J. Kono, T. Slupinski, A. Oiwa, et H. Munekata, « Ultrafast optical manipulation of ferromagnetic order in InMnAs/GaSb », dans *Proceedings. IEEE Lester Eastman Conference on High Performance Devices*, (2002).
- [307] M. Buchmeier, R. Schreiber, D. E. Bürgler, et C. M. Schneider, « Thickness dependence of linear and quadratic magneto-optical Kerr effects in ultrathin Fe(001) films », *Phys. Rev. B* **79**, 064402 (2009).
- [308] O. Hellwig, A. Berger, J. B. Kortright, et E. E. Fullerton, « Domain structure and magnetization reversal of antiferromagnetically coupled perpendicular anisotropy films », *J. Magn. Magn. Mater.* **319**, 13-55 (2007).
- [309] D. Breton, E. Delagnes, J. Maalmi, et P. Rusquart, « The WaveCatcher family of SCA-based 12-bit 3.2-GS/s fast digitizers », dans *2014 19th IEEE-NPSS Real Time Conference*, (2014).
- [310] M. Hennes, A. Merhe, X. Liu, D. Weder, C. von K. Schmising, M. Schneider, C. M. Günther, B. Mahieu, G. Malinowski, et al., « Laser-induced ultrafast demagnetization and perpendicular magnetic anisotropy reduction in a Co 88 Tb 12 thin film with stripe domains », *Phys. Rev. B* **102**, 174437 (2020).
- [311] N. Moisan, G. Malinowski, J. Mauchain, M. Hehn, B. Vodungbo, J. Lüning, S. Mangin, E. E. Fullerton, et A. Thiaville, « Investigating the role of superdiffusive currents in laser induced demagnetization of ferromagnets with nanoscale magnetic domains », *Sci. Rep.* **4** (2015).
- [312] D. Ksenzov, A. A. Maznev, V. Unikandanunni, F. Bencivenga, F. Capotondi, A. Caretta, L. Foglia, M. Malvestuto, C. Masciovecchio, et al., « Nanoscale Transient Magnetization Gratings Created and Probed by Femtosecond Extreme Ultraviolet Pulses », *Nano Lett.* **21**, 2905-2911 (2021).
- [313] X. Liu, A. Merhe, E. Jal, R. Delaunay, R. Jarrier, V. Chardonnet, M. Hennes, S. G. Chiuzbaian, K. Légaré, et al., « Sub-15-fs X-ray pump and X-ray probe experiment for the study of ultrafast magnetization dynamics in ferromagnetic alloys », *Opt. Express* **29**, 32388-32403 (2021).
- [314] M. Shalaby, A. Donges, K. Carva, R. Allenspach, P. M. Oppeneer, U. Nowak, et C. P. Hauri, « Coherent and incoherent ultrafast magnetization dynamics in 3 d ferromagnets driven by extreme terahertz fields », *Phys. Rev. B* **98** (2018).
- [315] S. Bonetti, M. C. Hoffmann, M.-J. Sher, Z. Chen, S.-H. Yang, M. G. Samant, S. S. P. Parkin, et H. A. Dürr, « THz-Driven Ultrafast Spin-Lattice Scattering in Amorphous Metallic Ferromagnets », *Phys. Rev. Lett.* **117** (2016).
- [316] M. Hudl, M. d'Aquino, M. Pancaldi, S.-H. Yang, M. G. Samant, S. S. P. Parkin, H. A. Dürr, C. Serpico, M. C. Hoffmann, et al., « Nonlinear Magnetization Dynamics Driven by Strong Terahertz Fields », *Phys. Rev. Lett.* **123**, 197204 (2019).
- [317] A. Zagdoud, M. Vomir, M. Albrecht, M. Barthelemy, et J.-Y. Bigot, « Spin dynamics excited with mid-infrared femtosecond laser pulses », dans *International Conference on Ultrafast Phenomena*, (OSA, Snowmass, Colorado, 2010).
- [318] K. Bühlmann, R. Gort, G. Salvatella, S. Däster, A. Fognini, T. Bähler, C. Dornes, C. a. F. Vaz, A. Vaterlaus, et al., « Ultrafast demagnetization in iron: Separating effects by their nonlinearity », *Struct. Dyn.* **5**, 044502 (2018).
- [319] A. Fognini, G. Salvatella, R. Gort, T. Michlmayr, A. Vaterlaus, et Y. Acremann, « The influence of the excitation pulse length on ultrafast magnetization dynamics in nickel », *Struct. Dyn.* **2**, 024501 (2015).
- [320] D. L. Windt, « IMD—Software for modeling the optical properties of multilayer films », *Comput. phys.* **12**, 360-370 (1998).

- [321] K. C. Kuiper, T. Roth, A. J. Schellekens, O. Schmitt, B. Koopmans, M. Cinchetti, et M. Aeschlimann, « Spin-orbit enhanced demagnetization rate in Co/Pt-multilayers », *Appl. Phys. Lett.* **105**, 202402 (2014).
- [322] T. J. Hammond, S. Monchocé, C. Zhang, G. G. Brown, P. B. Corkum, et D. M. Villeneuve, « Femtosecond time-domain observation of atmospheric absorption in the near-infrared spectrum », *Phys. Rev. A* **94**, 063410 (2016).
- [323] A. A. Lanin, A. A. Voronin, A. B. Fedotov, et A. M. Zheltikov, « Time-domain spectroscopy in the mid-infrared », *Sci. Rep.* **4**, 6670 (2014).
- [324] A. Leblanc, P. Lassonde, S. Petit, J.-C. Delagnes, E. Haddad, G. Ernotte, M. R. Bionta, V. Gruson, B. E. Schmidt, et al., « Phase-matching-free pulse retrieval based on transient absorption in solids », *Opt. Express* **27**, 28998 (2019).
- [325] A. Rampur, D.-M. Spangenberg, B. Sierro, P. Hänzi, M. Klimczak, et A. M. Heidt, « Perspective on the next generation of ultra-low noise fiber supercontinuum sources and their emerging applications in spectroscopy, imaging, and ultrafast photonics », *Appl. Phys. Lett.* **118**, 240504 (2021).
- [326] D. Zusin, E. Iacocca, L. L. Guyader, A. H. Reid, W. F. Schlotter, T.-M. Liu, D. J. Higley, G. Coslovich, S. F. Wandel, et al., « Ultrafast perturbation of magnetic domains by optical pumping in a ferromagnetic multilayer », arXiv:2001.11719 (arXiv, 2022).
- [327] G. Fan, T. Balčiūnas, T. Kanai, T. Flöry, G. Andriukaitis, B. E. Schmidt, F. Légaré, et A. Baltuška, « Hollow-core-waveguide compression of multi-millijoule CEP-stable 3.2  $\mu\text{m}$  pulses », *Optica* **3**, 1308-1311 (2016).
- [328] J. J. Yeh et I. Lindau, « Atomic subshell photoionization cross sections and asymmetry parameters:  $1 \leq Z \leq 103$  », *At. Data Nucl. Data Tables* **32**, 1-155 (1985).
- [329] J.-J. Yeh, *Atomic Calculation of Photoionization Cross-sections and Asymmetry Parameters* (Gordon & Breach Science, Publishers, 1993).
- [330] B. L. Henke, E. M. Gullikson, et J. C. Davis, « X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at  $E = 50\text{-}30,000$  eV,  $Z = 1\text{-}92$  », *At. Data Nucl. Data Tables* **54**, 181-342 (1993).
- [331] M. Sacchi, N. Jaouen, H. Popescu, R. Gaudemer, J. M. Tonnerre, S. G. Chiuzbaian, C. F. Hague, A. Delmotte, J. M. Dubuisson, et al., « The SEXTANTS beamline at SOLEIL: a new facility for elastic, inelastic and coherent scattering of soft X-rays », *J. Phys.: Conf. Ser.* **425**, 072018 (2013).
- [332] M. Blume, « Magnetic scattering of x rays (invited) », *J. Appl. Phys.* **57**, 3615-3618 (1985).
- [333] J. Kuneš et P. M. Oppeneer, « Anisotropic x-ray magnetic linear dichroism at the L<sub>2,3</sub> edges of cubic Fe, Co, and Ni: Ab initio calculations and model theory », *Phys. Rev. B* **67**, 024431 (2003).
- [334] J. Kuneš, P. M. Oppeneer, S. Valencia, D. Abramsohn, H.-Ch. Mertins, W. Gudat, M. Hecker, et C. M. Schneider, « Understanding the XMLD and its magnetocrystalline anisotropy at the L<sub>2,3</sub>-edges of 3d transition metals », *J. Magn. Magn. Mater.* **272-276**, 2146-2147 (2004).
- [335] O. Hellwig, G. P. Denbeaux, J. B. Kortright, et E. E. Fullerton, « X-ray studies of aligned magnetic stripe domains in perpendicular multilayers », *Physica B Condens. Matter* **336**, 136-144 (2003).
- [336] I. H. Malitson, « Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica\*,† », *J. Opt. Soc. Am.* **55**, 1205-1209 (1965).
- [337] Y. Jiang, S. Pillai, et M. A. Green, « Realistic Silver Optical Constants for Plasmonics », *Sci. Rep.* **6**, 30605 (2016).

## 11 ANNEXE I : Information supplémentaire pour l'article 1 – XRMS dans un échantillon de terre rare

---

### 11.1 HHG generation and Photon Flux Characterization

The high-brightness HHG beam is driven by femtosecond pulses with  $\lambda_L = 1030$  nm with TW-level peak power, which was directly obtained through pulse compression of femtosecond pulses with  $\lambda_L = 1030$  nm, a pulse duration of  $\sim 220$  fs, and a pulse energy of 11 mJ from a Yb:CaF<sub>2</sub> amplifier. The pulse compression was achieved in a 3-meter long Ar-filled HCF and the spectrally broadened pulses were compressed by a set of chirped mirrors down to a pulse duration of 25 fs with an efficiency of  $>75\%$ . To achieve a high compression factor ( $\sim 10$ ), we employed a stretched waveguide technique [327]. The specially designed flexible HCF has a 1 mm inner diameter with  $\sim 300$ - $\mu\text{m}$ -thick fused silica cladding surrounded by a polymer layer.

In order to find the optimal conditions for generating HHG in the 100-220 eV spectral region, we compare the HHG conversion efficiency of HHG generated in helium with 1030 nm driving fields with generation schemes using OPAs ( $\lambda_L = 1500$  nm in neon and  $\lambda_L = 2400$  nm in argon). The laser pulse with  $\lambda_L = 2400$  nm was generated by a 3-stage OPA with a pulse energy of  $\sim 0.8$  mJ, while the laser pulse with  $\lambda_L = 1500$  nm was generated by a 4-stage OPA with a pulse energy of 3.7 mJ. The phase matching conditions in argon and neon were optimized correspondingly by adjusting the focusing geometry as well as the gas-cell length to achieve optimal phase-matching conditions, respectively.

The HHG spectrum was measured with an XUV spectrometer, which is based on a flat-field grating with a nominal groove number of 1200 lines/mm and an X-ray CCD camera (Andor Newton 920). The image of the 50- $\mu\text{m}$ -wide slit is imaged direct onto the camera through the concave grating. The absolute photon flux of HHG generated in helium with 1  $\mu\text{m}$  fields was estimated, on the other hand, in the diffraction experimental geometry by considering the quantum efficiency of the CCD camera, the transmittance of the filter and the reflectance of the multilayer mirror in the diffraction experimental geometry. The fluxes of HHG generated by the other two generation schemes were then calculated relatively according to the spectral intensity.

We estimated the photon flux from the detected CCD counts, the known sensitivity of the CCD (Andor Newton 920), the filter transmission and EUV bandpass mirror efficiency:

$$\text{Flux} = \frac{N_c \eta_{e-c} \eta_{p-e}}{QE \cdot T_{\text{filter}} T_{BP}} \quad (11.1)$$

In our setup, the EUV multi-layer mirror selected harmonics with photon energy of about 155 eV with a bandwidth of 5 eV and re-imaged them on the CCD, the ratio of photoelectrons and detected counts on the CCD  $\eta_{e-c} = \frac{N_e}{N_c}$  is around 7, the ratio of X-ray photons and generated photoelectrons  $\eta_{p-e} = \frac{N_p}{N_e}$  is around 1/26, the quantum efficiency of the CCD,  $QE$ , is 15%, 500-nm zirconium filters (with a transmission efficiency of 15% ) are used, and the EUV bandpass mirror has an efficiency of 3%. With the EUV transmission data, we obtained a flux for within 1% bandwidth of  $2 \times 10^9$  photon/s/1%BW for  $\lambda_L = 1030$  nm in helium, and the flux of the whole soft X-ray spectrum (100 eV-200 eV) is  $3 \times 10^{10}$  photon/s.

## 11.2 Phase matching optimization in loose focusing geometry

For a nonlinear optical frequency conversion process to be efficient, the phase velocities of the fundamental driving laser field and the harmonic light, need be matched so that the harmonic emissions from many atoms in the medium add coherently.

As is pointed out by Constant *et al.* [166], the optimal conditions of the medium ( $L_{\text{med}}$ ), coherence ( $L_{\text{coh}}$ ), and absorption lengths ( $L_{\text{abs}}$ ) are given by  $L_{\text{med}} > 3L_{\text{abs}}$ ,  $L_{\text{coh}} > 5L_{\text{abs}}$ . The coherent length is given by  $L_{\text{coh}} = \frac{\pi}{\Delta k}$ , where  $\Delta k$  is the wave vector mismatch between the infrared and the X-ray field.

In our experiment, the 1  $\mu\text{m}$  driver pulses are focused by an  $f = 125$  cm spherical mirror before a nickel tube with 20 mm inner diameter, which is pierced by the laser beam. The interaction intensity is  $6.5 \times 10^{14}$  W  $\text{cm}^{-2}$ , with the spot size of 260  $\mu\text{m}$ . The phase mismatch ( $\Delta k$ ) is determined by the geometrical wave vector mismatch caused by focusing ( $\Delta k_{\text{Gouy}}$ ) and due to the dispersion of the generation neutral gas  $\Delta k_{\text{Gas}}$  and the free electron ( $\Delta k_{\text{Dispersion}}$ ) [167]. Under the phase matched condition, the phase mismatch due to the  $\Delta k_{\text{Gouy}}$  phase is compensated by the gas and plasma dispersion. The estimated coherent length is  $>3$  cm, and absorption length is 0.6 cm, 1 cm, 1.9 cm at 130 eV, 150 eV, 190 eV, which are close to the absorption-limited condition [166].

## 11.3 Photon flux comparison of different driver wavelengths and gas types

Generally, the cutoff photon energy is given by the classical three-step model  $E = 3.17U_p + I_p$ , where  $U_p$  is the pondermotive potential and  $I_p$  the gas ionization potential. Different combinations

of driver wavelength and target gas can result in the same pondermotive energy, corresponding to the same cutoff photon energy. To find the optimal choice of the driver source and the target gas for achieving the highest HHG flux in the 150-220 eV spectral region, we compare the performance of HHG with 1030 nm driving in helium with that in neon and argon, driven by 1500 nm and 2400 nm wavelength pulses from OPAs which yield similar cutoff photon energy in the optimally phase-matched regime.

We face the choice of the optimal driver source and the target gas for achieving the highest HHG flux in a specified spectral region on the phase matching condition in the absorption limited regime. The yield of the  $q$ -th harmonic per unit interaction area and time is given by [154]

$$dI_q \propto \frac{\omega_q^2 \rho^2 |s_q|^2}{\alpha_q^2 + \Delta k^2} \left[ 1 + e^{-\frac{L_{\text{med}}}{L_{\text{abs}}}} - 2e^{-\frac{L_{\text{med}}}{2L_{\text{abs}}}} \cos(\Delta k L_{\text{med}}) \right], \quad (11.2)$$

where  $\omega_q$  is the harmonic frequency,  $s_q$  the single-atom response,  $\rho$  the gas density,  $\alpha_q = \rho \sigma_q / 2$  and  $\sigma_q$  is the absorption cross section of the harmonic field. Under the phase-matching condition, where  $\Delta k \approx 0$ , and for the harmonic orders in the spectral plateau, we have

$$dI_q \propto \left( \frac{\omega_q s_q}{\sigma_q} \right)^2 \quad (11.3)$$

The single-atom response  $s_q$  can be numerically calculated by considering the ionization, acceleration and recombination of the photo-ionized electrons. Thus, we can estimate that

$$s_q \propto \sigma_{\text{ion}} a(\omega_q) d(\omega_q), \quad (11.4)$$

where  $\sigma_{\text{ion}}$  is the photoionization cross-section,  $a(\omega_q)$  is the dipole acceleration and  $d(\omega_q)$  the dipole moment [154]. Overall, under the phase-matching condition and for HHG orders at the spectral plateau,  $a(\omega_q) d(\omega_q)$  scales with the driving wavelength by  $|a(\omega) d(\omega)|^2 \propto \lambda_L^{-5.5}$  [149,154]. As the result, we obtain

$$dI_q \propto \lambda_L^{-5.5} \left( \frac{\sigma_{\text{ion}}}{\sigma_q} \right)^2. \quad (11.5)$$

Photoionization cross-section [328,329] and absorption cross-section [330] are acquired from the literature. For a harmonic energy of 200 eV, the signal from helium is about 14 and 70 times as those from neon and argon, respectively.

The estimation above is further confirmed by our numerical simulations. In order to obtain simulated harmonic spectra from the interaction of noble gases with a strong laser field, we

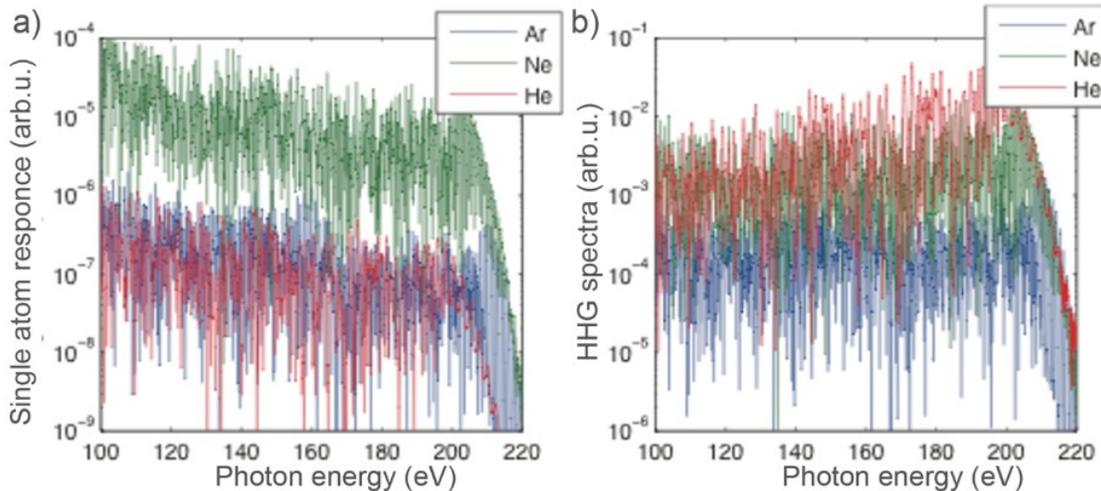
numerically solved three-dimensional time-dependent Schrödinger equation in velocity gauge with single active electron approximation. The key parameters used in the simulations are listed in Table 11.1. In these calculations, we employed the pseudospectral method with Tong-Lin models of the helium, neon and argon atoms. Afterwards, single-atom harmonic spectra were calculated from the Fourier transform of the dipole acceleration with the simulated electron wave functions. The laser wavelengths and the pulse durations for the simulations were the same as those in the corresponding measurements, while the pulse intensities were chosen to generate the corresponding cut-off energies.

**Tableau 11.1 Laser parameters**

	Wavelength (nm)	Pulse duration (fs)	Peak intensity ( $10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$ )
Helium	1030	25	5.93
Neon	1500	80	2.84
Argon	2400	100	1.06

**Laser parameters used in the simulation.**

To compare the HHG at the absorption limit with the phase-matching condition, Figure 11.1(b) represents the HHG spectra from the single atom efficiency (Figure 11.1(a)) by multiplying by the inverse square of the absorption cross-section of each gas, respectively. The overall trend of the simulation results is in excellent agreement with our experimental results.



**Figure 11.1 HHG spectra and simulation**

**(a) Single atom response from TDSE simulations. (b) Phase-matched HHG signal with wavelength scaling for He, Ne and argon.**

Furthermore, we compare our experiment results with previous experiments, and illustrate as

Figure 11.2.

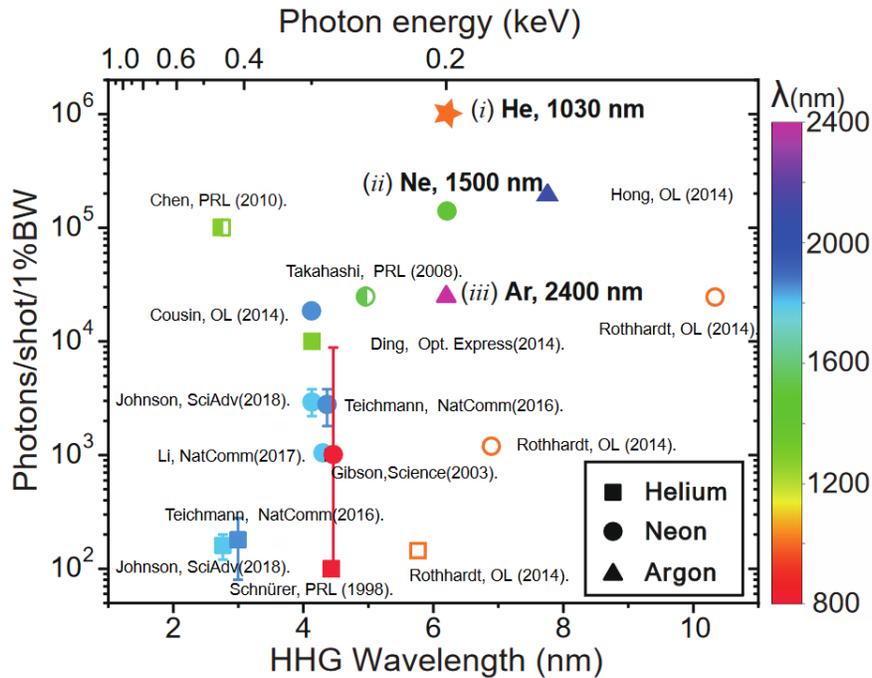


Figure 11.2 HHG spectra in the literature

Overview of the experimentally generated HHG flux in photons per shot per 1%BW above 100 eV in helium (squares), neon (circles) and argon (triangles). The driving field wavelength ( $\lambda_L$ ) is illustrated by marker colors. The repetition rate of HHG is at  $\sim 100$  kHz for open symbols, at  $\sim 50$  Hz for the half-filled symbols and at  $\sim 1$  kHz for the rest fully filled symbols.

#### 11.4 Measurements on the transmission and diffraction efficiency around the Tb N-edge

Lanthanide elements constitute an intrinsic feature of X-ray absorption: the  $4f$  electric dipole transitions at the N edge, which is so-called giant resonances, are among the strongest in the periodic table. In this work, we experimentally measured the transmission and diffraction efficiency around the Tb N-edge of our sample  $\text{Co}_{0.88}\text{Tb}_{0.12}$  at the SEXTANTS beamline [331] of Synchrotron SOLEIL (Fig. 11.3). Note that, these results are consistent with the previous experimental measurements with a higher energy resolution [208]. This confirms that highest diffraction efficiency is located at  $\sim 155.5$  eV, which helped us to determine the center energy of the multilayer mirrors used in our HHG experiment.

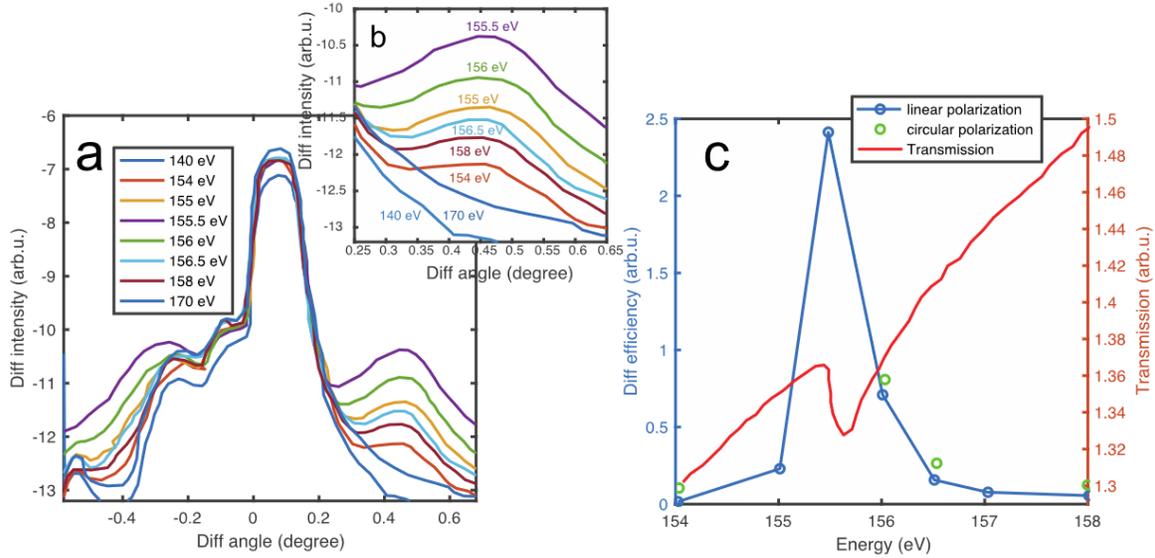


Figure 11.3 XRMS in  $\text{Co}_{0.88}\text{Tb}_{0.12}$

Experimental measurements of the diffraction efficiency and transmission of the sample  $\text{Co}_{0.88}\text{Tb}_{0.12}$  around Tb N-edge. (a) The total X-ray diffraction intensity and (b) the first order diffraction intensity vs. the diffraction angle by scanning X-ray photon energy from 140 eV to 170 eV. (c) The diffraction efficiency derived from (a) and (b), in comparison with the X-ray transmission around the N edge.

## 11.5 Mechanism of XRMS

Here, we show that the resonant magnetic scattering is dominantly contributed by the XMCD-like effect, while the XMLD-like effect can be safely ruled out from our results.

According to the theory, the amplitude of the magnetic scattering can be expressed as [332]

$$f^{(XRMS)} = \frac{3}{4} \lambda [\vec{e}_f^* \cdot \vec{e}_0 G_0 + i(\vec{e}_f^* \times \vec{e}_0) \cdot \hat{m} G_1 + (\vec{e}_f^* \cdot \hat{m})(\vec{e}_0 \cdot \hat{m}) G_2] \quad (11.6)$$

where  $\vec{e}_0$  and  $\vec{e}_f$  represent the polarization unit vectors for the incident and scattered light,  $\hat{m}$  is the unit vector of the sample magnetization and  $G_0$ ,  $G_1$  and  $G_2$  are the dipole matrix elements. The first term on the right-hand side of the above equation is represents the scattering effect on the charges, independent of the direction of the magnetic moment. The second term depends linearly on the direction of the magnetic moment, and  $G_1$  arises from the spin polarization of a partially occupied band, and from the exchange splitting of the empty states. Thus, the second term is analogy to the XMCD effect (XMCD-like). The last term depends quadratically on the magnetic moment, which is the XMLD-like effect in the scattering process. Quantitatively, the XMLD-like effect is a higher order effect with a much weaker contribution. This was confirmed by the theoretical calculations showing that the XMLD-like effect is generally at least one order of magnitude weaker, when compared to the XMCD-like effect, on the ferro- and ferrimagnetic

materials [333,334]. Meanwhile, because the polarization of the light field is perpendicular to the sample magnetization, leading to  $\vec{e}_0 \cdot \hat{m} = 0$ , we can safely exclude the contributions of the XMLD-like effect in our experiments.

When scattered on a network of magnetic domains with opposite out of plane magnetization direction, the overall magnetization scattering intensity as a function of the momentum transfer,  $I(k)$ , is given by [135]

$$I(k) = \left| \int_V f^{(XRMS)}(r) \exp(ikr) dr \right|^2 \quad (11.7)$$

The sum runs over the effective domains in the probing area. Assuming homogeneous charge distribution, the charge scattering in Eq. (12.6) can be neglected (the first term) and the scattering intensity can be written as

$$I(k) = \left| \int_V [\vec{k}_0 \cdot \hat{m}(r)] G_1 \exp(ikr) dr \right|^2 \propto \left| \int_A m_z(r) G_1 \exp(ikr) dr \right|^2 \quad (11.8)$$

With  $\vec{k}_0 \vec{e}_f^* \times \vec{e}_0$ . Note that  $\vec{k}_0$  points to the propagation direction of the X-ray here (z direction). The period area is denoted by  $A$  and  $m_z(r)$  represents the local out-of-plane components of the magnetization. As a result, the magnetic scattering intensity  $I(k)$  is proportional to the squared modulus of the two-dimensional Fourier transform of the magnetic domain pattern  $m_z(r)$ .

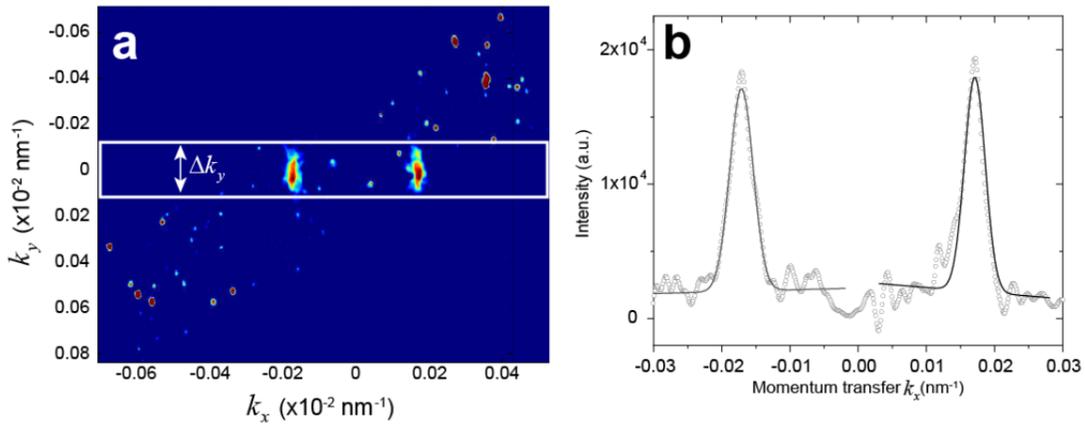
## 11.6 Sample magnetization and XRMS

Probing of magnetization state via small-angle X-ray magnetic scattering using linearly polarized X-ray pulses rely on preparation of periodically magnetized magnetic domain structure of the sample. The aligned magnetic stripe domains can be achieved using a magnetization procedure described in Ref. [335]. A thin-layer ferromagnetic sample with saturated out-of-plane magnetic moment forms a “labyrinth” domain state with a typical domain size that is dependent on the thickness of the sample. In order to achieve the aligned “stripe” domain state, the sample is demagnetized using a strong magnetic field along an in-plane axis.

## 11.7 Data analysis for tr-XRMS experiments

Two first-order diffraction peaks can be clearly observed in the XRMS diffraction pattern, corresponding to the stripe-like domain pattern of the sample. In order to retrieve the intensity and the peak position (momentum transfer), we first rotate the diffraction pattern so that the  $k_x$  direction is along the horizontal direction, as shown in Fig. 11.4(a). Then the intensity as a function

of  $k_x$  is obtained by integrating the intensity within the range of  $\Delta k_y$ , which yields 1D curves as shown in Fig. 11.4(b). The intensity and momentum transfers can be extracted by fitting the peaks symmetrical to  $k_x = 0$  by Gaussian functions (see Fig. 11.4(b)). We note that, because of the strong suppression of the sample magnetization, the diffraction peaks are too weak to reliably extract the peak position after 10 ps in our experiment. For data >10 ps, the sample magnetization (peak intensity) is extracted by direct integration of the intensity of the diffraction peaks in the pattern and normalized by taking the same integration at the ground state ( $t_d < 0$ ).



**Figure 11.4 Data analysis of XRMS data**

**(a)** A typical magnetic diffraction pattern after rotation that makes the horizontal direction the  $k_x$  direction. **(b)** The open symbols represent the extracted 1D curve by integrating the diffraction intensity along  $\Delta k_y$  in (a). The solid lines are the Gaussian fitting to the two diffraction peaks of the data.

### 11.8 Repetition rate and pump wavelength selection in tr-XRMS measurements

The performed proof-of-concept pump-probe experiment on the solid sample is not only critically important to achieve high HHG flux in the required spectral range of resonant magnetic absorption, but also to reach a high number of X-ray photons in each probe pulse.

In the tr-XRMS measurements, we found that the free-standing thin-film sample (50 nm CoTb alloy film) can be damaged by applying pump with 1 kHz repetition with a pump fluence  $\sim 5\text{mJ}/\text{cm}^2$  due to the poor thermal conductivity between the sample and the sample holder. In order to avoid damaging, we intentionally reduced the pump repetition rate to 500 Hz. In addition, in order to suppress the scattering background and increase the signal-to-noise ratio of our measurements, we excited the sample with 1550 nm light generated from a 3-stage OPA, to which the X-ray CCD camera is not sensitive.

## 12 ANNEXE II : Information supplémentaire pour l'article 2 – Désaimantation dans le proche infrarouge

### 12.1 Experimental details

The experiments were performed on 100 Hz beamline of the Advanced Laser Light Source (located at INRS-EMT, Varennes, Canada). The experimental setup is schematized in figure 12.1. It is very closely related to the experiment by Vodungbo *et al.* 2012. The technique consists of diffracting XUV photons on a magnetic material arranged in striped domains of out-of-plane magnetization with alternating orientation. The photons are in resonance with the  $M_{2,3}$ -edge of cobalt. The intensity of the diffraction is proportional to the transmission of the sample multiplied by the second power of the magnitude of the magnetization. This optical probe of the magnetization state is element specific and enables femtosecond temporal resolution. Since it is in transmission, it probes the bulk of the material rather than the surface. The dynamics of demagnetization are obtained pumping the sample before the probe and varying the delay between the two light pulses. The magnetization recovers on its own without the need for an external coercive magnetic field. However, one must be careful to allow the magnetization to fully recover before launching another pump-probe sequence, and not to inject too much heat in the system. High average pump power will cause static heating that will prevent the magnetization to recover between each sequence. In that regard, our relatively low repetition rate, 100 Hz, is a net advantage as it allows us to reach higher pump fluence before heating becomes an issue.

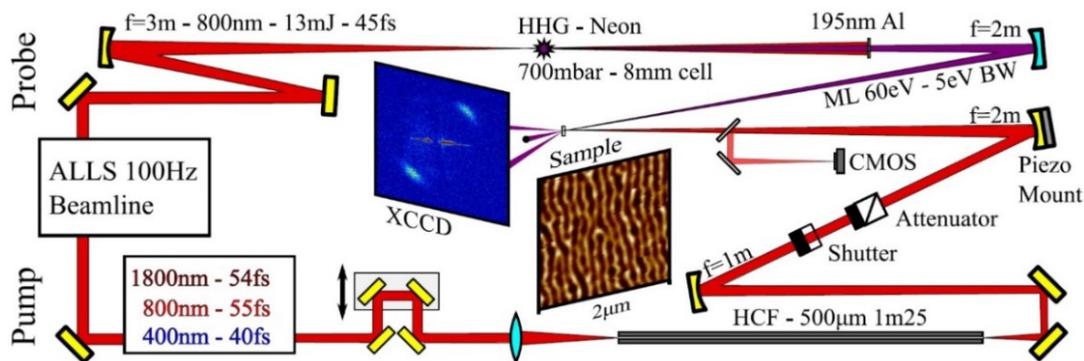


Figure 12.1 Experimental pump-probe line

The HHG generation point is reimaged 1:1 on the sample by a single concave  $r = +4$  m multilayer mirror (Ultrafast Innovation) placed at  $2f$  from the generation point and the sample. The pump beam is spatially filtered in a  $500\ \mu\text{m}$  core hollow-core fiber (few-cycle Inc.). The fiber output is reimaged on the sample by a 2:1  $4f$  imaging line. A polarization attenuator allowed control of the pump fluence for the 800 and 1800 nm pump. The fluence was controlled by neutral density filters for the 400 nm pump. The reflection from a glass wedge was used to help with the spatial overlap of the pump and the probe and to characterize the beam width at focus, using a PointGrey CMOS camera. The “Sample” frame shows a MFM image of the actual sample. It shows an average domain size of 74 nm.

The XUV photons were provided by a high harmonic source driven by 13 mJ, 800 nm, 45 fs pulses focused by a 3 m focal length mirror on an 8 mm neon-filled gas cell. The gas is delivered through a synchronized Parker pulsed valve with a backing pressure of 700 mbar. A two-stage differential pumping scheme prevents the gas to propagate in the rest of the vacuumed beamline. The pressure throughout the beamline was kept below  $5 \times 10^{-5}$  torr.

The energy of the magnetically active  $M_{2,3}$ -edge of cobalt, 60 eV, corresponds closely to the 39<sup>th</sup> harmonic of the laser driving the process. A first 200 nm thick aluminum foil blocks the strong fundamental VIS beam while transmitting >70% of the 60 eV photons. The XUV are reimaged on the magnetic sample by a 2 m focal multilayer mirror (XUV60BW5 – UltraFast Innovations Inc.) placed at 4 m from the generation point. The spot size of the focused 60 eV harmonic was measured to be <190  $\mu\text{m}$ . The high energy used for the generation combined with the long focal length allowed us to reach a flux of  $3.4 \times 10^8$  photons/sec on target, in the 5 nm reflectivity bandwidth of the multilayer mirror.

The magnetic sample consisted of a multilayer of cobalt platinum<sup>7</sup> on a SiN membrane, magnetized out-of-plane in parallel domains of  $\sim 75$  nm mean width by a slowly varying, damped, magnetic field applied parallel to the magnetic film. The SiN membrane was stretched over  $265 \times 265 \mu\text{m}$  apertures on a silicon substrate. Prior to the demagnetization experiment, the domains were imaged by magnetic force microscopy (“Sample” frame in figure 12.1).

The diffraction images were recorded on a water-cooled PI-MTE 2048b (13.5  $\mu\text{m}/\text{pixel}$ ) back-illuminated CCD. Acquisition time of 8.5 seconds was sufficient to achieve desired SNR for the acquisition of the demagnetization curves. The 0<sup>th</sup> order diffraction was blocked to prevent detector saturation while allowing the diffracted peak to reach the sensor.

A second laser output port with an independent compressor providing up to 6 mJ, 800 nm, 45 fs pulses is used as the source for the different wavelength pump beams. To provide 400 nm, this beam is first attenuated by a thin film polarizer attenuator, and then frequency doubled in a type I BBO. Fine control of the pump power was done with neutral density filters. The 800 nm pump beam was the direct beam attenuated to the  $\mu\text{J}$  level, first by the same thin film polarizer attenuator (down to 1 mJ) and then with neutral density filters. SHG and transient grating autocorrelation confirmed that the neutral density filter had no significant impact on the time duration of the pulses, nor were the thin film polarizers creating satellite pulses. The 1800 nm pump beam was obtained with a white-light OPA (HE-TOPAS, Light Conversion Inc.) providing up to 1 mJ of idler. This 1 mJ

---

<sup>7</sup>SiN<sub>30nm</sub>/Pt<sub>2nm</sub>/[Co0.6nmPt0.8nm]<sub>20</sub>/Al<sub>3nm</sub> (of which 1.5 nm of the Al capping layer are oxidized)

was attenuated to the desired energy level by an air-spaced achromatic half-wave plate followed the reflection of a germanium Brewster plate and by a colorPol© thin film polarizer.

The 800 nm and 1800 nm beams were coupled in a 500  $\mu\text{m}$  core, 1.25 m long stretched hollow-core fiber. This served two main purposes. First, the fiber acted as a spatial filter to provide a clean spatial profile. Second, by imaging the fiber output 2:1 on the sample in a 4f scheme, one knows that the different pump wavelengths will provide a similarly sized focal spot on the sample.

The 400 nm was not coupled to the fiber as its smaller wavelength allowed higher order spatial mode to propagate without significant attenuation through the 1.25 m fiber, counter-acting its usefulness as a spatial filter. To prevent significant changes to the optical path length while keeping the spot size similar on the magnetic sample, the fiber was removed but the 400 nm beam was focused on the position of the fiber output with a spot size corresponding to the EH<sub>11</sub> mode size of the 500  $\mu\text{m}$  fiber, i.e.  $320 \mu\text{m} 1/e^2$  diameter.

The delay line for the pump-probe setup was set on the pump arm, prior to the 2 m silver concave mirror. To monitor the pointing of the pump beam, help with spatial overlap of the probe and pump, and measure the focal spot size of the different pumps, the reflection from a fused silica wedge, placed after the concave mirror, was sent to a CCD camera. The wedge was removed during the acquisition of the diffraction images. A shutter blocked the pump beam for every other image to monitor the stability of the unperturbed diffraction signal and record a reference magnetization curve.

The pump focusing mirror was set on a piezo-controlled mirror mount. Spatial overlap was optimized by scanning the position of the pump beam at a fixed positive pump-probe delay. Successive scans between full acquisitions of demagnetization curves ensured the continued overlap of the pump and probe during scans.

The previously mentioned SHG-autocorrelator was used to monitor the pump pulse duration. Since the path length in air is long and water vapor absorption might affect the phase of the 1800 nm beam, the nonlinear crystal was positioned at the same total optical path length as the magnetic sample. For the 400 nm pump beam, transient grating was preferred to second harmonic generation.

Finally, for the wavelength scaling study to be complete, one must account for the wavelength-dependent reflectivity and transmissivity of the sample. An incoherent broadband source was used to measure the transmission and reflectivity of the membranes at the three different pump wavelengths. Knowing the reflectivity and transmissivity of the sample, the energy of the pump

pulses, and the size of the pump beam focal spot, we can calculate the effective fluence affecting the magnetization.

The XCCD frame of figure 12.1 represents a typical measured diffraction image. The domains had been demagnetized at  $45^\circ$  compared to the membrane edge. Knowing the pixel size ( $216 \mu\text{m}$   $13.5 \mu\text{m}$  with binning of 16) and the sample to XCCD distance (4.2 cm), we can calculate the wave vector transfer of the diffracted peak which is directly related to the domains mean width. It is measured at 83 nm. This is comparable to the value measured by MFM, 74 nm. The discrepancy is not surprising knowing that even within the  $2 \times 2 \mu\text{m}$  frame of the MFM scan, the observed domain width varied significantly, and that the MFM image couldn't be achieved directly on top of the membrane where the diffraction took place. Considering the bandwidth of the resonance, the discrepancy could also originate from a small uncertainty of the actual x-ray photon energy that are magnetically scattered.

## 12.2 Results

Each curve of figure 5.2 is an average of at least 3 acquired curves normalized with its own reference curve, concurrently measured by blocking the pump beam every other data point. Every data point corresponds to an 8.5 seconds image acquisition.

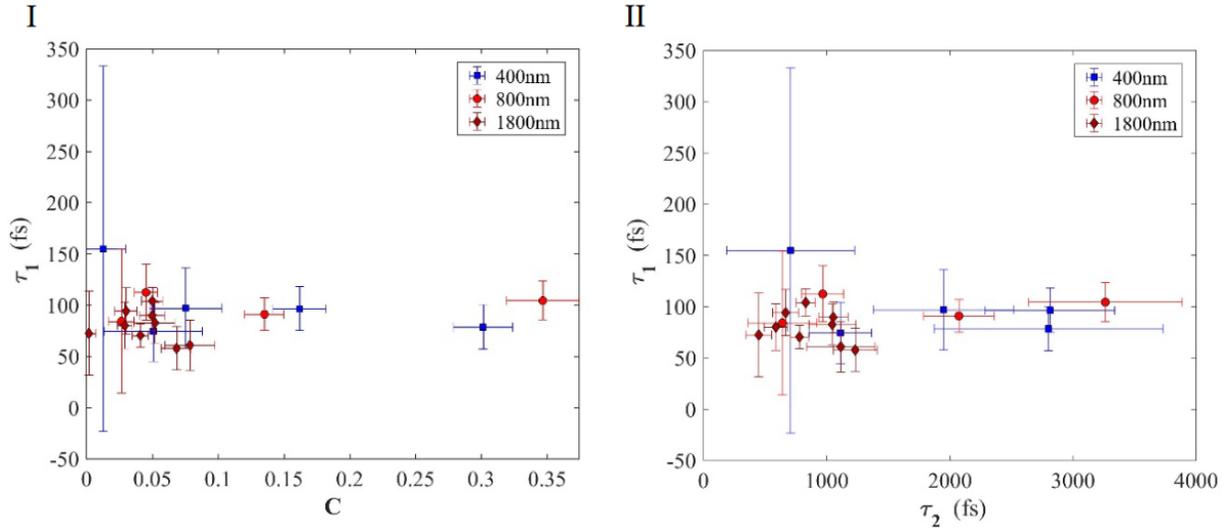
The Gaussian pulse should represent the cross correlation between the pump and probe pulses. Determining the precise duration of the XUV beam after reflection by the narrow bandwidth mirror is difficult. To circumvent this, the width of the Gaussian was kept as a fitting parameter with an initial value corresponding to the width of the pump pulses.

In a background-free environment, the normalization of the demagnetization curve with its pump-free reference should naturally give a value of 1. The actual value of the curves presented in figure 5.2 was indeed all in the range of 0.9 to 1.1. Yet, to be able to better compare the curves, they were normalized to one and refitted with the same empirical model.

Similarly to what was reported by *Vodungbo et al. Nat Comm. 2012*, we observe no change in the azimuthal or radial shape of the diffracted peak with varying pump-probed delay. It means, within the precision granted by the SNR of our XRMS images, that the domains size and orientation distributions were not affected by the transient deposition of energy from the laser pulses to the magnetic material.

The semi-classical demagnetization model predicts a wavelength-independent relaxation, and thermalization time, i.e.  $\tau_2$  and  $\tau_1$ . To highlight the former, we trace its dependence to the

asymptotic demagnetization,  $C$ , in shown Figure 12.3(a). We observe no discernable wavelength dependence. For the latter, Figure 5.2(d) indicates that  $\tau_1$  is independent of the pump wavelength, which is confirmed by the empirical fitting model (see Figure 12.2). Furthermore, it is also shown to be independent of both of the absorbed energy gauges,  $C$  and  $\tau_2$ .



**Figure 12.2 Thermalization time  $\tau_1$**

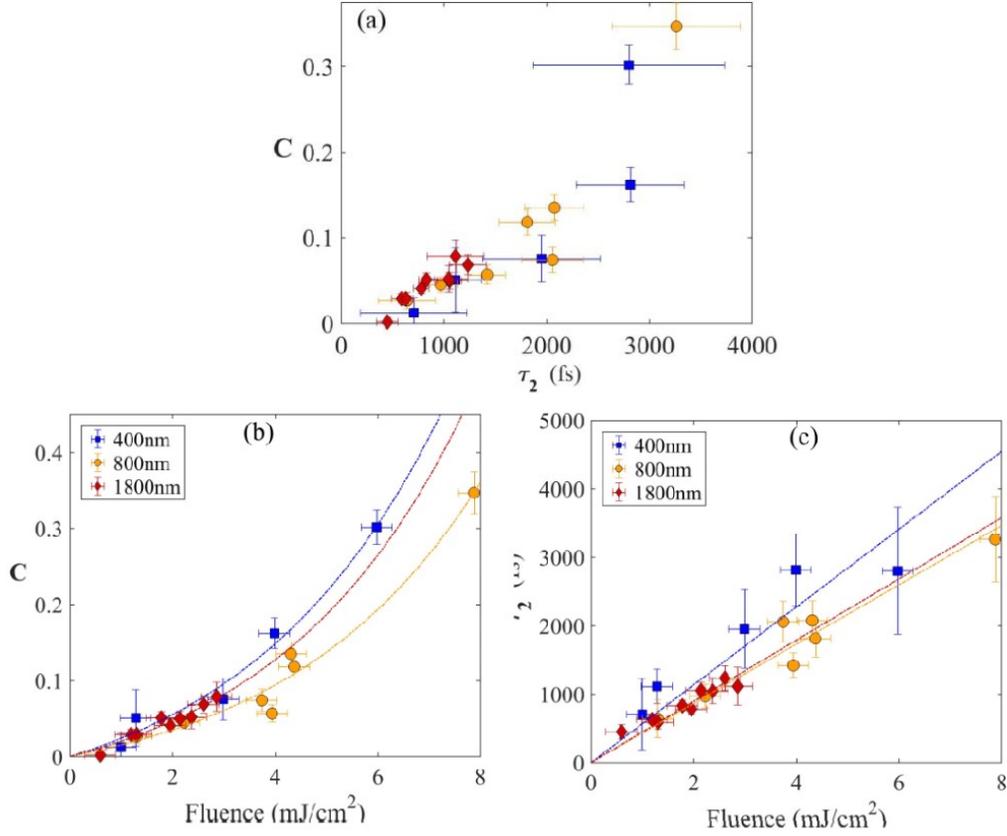
**Invariance of the thermalization time to the different pumping conditions. The average value of the thermalization time is  $(90 \pm 20)$  fs.**

The independent nature of  $\tau_1$  to both our energy gauges is also in good agreement with the findings of Vodungbo *et al.* 2012 [31] where they attribute the faster magnetization decay of their material compared to similar, but uniformly magnetized materials to inter-domain diffusion of spin-polarized electrons. The maximum demagnetization dependence on the absorbed fluence is linked to the electronic temperature reached, while the thermalization time is attributed to the specific property of the domains' junction, which is purely material-dependent. Similarly, the higher electronic temperature due to higher ponderomotive energy  $U_p$  yields higher magnetization quenching in our case.

Figure 5.3 presents the wavelength dependence of the maximum demagnetization in regard to the alternative deposited energy gauges introduce in the main letter. Here, figure 12.3(a) shows the interdependence of these alternative energy gauges,  $C$ , and  $\tau_2$ , with the pump wavelength. Figure 12.3(c) shows that here indeed a linear increase of the relaxation time  $\tau_2$ , with the pump fluence, as previously seen in the literature.

Contrary to figure 5.3, figure 12.3(a) shows no clear wavelength dependence on the  $C$  vs  $\tau_2$  curves. This either show that both  $C$  and  $\tau_2$  are wavelength independent, or at the very least, that

they share the same dependence to the pump wavelength. The latter case is unlikely, the different behavior of the maximum demagnetization,  $B$ , to  $C$ , and to  $\tau_2$ , still serves to show a global wavelength-dependent magnetization response of the material.



**Figure 12.3 Interdependence of the alternative energy gauges**

Interdependence of the alternative energy gauges with the absorbed fluence (i.e. after reflection from the sample surface). The blue squares points represent the fitting parameters for the 0.4  $\mu\text{m}$ -pumped curves. The orange circles represent the 0.8  $\mu\text{m}$ -pumped curves. Finally, the red diamonds represent the 1.8  $\mu\text{m}$ -pumped curves.

### 12.3 Maximum electron temperature and scaling with $\lambda^2$

At constant volume and neglecting coupling with phonons and spins, the increase of the thermal electron energy is equal to the average electromagnetic power absorbed by the medium, i.e.

$$C_e(T_e) \frac{d}{dt} T_e = \langle \frac{dW}{dt} \rangle, \quad (12.1)$$

where  $C_e(T_e) = \gamma T_e$  is the electron heat capacity and  $T_e$  is the electronic temperature. Using complex notation:

$$\langle \frac{dW}{dt} \rangle = \frac{1}{4} (\vec{E} \cdot \vec{J}^* + \vec{E}^* \cdot \vec{J}) = \frac{1}{4} i \omega \epsilon_0 (\epsilon_r^* - \epsilon_r) |\vec{E}|^2 = \frac{2\pi}{\lambda} \epsilon_2 I, \quad (12.2)$$

with the relative permittivity  $\epsilon_r = \epsilon_1 + i\epsilon_2$  and where  $\lambda$  and the laser intensity  $I = (\vec{E} \cdot \vec{E}^*)/2\eta_0$  are both defined in vacuum. Eq. (11.1) above can then be written in the following form

$$\int_{T_{e,0}}^{T_{e,0}+\Delta T_e} T_e dT_e = \frac{1}{\gamma} \frac{2\pi}{\lambda} \epsilon_2 \int_{-\infty}^{\infty} I dt \quad (12.3)$$

The integral over the laser intensity on the right-hand side is the fluence  $F$  which, in turn, defines the energy density transferred to the medium as  $W = 2\pi\epsilon_2 F/\lambda$ . After integration of the left-hand side, it is straightforward to show that

$$\Delta T_e = \sqrt{T_{e,0}^2 + \frac{2}{\gamma} W} - T_{e,0} \quad (12.4)$$

Eq. (11.4) gives an upper bound to the increase of the electron temperature for a given laser fluence and laser wavelength. The transfer of energy to the phonons and spins during the laser heating process will effectively lead to lower peak electronic temperatures.

For optical excitation in the infrared part of the electromagnetic spectrum, metals are fairly described by a Drude permittivity, in which case

$$\frac{2\pi}{\lambda} \epsilon_2 = \eta_0 \frac{\sigma}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (12.5)$$

For metals,  $\tau$  is typically in the tens of femtoseconds range and

$$\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle = \frac{1}{2} \left( \frac{\sigma}{1 + \omega^2 \tau^2} \right) E_0^2 \propto \lambda^2 \quad (12.6)$$

which leads to  $\Delta T_e \propto \lambda^2$ , in the case of moderate heating ( $\Delta T_e \ll T_{e,0}$ ).

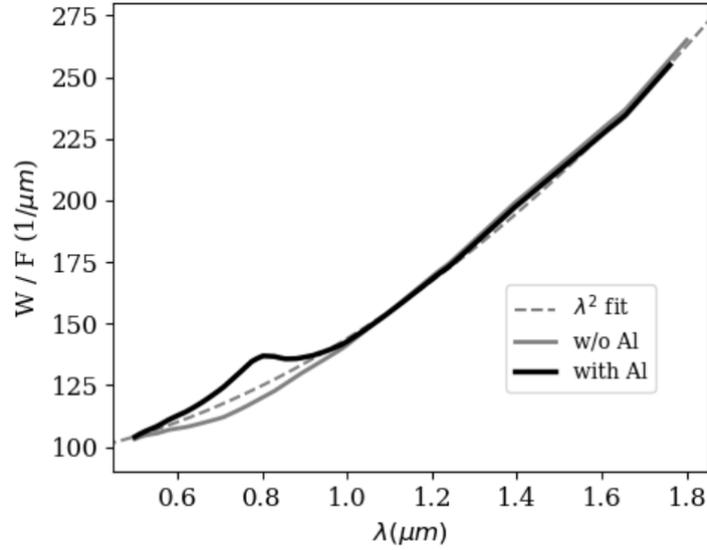
## 12.4 Optical data for Al, Co and Pt and effective scaling with $\lambda^2$

In the paper, we present an analysis based on optical data for Al, Co, and Pt. We computed an effective susceptibility by weighting the individual material contribution by their respective volume in the sample, i.e.

$$\epsilon_{eff} = 1 + \frac{\chi_{Al} l_{Al} + \chi_{Co} l_{Co} + \chi_{Pt} l_{Pt}}{L} \quad (12.7)$$

with  $L = l_{Al} + l_{Co} + l_{Pt}$ . Then we could compute the effective transfer of electromagnetic energy to the medium with  $W = 2\pi\epsilon_2 F/\lambda$ . The figure below shows that, excepted for a strong resonance

in Al around 800 nm,  $W$  scales effectively as  $\lambda^2$ .



**Figure 12.4** Energy density transferred to the material

Scaling of the energy density transferred to the material with  $\lambda$ , with and without the Al capping layer.

## 12.5 Fraction of the energy transferred to Co/Pt with the Beer-Lambert law

The Beer-Lambert law stipulates that light absorption at a rate  $\alpha$  (in units of 1/m) produces an exponential decay of the light intensity with the penetration distance  $z$  into the medium, i.e.  $I(z) = I_0 e^{-\alpha z}$ . In a multilayer sample, the light intensity after  $n$  consecutive layers is thus  $I_n = I_0 e^{-\alpha_1 l_1} e^{-\alpha_2 l_2} \dots e^{-\alpha_n l_n} = I_0 \exp(-\sum_{k=1}^n \alpha_k l_k)$ , where  $\alpha_k$  and  $l_k$  are the absorption coefficient and thickness of the  $k^{\text{th}}$  layer. The power absorbed in the  $n^{\text{th}}$  layer is then

$$P_n = \alpha_n A I_0 \exp(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k) f(t) \int_0^{l_n} e^{-\alpha_n z} dz = A I_0 \exp(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k) f(t) (1 - e^{-\alpha_n l_n}) \quad (12.8)$$

where  $A$  is the transverse area of the beam (for a Gaussian beam profile  $A = \pi w_0^2/2$ ) and  $f(t)$  is the envelope function of the laser pulse (e.g.  $e^{-2t^2/T^2}$  for a Gaussian pulse). The total absorbed power is obtained by summing over the  $N$  layers of the sample:

$$P = \sum_{n=1}^N P_n = A I_0 f(t) \sum_{n=1}^N \exp\left(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k\right) (1 - e^{-\alpha_n l_n}) \quad (12.9)$$

If the sample layers are mapped as Al<sub>3</sub>/[Pt<sub>0.8</sub>Co<sub>0.6</sub>]<sub>30</sub>/Pt<sub>2</sub>/SiN<sub>30</sub>, i.e. the aluminum layer corresponds

to  $n = 1$ , the fraction of energy absorbed in  $[\text{Pt}_{0.8}\text{Co}_{0.6}]_{30}/\text{Pt}_2$  is given by

$$\% \text{ in Co/Pt} = 1 - \frac{AI_0 f(t)(1 - e^{-\alpha_1 l_1})}{P} = \frac{\sum_{n=2}^N \exp(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k) (1 - e^{-\alpha_n l_n})}{\sum_{n=1}^N \exp(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k) (1 - e^{-\alpha_n l_n})} \quad (12.10)$$

This expression gives only a rough estimate of the fraction of energy deposited in Co/Pt as it misses two important electromagnetic effects: optical reflection at the interfaces and multiple beam interference.

## 12.6 Fraction of the energy transferred to Co/Pt with the thin-film electromagnetic theory

The optical properties of the  $\text{Al}_3/[\text{Pt}_{0.8}\text{Co}_{0.6}]_{30}/\text{Pt}_2/\text{SiN}_{30}$  sample can be obtained with the electromagnetic thin-film theory. We followed the formalism given in Born and Wolf, *Principles of Optics, 7th ed* (Cambridge University Press, 2006), chapter 1.6 and estimated the wavelength dependence of the absorptivity of the  $[\text{Pt}_{0.8}\text{Co}_{0.6}]_{30}/\text{Pt}_2$  stack sandwiched between an Al layer and SiN (with  $n \approx 1.85$ ). (See paper for the references for the Al, Co and Pt optical data.)

Given the complex refractive index for Al ( $n_{\text{Al}} = \sqrt{\epsilon_{\text{Al}}}$ ) and SiN ( $n_{\text{SiN}} \approx 1.85$ ), the reflection and transmission coefficients are given by:

$$r = \frac{(m_{11} + m_{12}n_{\text{SiN}})n_{\text{Al}} - (m_{21} + m_{22}n_{\text{SiN}})}{(m_{11} + m_{12}n_{\text{SiN}})n_{\text{Al}} + (m_{21} + m_{22}n_{\text{SiN}})} \quad t = \frac{2n_{\text{Al}}}{(m_{11} + m_{12}n_{\text{SiN}})n_{\text{Al}} + (m_{21} + m_{22}n_{\text{SiN}})}$$

With the reflectivity  $R = |r|^2$  and transmissivity  $T = \frac{\text{Re}(n_{\text{SiN}})}{\text{Re}(n_{\text{Al}})} |t|^2$  we found the absorptivity  $A = 1 - R - T$ , i.e. the fraction of the incident energy from Al onto  $[\text{Pt}_{0.8}\text{Co}_{0.6}]_{30}/\text{Pt}_2$  that is effectively absorbed in the magnetic part of the sample.

The parameters  $m_{ij}$  are the elements of the  $[\text{Pt}_{0.8}\text{Co}_{0.6}]_{30}/\text{Pt}_2$  transfer matrix that follows

$$m = \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{bmatrix} = (m_{\text{Pt},0.8} m_{\text{Co},0.6})^{30} m_{\text{Pt},2}$$

where the matrix  $m_{a,l}$  is the individual transfer matrix of material  $a$  of thickness  $l$  (in nm):

$$m_{\text{Al}} = \begin{bmatrix} \cos \beta & -\frac{i}{p} \sin \beta \\ -ip \sin \beta & \cos \beta \end{bmatrix}$$

with  $\beta = 2\pi l \sqrt{\epsilon_a}/\lambda$ ,  $p = \sqrt{\epsilon_a/\mu_a}$  and  $i = \sqrt{-1}$ .



## 13 ANNEXE III : Information supplémentaire pour l'article 4 – Analyse de montages MOKE

---

### 13.1 Example of calculation with Jones formalism

Here is a simplified example of the calculation of the final polarization state using Jones formalism. For this example, the optimized configuration of the modulator-analyzer setup is used. The transmission axis of the first polarizer is rotated by  $\beta = 90^\circ$  with respect to the plane of incidence, so the initial polarization state is  $P = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix}$ . The transmission axis of the analyzer is rotated by  $\alpha = 45^\circ$  with respect to the plane of incidence and the matrix that represents this element becomes  $A = \begin{bmatrix} 1/2 & 1/2 \\ 1/2 & 1/2 \end{bmatrix} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix}$ . As stated in the main text (Eq. (7)), the final polarization state is described by:

$$\begin{aligned}
 \begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}^f &= AOSP \\
 &= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{i\frac{\varphi}{2}} & 0 \\ 0 & e^{-i\frac{\varphi}{2}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} r_{pp}e^{i\delta_{pp}} & r_{ps}e^{i\delta_{ps}} \\ r_{sp}e^{i\delta_{sp}} & r_{ss}e^{i\delta_{ss}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} \\
 &= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{i\frac{\varphi}{2}} & 0 \\ 0 & e^{-i\frac{\varphi}{2}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} r_{ps}e^{i\delta_{ps}} \\ r_{ss}e^{i\delta_{ss}} \end{bmatrix} \\
 &= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} r_{ps}e^{i\delta_{ps}}e^{i\frac{\varphi}{2}} \\ r_{ss}e^{i\delta_{ss}}e^{-i\frac{\varphi}{2}} \end{bmatrix} \\
 &= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} r_{ps}e^{i\delta_{ps}}e^{i\frac{\varphi}{2}} + r_{ss}e^{i\delta_{ss}}e^{-i\frac{\varphi}{2}} \\ r_{ps}e^{i\delta_{ps}}e^{i\frac{\varphi}{2}} + r_{ss}e^{i\delta_{ss}}e^{-i\frac{\varphi}{2}} \end{bmatrix}
 \end{aligned}$$

In general, the intensity of the detected signal is  $I^{M-A} = |\mathbf{E}^f|^2 = |E_p|^2 + |E_s|^2$ . In this configuration, however,  $E_p = E_s$ :

$$\begin{aligned}
 I^{M-A} &= 2|E_p|^2 \\
 &= \frac{1}{2} \left( r_{ps}e^{i\delta_{ps}}e^{i\frac{\varphi}{2}} + r_{ss}e^{i\delta_{ss}}e^{-i\frac{\varphi}{2}} \right) \left( r_{ps}e^{-i\delta_{ps}}e^{-i\frac{\varphi}{2}} + r_{ss}e^{-i\delta_{ss}}e^{i\frac{\varphi}{2}} \right) \\
 &= \frac{1}{2} \left( r_{ps}^2 + r_{ss}^2 + r_{ps}r_{ss}e^{i(\delta_{ps}-\delta_{ss})}e^{i\varphi} + r_{ps}r_{ss}e^{-i(\delta_{ps}-\delta_{ss})}e^{-i\varphi} \right)
 \end{aligned}$$

The exponentials  $e^{\pm i\varphi}$ , which express the retardation caused by the modulator, can be expanded in a Fourier series of Bessel functions using Eq. (6) of the main text:

$$\begin{aligned}\cos \varphi &= J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) + \dots \\ \sin \varphi &= 2J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) + \dots\end{aligned}$$

Considering only the first two harmonic orders, the intensity of the detected signal becomes:

$$\begin{aligned}I^{M-A} &= \frac{1}{2} \left[ r_{ps}^2 + r_{ss}^2 + r_{ps}r_{ss}e^{i(\delta_{ps}-\delta_{ss})}(\cos \varphi + i \sin \varphi) + r_{ps}r_{ss}e^{-i(\delta_{ps}-\delta_{ss})}(\cos \varphi - i \sin \varphi) \right] \\ &= \frac{1}{2} \left[ r_{ps}^2 + r_{ss}^2 + r_{ps}r_{ss}e^{i(\delta_{ps}-\delta_{ss})}[J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) + 2iJ_1(\varphi_0) \sin(\omega t)] \right. \\ &\quad \left. + r_{ps}r_{ss}e^{-i(\delta_{ps}-\delta_{ss})}[J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) - 2iJ_1(\varphi_0) \sin(\omega t)] \right]\end{aligned}$$

The Kerr rotation  $\theta_{s,p}$  and ellipticity  $\varepsilon_{s,p}$  are described by (Eq. (4) of the main text):

$$\begin{aligned}\theta_s &= \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}) \\ \theta_p &= \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \cos(\delta_{sp} - \delta_{pp}) \\ \varepsilon_s &= \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss}) \\ \varepsilon_p &= \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \sin(\delta_{sp} - \delta_{pp})\end{aligned}$$

To retrieve these quantities in the expression for the intensity of the detected signal, the exponential expressions  $e^{\pm i(\delta_{ps}-\delta_{ss})}$  are also expanded into trigonometric functions:

$$\begin{aligned}I^{M-A} &= \frac{1}{2} \left[ r_{ps}^2 + r_{ss}^2 \right. \\ &\quad \left. + r_{ps}r_{ss}[\cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}) + i \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss})][J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) \right. \\ &\quad \left. + 2iJ_1(\varphi_0) \sin(\omega t)] \right. \\ &\quad \left. + r_{ps}r_{ss}[\cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}) - i \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss})][J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) \right. \\ &\quad \left. - 2iJ_1(\varphi_0) \sin(\omega t)] \right]\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= \frac{1}{2} [r_{ps}^2 + r_{ss}^2 + r_{ps}r_{ss} \cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}) [J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t)] \\
&\quad + 2ir_{ps}r_{ss} \cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}) J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) \\
&\quad + ir_{ps}r_{ss} \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss}) [J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t)] \\
&\quad - 2r_{ps}r_{ss} \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss}) J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) \\
&\quad + r_{ps}r_{ss} \cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}) [J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t)] \\
&\quad - 2ir_{ps}r_{ss} \cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}) J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) \\
&\quad - ir_{ps}r_{ss} \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss}) [J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t)] \\
&\quad - 2r_{ps}r_{ss} \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss}) J_1(\varphi_0) \sin(\omega t)] \\
&= \frac{1}{2} [r_{ps}^2 + r_{ss}^2 + 2r_{ps}r_{ss} \cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}) [J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t)] \\
&\quad - 4r_{ps}r_{ss} \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss}) J_1(\varphi_0) \sin(\omega t)] \\
&= \frac{1}{2} [r_{ps}^2 + r_{ss}^2 + 2r_{ss}^2 \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \cos(\delta_{ps} - \delta_{ss}) [J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t)] \\
&\quad - 4r_{ss}^2 \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \sin(\delta_{ps} - \delta_{ss}) J_1(\varphi_0) \sin(\omega t)] \\
&= \frac{1}{2} [r_{ps}^2 + r_{ss}^2 + 2r_{ss}^2 \theta_s [J_0(\varphi_0) + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t)] - 4r_{ss}^2 \varepsilon_s J_1(\varphi_0) \sin(\omega t)] \\
&= \frac{r_{ps}^2}{2} + \frac{r_{ss}^2}{2} + J_0(\varphi_0) \theta_s r_{ss}^2 - 2J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) \varepsilon_s r_{ss}^2 + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) \theta_s r_{ss}^2
\end{aligned}$$

As expected, this result corresponds to Eq. (11) of the main text.

### 13.2 Development of MOKE measurements with a quarter waveplate

One way to measure the Kerr ellipticity from a PBS-based setup is to replace the half-waveplate with a quarter waveplate. The Jones matrix of the quarter waveplate is:

$$Q = \frac{1-i}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} \cos^2 \phi + i \sin^2 \phi & (1-i) \sin \phi \cos \phi \\ (1-i) \sin \phi \cos \phi & \sin^2 \phi + i \cos^2 \phi \end{bmatrix}$$

Then, for a setup that includes a modulator, the measured intensity is:

$$\begin{aligned}
I_0 = & J_0(\varphi_0) [\cos^2 \beta \theta_p r_{pp}^2 + \sin^2 \beta \theta_s r_{ss}^2] \sin(4\phi) \\
& + 2J_0(\varphi_0) [\cos^2 \beta \varepsilon_p r_{pp}^2 - \sin^2 \beta \varepsilon_s r_{ss}^2] \sin(2\phi) \\
& + [\sin^2 \beta (r_{ps}^2 - r_{ss}^2) + \cos^2 \beta (r_{pp}^2 - r_{sp}^2)] \cos^2(2\phi) \\
& - J_0(\varphi_0) \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ss} \sin(\delta_{pp} - \delta_{ss}) + r_{ps} r_{sp} \sin(\delta_{ps} - \delta_{sp})] \sin(2\phi) \\
& + \frac{1}{2} J_0(\varphi_0) \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ss} \cos(\delta_{pp} + \delta_{ss}) + r_{ps} r_{sp} \cos(\delta_{ps} + \delta_{sp})] \sin(4\phi) \\
& + \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ps} \cos(\delta_{pp} - \delta_{ps}) - r_{ss} r_{sp} \cos(\delta_{ss} - \delta_{sp})] \cos^2(2\phi)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
I_\omega = & -4J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) [\cos^2 \beta \theta_p r_{pp}^2 + \sin^2 \beta \theta_s r_{ss}^2] \sin(2\phi) \\
& + 2J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) [\cos^2 \beta \varepsilon_p r_{pp}^2 - \sin^2 \beta \varepsilon_s r_{ss}^2] \sin(4\phi) \\
& - 2J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ss} \cos(\delta_{pp} - \delta_{ss}) + r_{ps} r_{sp} \cos(\delta_{ps} - \delta_{sp})] \sin(2\phi) \\
& + J_1(\varphi_0) \sin(\omega t) \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ss} \sin(\delta_{ss} - \delta_{pp}) + r_{ps} r_{sp} \sin(\delta_{sp} - \delta_{ps})] \sin(4\phi)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
I_{2\omega} = & 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) [\cos^2 \beta \theta_p r_{pp}^2 + \sin^2 \beta \theta_s r_{ss}^2] \sin(4\phi) \\
& + 4J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) [\cos^2 \beta \varepsilon_p r_{pp}^2 - \sin^2 \beta \varepsilon_s r_{ss}^2] \sin(2\phi) \\
& - 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ss} \sin(\delta_{pp} - \delta_{ss}) + r_{ps} r_{sp} \sin(\delta_{ps} - \delta_{sp})] \sin(2\phi) \\
& + J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t) \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ss} \cos(\delta_{pp} - \delta_{ss}) + r_{ps} r_{sp} \cos(\delta_{ps} - \delta_{sp})] \sin(4\phi)
\end{aligned}$$

Without modulator, it becomes:

$$\begin{aligned}
I = & [\cos^2 \beta \theta_p r_{pp}^2 + \sin^2 \beta \theta_s r_{ss}^2] \sin(4\phi) \\
& + 2[\cos^2 \beta \varepsilon_p r_{pp}^2 - \sin^2 \beta \varepsilon_s r_{ss}^2] \sin(2\phi) \\
& + [\sin^2 \beta (r_{ps}^2 - r_{ss}^2) + \cos^2 \beta (r_{pp}^2 - r_{sp}^2)] \cos^2(2\phi) \\
& - \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ss} \sin(\delta_{pp} - \delta_{ss}) + r_{ps} r_{sp} \sin(\delta_{ps} - \delta_{sp})] \sin(2\phi) \\
& + \frac{1}{2} \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ss} \cos(\delta_{pp} + \delta_{ss}) + r_{ps} r_{sp} \cos(\delta_{ps} + \delta_{sp})] \sin(4\phi) \\
& + \sin(2\beta) [r_{pp} r_{ps} \cos(\delta_{pp} - \delta_{ps}) - r_{ss} r_{sp} \cos(\delta_{ss} - \delta_{sp})] \cos^2(2\phi)
\end{aligned}$$

It is then apparent that the Kerr ellipticity can be measured by maximizing  $\sin(2\phi)$ , which will also cancel the first and third terms, while choosing  $\beta = \{0^\circ, 90^\circ, 180^\circ, \dots\}$ , which will cancel the last 3 terms and determinate whether the measurement is linked to the complex Kerr angle  $\theta_s$  or  $\theta_p$ .

### 13.3 Effect of mirror reflections

The polarization state is changed by the reflection on any mirror. A Jones matrix that describes this polarization change can be included in the calculations. The Jones matrix of one imperfect mirror is:

$$M_1 = \begin{bmatrix} \tilde{r}_{m1,p} & 0 \\ 0 & \tilde{r}_{m1,s} \end{bmatrix},$$

where  $\tilde{r}_{m1,p}$  and  $\tilde{r}_{m1,s}$  are the complex Fresnel coefficients of the mirror for  $p$ - and  $s$ -polarized light, respectively, with  $\tilde{r}_{m1,p} = r_{m1,p}e^{i\xi_{m1,p}}$  and  $\tilde{r}_{m1,s} = r_{m1,s}e^{i\xi_{m1,s}}$ . For  $N$  mirrors, the matrix becomes:

$$M = \begin{bmatrix} r_{m,p}e^{i\xi_{m,p}} & 0 \\ 0 & r_{m,s}e^{i\xi_{m,s}} \end{bmatrix},$$

where the total reflectivity amplitude is  $r_m = r_{m1} \times r_{m2} \times \dots \times r_{mN}$ , the total phase is  $\xi_m = \xi_{m1} + \xi_{m2} + \dots + \xi_{mN}$  and the indices  $p$  and  $s$  denote the corresponding polarization. Assuming that only the mirrors placed after the sample influence the polarization, which is accurate in the case of incident  $p$ - and  $s$ -polarization, the final polarization state is described by  $\begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}^f = AOMSP$  for the modulator-analyzer setup. For the optimized configuration with the polarizer at  $\beta = 90^\circ$  and the analyzer at  $\alpha = 45^\circ$ , the final polarization state is:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}^f &= AOMSP \\ &= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} r_{m,p}e^{i\xi_{m,p}} & 0 \\ 0 & r_{m,s}e^{i\xi_{m,s}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{i\frac{\phi}{2}} & 0 \\ 0 & e^{-i\frac{\phi}{2}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} r_{pp}e^{i\delta_{pp}} & r_{ps}e^{i\delta_{ps}} \\ r_{sp}e^{i\delta_{sp}} & r_{ss}e^{i\delta_{ss}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} \end{aligned}$$

The measured intensity becomes:

$$\begin{aligned} I^{M-A}(\beta = 90^\circ, \alpha = 45^\circ) &= r_{m,p}^2 \frac{r_{ps}^2}{2} + r_{m,s}^2 \frac{r_{ss}^2}{2} \\ &\quad + J_0(\varphi_0)[\theta_s \cos(\Delta\xi_m) - \varepsilon_s \sin(\Delta\xi_m)]r_{m,p}r_{m,s}r_{ss}^2 \\ &\quad - 2J_1(\varphi_0) \sin(\omega t)[\varepsilon_s \cos(\Delta\xi_m) + \theta_s \sin(\Delta\xi_m)]r_{m,p}r_{m,s}r_{ss}^2 \\ &\quad + 2J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t)[\theta_s \cos(\Delta\xi_m) - \varepsilon_s \sin(\Delta\xi_m)]r_{m,p}r_{m,s}r_{ss}^2, \end{aligned}$$

where  $\Delta\xi_m = \xi_{m,p} - \xi_{m,s}$  is the phase difference induced by the mirrors between the  $p$ - and  $s$ -polarizations. For the optimized modulator-PBS setup, it can be shown that the effects of imperfect mirrors are the same:

$$\begin{aligned} I^{M-PBS}(\beta = 90^\circ, \phi = 22.5^\circ) &= 2J_0(\varphi_0)[\theta_s \cos(\Delta\xi_m) - \varepsilon_s \sin(\Delta\xi_m)]r_{m,p}r_{m,s}r_{ss}^2 \\ &\quad - 4J_1(\varphi_0) \sin(\omega t)[\varepsilon_s \cos(\Delta\xi_m) + \theta_s \sin(\Delta\xi_m)]r_{m,p}r_{m,s}r_{ss}^2 \\ &\quad + 4J_2(\varphi_0) \cos(2\omega t)[\theta_s \cos(\Delta\xi_m) - \varepsilon_s \sin(\Delta\xi_m)]r_{m,p}r_{m,s}r_{ss}^2. \end{aligned}$$

The effects of imperfect mirrors are two-fold: i) the polarization-dependent reflectivity amplitude adds a factor  $r_{m,p}r_{m,s}$  to the measurements and ii) the polarization-dependent phase drastically changes the measurements. Indeed, unless  $\Delta\xi_m$  is set to cancel either  $\cos(\Delta\xi_m)$  or  $\sin(\Delta\xi_m)$ , the intensity measured in any harmonic is going to be a combination of the Kerr rotation and ellipticity.

Although the measurement is still directly related to the Kerr effect, this means that the effect of the mirrors must be carefully considered when attempting to measure the Kerr rotation or ellipticity independently.

In the static experiment presented in the main text, there are three protected silver mirrors (Thorlabs, Inc.) after the sample. These mirrors have a silver substrate coated with about 100 nm of SiO<sub>2</sub>. To estimate the phase shift  $\Delta\xi_m$  for these mirrors, calculations based on the characteristic matrix of the mirror coating can be made [110]. Using the refractive indices from Malitson [336] and Jiang et al. [337], the complex Fresnel coefficients for those mirrors at an incidence angle of 45° and for a wavelength of 633 nm are calculated:

$$\begin{aligned}\tilde{r}_{m1,p} &= 0.96 - 0.23i \\ \tilde{r}_{m1,s} &= 0.98 - 0.01i.\end{aligned}$$

For three such mirrors, the estimated phase difference induced between the *p*- and *s*-polarizations is  $\Delta\xi_m = -39^\circ$ . This means that, when reading the second harmonic, the Kerr rotation is affected by a factor  $\cos(\Delta\xi_m) = 0.78$  while the Kerr ellipticity is affected by a factor  $\sin(\Delta\xi_m) = -0.63$ . In this case, both contributions are mixed and cannot be measured independently.