

Université du Québec
Institut National de la Recherche Scientifique
Centre Énergie, Matériaux et Télécommunication

SOURCE DE RAYONS X ULTRA-RAPIDE À L'ÉCHELLE DU LABORATOIRE : ÉTUDE DE LA
DÉSAIMENTATION ULTRA-RAPIDE

Par
Vincent Cardin

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

François Vidal
INRS-EMT

Examineur externe

Michel Piché
COPL
Université Laval

Examineur externe

Carlos Silva
Georgia Institute of Technology

Directeur de recherche

François Légaré
INRS - EMT

À Louis Cardin

1955 – 2015

À Xavier Cardin

Né 2016

À Gabriel Cardin

Né 2018

REMERCIEMENTS

Une façon d'apprendre à nager à ses enfants est de simplement les jeter à l'eau¹. Ils apprendront vite. Je ne sais pas si c'est l'approche que le Prof. Légaré a utilisée avec ses trois jeunes enfants, mais c'est certainement l'approche qu'il utilise avec ses étudiants et ses étudiantes en ce qui concerne le travail en laboratoire. Peu de temps après son arrivée à l'INRS, il ou elle se retrouve dans un laboratoire rempli d'outils et d'instruments complexes avec un projet ambitieux, mais tout le support nécessaire pour atteindre ses objectifs. Il ne lui reste plus qu'à apprendre à nager.

J'ose croire que cette approche a réussi avec moi. Je veux donc commencer par remercier le Prof. Légaré de m'avoir offert cette opportunité et de m'avoir confié des objectifs très ambitieux, en rétrospective. J'ai beaucoup appris et j'ai beaucoup grandi en naviguant d'un défi à l'autre. François, ta confiance, ton soutien constant et ta réaction humaine, mais efficace, face aux échecs et aux erreurs des personnes sous ta charge font de toi un directeur de recherche exceptionnel. Malgré les conséquences parfois très dispendieuses de ces erreurs, je ne t'ai jamais entendu faire le moindre reproche injuste à quiconque. Toujours orienté vers les solutions, vers la prochaine étape, tu seras mon modèle de leadership pendant longtemps.

Finalement, les plus observateurs auront remarqué que ce doctorat a commencé en 2013. François, je me dois donc de souligner aussi ta patience. Merci.

Je veux remercier les docteurs Nicolas Thiré, Bruno Schmidt et Tadas Balciunas. Chacun à leur façon, ils m'ont transmis leur éthique de travail et des leçons de vie qui me suivront tout au long de ma carrière. Si ma carrière est un jour couronnée de succès, les avoir côtoyés à son tout début en aura été pour quelque chose. Je me considère profondément chanceux.

Il me faut absolument saluer l'équipe technique de ALLS, Carol Morissette, Léonard Peltier, Guy Lebrun, Antoine Laramée et Philippe Lassonde. Vous étiez une équipe formidable, une force de travail comme il s'en voit rarement ailleurs. Vous m'avez appris beaucoup. Votre aide et votre patience ont été inestimables. Léonard, Guy, et bientôt Carol, profitez-bien de votre retraite. Vous l'avez 100 fois méritée.

¹ Sous une surveillance vigilante... bien sûr. Cette surveillance colle aussi très bien à l'analogie.

Je veux saluer mes collègues étudiants, étudiantes et postdocs: Samuel, Vincent, Vincent, Adrien, Guilmot, Nazar, Mina, Katherine, Denis. Vous avez rendu mon passage à l'INRS beaucoup plus agréable. Merci pour les discussions, le café et les projets communs. Bonne chance dans vos carrières, peu importe où elles vous amènent dans le monde.

Pour finir sur une touche plus personnelle, ce doctorat aura aussi été témoin de moments importants dans ma vie. Il a vu le décès de mon père, la naissance de mon premier fils et la naissance de mon second fils. Il a vu l'achat de mon premier domicile, la vente de mon premier domicile et l'achat de mon second domicile. Il a vu mes premiers vols en avion. Il a vu mon 25^e vol en avion. Il a vu de longues semaines à l'étranger, loin de ma famille. Il a vu près de cinquante semaines pendant lesquelles j'étais totalement cloîtré dans le laboratoire ; en principe près, mais au final tout aussi loin d'elle. Toutes ces étapes ont forgé l'homme que je suis aujourd'hui.

Catherine a été ma constante ligne de vie durant ces longues périodes parfois difficiles, parfois tristes, mais souvent stimulantes. Son support et son amour inconditionnels m'ont permis de garder la tête froide et de persévérer malgré les erreurs de parcours, les échecs successifs et les incertitudes. Mes enfants, ma mère, mon frère et ma sœur m'ont permis de garder les deux pieds sur terre. J'aimerais croire que ce doctorat n'est que le fruit de ma persévérance et de mon savoir-faire, mais en réalité je sais très bien que sans leur support combiné, je n'aurais pas accompli même une fraction du travail que j'ai fait ces dernières années. Ils méritent toute ma gratitude et tout mon amour.

RÉSUMÉ

La maîtrise de l'émission et la détection des rayons X a permis d'ouvrir le monde nanoscopique au développement scientifique et technologique. Les technologies actuelles ne permettent que d'observer des phénomènes nanoscopiques statiques, à l'équilibre. Le besoin de sources X ultra-rapides pour l'observation de phénomènes dynamiques ultra-rapides à l'échelle de l'ultra-petit, a justifié la construction récente de lasers à électrons libres. À l'instar des synchrotrons, ces infrastructures sont gigantesques et très dispendieuses.

Nous proposons ici une option beaucoup plus économique, à l'échelle du laboratoire. Cette option produit des impulsions X beaucoup plus courtes et plus faciles à synchroniser que les lasers à électrons libres. Cette source de rayons X est basée sur la technique de génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG). Elle permet l'obtention de photons parfaitement cohérents de ≈ 15 jusqu'à > 543 eV. Cette gamme d'énergie couvre beaucoup de seuils d'absorption atomiques intéressants pour la spectroscopie et l'imagerie avec des applications diverses incluant l'étude de systèmes biologiques ou la matière condensée. Dans cette thèse, je me suis intéressé à la désaimantation ultra-rapide de matériaux magnétiques.

Nous présentons l'optimisation d'une source X qui couvre la fenêtre de l'eau, c.-à-d. une gamme d'énergie qui s'étend de 284 jusqu'à 543 eV. Cette gamme d'énergie correspond à une fenêtre où l'eau absorbe plus faiblement le rayonnement que les structures riches en azote et en carbone. Les seuils d'absorption du carbone, de l'azote, et de l'oxygène qu'elle contient rendent la fenêtre de l'eau très intéressante pour la spectroscopie d'échantillons biologiques in situ.

Nous présentons une méthode de compression d'impulsions laser qui permet de compresser significativement la durée d'une impulsion laser avec une efficacité de plus de 70 %. Cette réduction importante de la durée de l'impulsion avec une perte mineure d'énergie augmente son intensité crête. La technique est parfaitement adaptée pour la compression d'impulsions laser provenant d'un amplificateur par dérive de fréquences (CPA) ou d'un amplificateur paramétrique optique (OPA), entre autres. Nous montrons que l'utilisation d'impulsions courtes est bénéfique à la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Finalement, nous démontrons les capacités de la source X en étudiant l'aimantation ultra-rapide de multicouches de $[\text{Co/Pt}]_{30}$ et d'un alliage de CoTb au seuil M du cobalt (60 eV) et au seuil N du terbium (155 eV), respectivement. En profitant de la spécialisation du laboratoire ALLS en optique nonlinéaire, nous étudions l'effet de la longueur d'onde sur le processus de désaimantation. Nous trouvons que la désaimantation est plus efficace pour les longues longueurs d'onde.

Mots-clés : Rayons X ultra-rapides ; rayons x sur table ; HHG ; fenêtre de l'eau ; compression par fibre creuse ; infrarouge ; désaimantation ultra-rapide ; diffraction X magnétique résonante ; pompe-sonde

ABSTRACT

Advances in the emission and detection of X-rays have allowed tremendous scientific and technological achievements in the field of nanomaterials. However, current technologies are limited to the observation of static phenomena. The need for ultrafast X-ray sources to observe ultrafast dynamics at the nanoscopic scale has justified the construction of free electron lasers. Like synchrotrons, they are incredibly expensive and complex machines.

We are proposing a much cheaper tabletop alternative that produces potentially shorter X-ray pulses and causes no synchronization issues. It is based on high harmonic generation (HHG). It generates X-ray photons with energy ranging from ≈ 15 to > 543 eV. This broad bandwidth contains many atomic absorption edges relevant for the spectroscopy and imagery of biomaterials and condensed matter. In this thesis, I study the ultrafast demagnetization process in condensed matter.

We present the optimization of such a tabletop X-ray source that covers the water window, an energy range spanning from 284 to 543 eV. In this energy window, water absorbs less radiation than nitrogen and carbon-rich structures. Because of the absorption edges from carbon, nitrogen and oxygen it contains, the water window attracts significant interest for in-situ spectroscopy of biological samples.

We present a laser pulse post-compression method allowing a significant reduction of the pulse duration with an energy throughput higher than 70%. This simple yet efficient compression scheme increases the compressed pulse peak intensity manyfold. The technique is well suited for the compression of laser pulses coming from a chirped pulse amplification setup or from an optical parametric amplifier (OPA). We show that the use of short pulses is highly beneficial to the HHG process.

Finally, we demonstrate the capabilities of our tabletop X-ray source by studying the ultrafast demagnetization of a $[\text{Co}/\text{Pt}]_{30}$ multilayer and a CoTb alloy at the M-edge of cobalt (60 eV) and the N-edge of terbium (155 eV), respectively.

Benefiting from ALLS's expertise in up and down conversion of its laser pulses, we study the effect of the pump wavelength on the ultrafast demagnetization process. We find that the quenching of the magnetization is more efficient if pumped by a long-wavelength laser.

Keywords : Ultrafast X-rays; Tabletop X-rays; HHG; water window; hollow-core fiber compression; infrared; ultrafast demagnetization; pump-probe

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	III
RÉSUMÉ	V
ABSTRACT	VII
TABLE DES MATIÈRES	IX
LISTE DES FIGURES	XIII
LISTE DES TABLEAUX	XV
LISTE DES ÉQUATIONS	XVII
LISTE DES ABRÉVIATIONS	XIX
1 INTRODUCTION	21
1.1 FEMTOSLICING, FEL & HHG — COMPLÉMENTARITÉ DES SOURCES.....	22
1.1.1 <i>Synchrotron</i>	22
1.1.2 <i>FELs</i>	23
1.1.3 <i>HHG</i>	23
1.2 OBJECTIFS & RÉALISATIONS.....	25
1.3 CHRONOLOGIE.....	26
1.4 DIVISION DES CHAPITRES.....	26
2 HHG DANS LES GAZ RARES	29
2.1 MODÈLE À TROIS ÉTAPES.....	29
2.2 CONSIDÉRATIONS D'ACCORD DE PHASE.....	34
2.3 ÉNERGIE DE COUPURE ET EFFICACITÉ DE GÉNÉRATION.....	36
2.4 DURÉE DES IMPULSIONS DE RAYONS X.....	38
3 HHG DANS LA FENÊTRE DE L'EAU	41
3.1 DÉFINITION DE LA FENÊTRE DE L'EAU.....	41
3.2 AUTRES SOURCES DANS LE MONDE.....	41
3.3 RÉSUMÉ FRANÇAIS DE <i>CARDIN ET AL. J. PHYS B. 2018</i> => NOTRE SOLUTION.....	42
3.4 AUTRES RÉSULTATS.....	44
3.5 ARTICLE SUPPLÉMENTAIRE I – 10 MJ 5-CYCLE PULSES AT 1.8 μ M THROUGH OPTICAL PARAMETRIC AMPLIFICATION.....	46
3.5.1 <i>Mise en contexte et résumé</i>	46
3.5.2 <i>Résumé Anglais</i>	46
3.5.3 <i>Contribution personnelle</i>	46

4	ARTICLE I - SELF-CHANNELLED HIGH HARMONIC GENERATION OF WATER WINDOW SOFT X-RAYS.....	47
4.1	ABSTRACT	48
4.2	MAIN ARTICLE.....	48
4.3	EXPERIMENTAL DETAILS	51
4.4	RESULTS	52
4.5	CONCLUSION	61
4.6	ACKNOWLEDGMENT.....	61
5	LIGNE DE RAYONNEMENT X AU SEUIL M DES MÉTAUX DE TRANSITION.....	63
5.1	OPTIMISATION DE LA SOURCE HHG DANS ALLS AU SEUIL M DU COBALT	63
5.2	EFFICACITÉ DE CONVERSION AUTOUR DE 60eV	65
5.3	DÉSAIMANTATION ULTRA-RAPIDE	66
5.4	PHÉNOMÈNES MAGNÉTO-OPTIQUES COMME SONDE DE LA DÉSAIMANTATION ULTRA-RAPIDE	68
5.5	DÉSAIMANTATION ULTRA-RAPIDE AU SEUIL M DU COBALT PAR DIFFRACTION MAGNÉTIQUE RÉSONANTE	73
5.6	CONCLUSION	80
5.7	ARTICLE SUPPLÉMENTAIRE II – COHERENT TABLETOP EUV PTYCHOGRAPHY OF NANOPATTERNS	81
	5.7.1 <i>Mise en contexte et résumé</i>	81
	5.7.2 <i>Résumé anglais</i>	82
	5.7.3 <i>Contribution personnelle</i>	82
6	DÉPENDANCE DE LA DÉSAIMANTATION ULTRA-RAPIDE SUR LA LONGUEUR D’ONDE DE LA POMPE.....	83
6.1	AVANTAGE DE ALLS	83
6.2	INTUITION SUR LA RÉPONSE OPTIQUE DU MÉTAL À UNE LONGUEUR D’ONDE DE POMPE DIFFÉRENTE.....	84
	6.2.1 <i>Nuances</i>	85
6.3	RÉSUMÉ FRANÇAIS DE <i>CARDIN ET AL. PRB 2020</i> => EXPÉRIENCE.....	86
	6.3.1 <i>Jauge alternative de l’énergie déposée</i>	87
	6.3.2 <i>Conclusions de l’article et suite</i>	90
7	ARTICLE II - WAVELENGTH SCALING OF ULTRAFAST DEMAGNETIZATION IN CO/PT MULTILAYERS	91
7.1	ABSTRACT	92
7.2	MAIN ARTICLE.....	92

8	POST-COMPRESSION DANS UNE FIBRE CREUSE	103
8.1	NOUVELLE GÉNÉRATION DE SOURCES FEMTOSECONDES.....	103
8.2	AUTOMODULATION DE PHASE DANS UNE FIBRE CREUSE	104
8.3	COMPENSATION DE LA PHASE	106
8.4	RÉSUMÉ FRANÇAIS DE <i>CARDIN ET AL. APL 2015</i> => COMPRESSION DANS L'INFRAROUGE.....	107
8.5	EFFET SUR LA HHG.....	108
8.6	APPLICABILITÉ DE LA TECHNIQUE DE COMPRESSION AVEC UNE FIBRE CREUSE FLEXIBLE DÉVELOPPÉE DANS ALLS.....	113
9	ARTICLE III - 0.42 TW 2-CYCLE PULSES AT 1.8 μM VIA HOLLOW-CORE FIBER COMPRESSION.....	115
9.1	ABSTRACT	116
9.2	MAIN ARTICLE.....	116
10	DIFFRACTION RÉSONANTE AU SEUIL N DU TERBIUM.....	123
10.1	HHG AVEC YTTERBIUM	123
10.2	ARTICLE SUPPLÉMENTAIRE III – DIRECT COMPRESSION OF 170-FS 50- CYCLE PULSES DOWN TO 1.5 CYCLES WITH 70% TRANSMISSION.....	125
	<i>10.2.1 Mise en contexte et résumé</i>	<i>125</i>
	<i>10.2.2 Résumé anglais.....</i>	<i>126</i>
	<i>10.2.3 Contribution personnelle.....</i>	<i>126</i>
10.3	ARTICLE SUPPLÉMENTAIRE IV – TIME-RESOLVED MAGNETIC MICRO-SPECTROSCOPY WITH A BRIGHT SOFT-X-RAY HIGH-HARMONIC SOURCE.....	127
	<i>10.3.1 Mise en contexte et résumé</i>	<i>127</i>
	<i>10.3.2 Résumé anglais.....</i>	<i>128</i>
	<i>10.3.3 Contribution personnelle.....</i>	<i>128</i>
11	CONCLUSION	129
12	BIBLIOGRAPHIE	131

13	ANNEXE I — TRAITEMENT DES IMAGES DE XRMS	145
13.1	MÉTHODOLOGIE D'ACQUISITION D'IMAGE :	145
	13.1.1 Séquence d'acquisition.....	145
	13.1.2 Diagnostique.....	145
13.2	EXTRACTION DES POINTS DE DONNÉES FORMANT LES COURBES DE DÉSAIMANTATION :	146
13.3	ANALYSE DE LA DYNAMIQUE TEMPORELLE.....	148
13.4	ANALYSE DES ÉLÉMENTS STRUCTURAUX	149
13.5	ANALYSE DE LA FLUENCE	149
14	ANNEXE II – INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR L'ARTICLE <i>CARDIN ET AL. PRB 2020</i> (CHAPITRE 7)	151
14.1	EXPERIMENTAL DETAILS	151
14.2	RESULTS	154
14.3	MAXIMUM ELECTRON TEMPERATURE AND SCALING WITH Λ^2	156
14.4	OPTICAL DATA FOR AL, CO, AND PT AND EFFECTIVE SCALING WITH Λ^2	157
14.5	FRACTION OF THE ENERGY TRANSFERRED TO CO/PT WITH THE BEER-LAMBERT LAW.....	158
14.6	FRACTION OF THE ENERGY TRANSFERRED TO CO/PT WITH THE THIN-FILM ELECTROMAGNETIC THEORY	159

LISTE DES FIGURES

FIGURE 1-1	ZONES D'ÉMISSION ET COMPLÉMENTARITÉ DES SOURCES XUV ET RAYONS X ULTRACOURTS DANS L'ESPACE DES PARAMÈTRES DE LA DURÉE DES IMPULSIONS (FS) EN FONCTION DE L'ÉNERGIE DE PHOTON ACCESSIBLE (eV).	25
FIGURE 2-1	SCHÉMATISATION DU MODÈLE À TROIS ÉTAPES	30
FIGURE 2-2	ILLUSTRATION DE LA CONSTRUCTION COHÉRENTE DU SIGNAL HARMONIQUE POUR LES HARMONIQUES IMPAIRES	32
FIGURE 2-3	TRAJECTOIRES HARMONIQUES ET ÉNERGIE D'ÉMISSION À LA RECOMBINAISON	33
FIGURE 2-4	INTERFÉRENCES ENTRE DEUX SOURCES HARMONIQUES IDENTIQUES, SÉPARÉES D'UN DÉLAI DE 0 ET 15 FS.....	33
FIGURE 2-5	PRESSION (BLEUE) ET ÉNERGIE MINIMALE D'IMPULSION (ROUGE) POUR L'ACCORD DE PHASE DE L'HARMONIQUE 21 D'UN FAISCEAU DE 800 NM DANS L'ARGON, EN FONCTION DE LA GÉOMÉTRIE DE FOCALISATION.....	35
FIGURE 2-6	SPECTRE D'HARMONIQUES NORMALISÉ À 800 NM DANS LE NÉON, POUR UNE IMPULSION DE 40 FS.....	38
FIGURE 3-1	CARTES 2D DE L'INTENSITÉ CRÊTE DU CHAMP LASER (HAUT), DE L'AMPLITUDE DU DIPÔLE (MILIEU) ET DU CHAMP HARMONIQUE (BAS) À 300 eV EN FONCTION DE LA DISTANCE RADIALE PAR RAPPORT À L'AXE DE PROPAGATION ($R = 0 \mu\text{m}$).....	45
FIGURE 4-1	REPRESENTATION OF THE HHG DRIVING LASER (UPPER BOX, AS DESCRIBED IN REF [53]) WITH THE GENERATION AND CHARACTERIZATION VACUUM CHAMBERS.....	52
FIGURE 4-2	WATER WINDOW HHG SPECTRA WITH ABSORPTION SPECTRA OF A 200NM MYLAR AND 200NM TI FILTERS.....	53
FIGURE 4-3	HHG BEAM PROFILE AS MEASURED BY THE XUV-CCD WITH COLOR-CODED HORIZONTAL AND VERTICAL CROSS SECTION.....	54
FIGURE 4-4	SINGLE-SHOT CARBON K-EDGE ABSORPTION SPECTRA.....	55
FIGURE 4-5	EVIDENCE OF SELF-GUIDING OF THE DRIVING LASER DURING THE HIGH HARMONIC GENERATION PROCESS.	57
FIGURE 4-6	PRESSURE AND ENERGY SCANS FOR THE WATER WINDOW HARMONIC SPECTRA.....	58
FIGURE 4-7	SIMULATION RESULTS FOR THE AXIAL AND RADIAL INTENSITY PROFILE ASSUMING A 3.5 MJ, 30 FS, 1800 NM DRIVING LASER FOCUSED ON A 9 MM, 2000 TORR, HELIUM CELL BY A 60CM LENS.	60
FIGURE 4-8	RADIAL INTENSITY DISTRIBUTION OF A 2 MJ, 30 FS, 1800 NM LASER PULSE FOCUSED ON A NEON-FILLED CELL AFTER 3MM OF PROPAGATION. THE INITIAL INTENSITY IS $4.4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$	61
FIGURE 5-1	PROFIL DU FAISCEAU HARMONIQUE À 60 eV APRÈS L'ÉQUIVALENT D'UNE PROPAGATION DE 80 CM SUIVANT LA ZONE DE GÉNÉRATION.....	64
FIGURE 5-2	DÉSAIMANTATION ULTRA-RAPIDE DU NICKEL.....	66
FIGURE 5-3	SCHÉMATISATION DE LA DÉSAIMANTATION ULTRA-RAPIDE	67
FIGURE 5-4	CARACTÉRISATION DE LA DIFFRACTION AU SYNCHROTRON SOLEIL, LIGNE SEXTANT.....	73
FIGURE 5-5	IMAGE MFM DE (A) L'ALLIAGE $\text{Co}_{0.9}\text{Tb}_{0.1}$ ET (B) MULTICOUCHE $[\text{Co}_{0.6}\text{Pt}_{0.8}]_{30}$. LE TRAIT BLANC REPRÉSENTE UNE DISTANCE DE $1 \mu\text{m}$	74
FIGURE 5-6	MONTAGE EXPÉRIMENTAL POUR L'EXPÉRIENCE DE XRMS.	75
FIGURE 5-7	COURBE DE RÉFLECTIVITÉ ET DE LA DISPERSION DU MIROIR MULTICOUCHE UTILISÉ. GRACIEUSETÉ DE ULTRAFASST INNOVATION GMBH.	76

FIGURE 5-8	IMAGES XRMS POST-TRAITEMENT À $1/6^E$ DE LA RÉOLUTION COMPLÈTE DE LA CCD.....	77
FIGURE 5-9	EXEMPLES D'IMAGES DE XRMS QUI COMPOSENT LES COURBES DE DÉSAIMANTATION	78
FIGURE 5-10	TEMPS CARACTÉRISTIQUES DE DÉSAIMANTATION (LOSANGES BLEUS, GAUCHE) ET TEMPS DE RECOUVREMENT (CARRÉS ROUGES, DROITE) DES COURBES DE DÉSAIMANTATION MESURÉES À LA FIGURE 5-10 ET MODÉLISÉES PAR L'ÉQUATION 5-7 EN FONCTION DE LA FLUENCE DIRECTE.....	79
FIGURE 6-1	SCHÉMATISATION DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL POUR L'EXPÉRIENCE DE XRMS ÉTUDIANT L'EFFET DE LA LONGUEUR D'ONDE.....	87
FIGURE 6-2	PARAMÈTRE B DU MODÈLE (ÉQUATION (5-7)) EN FONCTION DE LA FLUENCE INCIDENTE POUR LES COURBES DE DÉSAIMANTATION AUX TROIS LONGUEURS D'ONDE DE FLUENCES (400 NM – CARRÉS BLEUS ; 800 NM – CERCLES ORANGE ; 1800 NM – LOSANGES ROUGES).....	88
FIGURE 6-3	INTERDÉPENDANCE DES JAUGES DE L'ÉNERGIE DÉPOSÉE DANS L'ÉCHANTILLON MAGNÉTIQUE.	89
FIGURE 7-1	CONCEPTUALIZATION OF THE XRMS TECHNIQUE	93
FIGURE 7-2	DEMAGNETIZATION CURVES FOR THE THREE PUMP WAVELENGTHS (A: 400 NM, B: 800 NM, C: 1800 NM)	95
FIGURE 7-3	WAVELENGTH DEPENDENCE (400 NM IN BLUE, 800 NM IN ORANGE, 1800 NM IN RED) OF THE MAXIMUM MAGNETIZATION QUENCHING PARAMETER B AND THE ASYMPTOTIC DEMAGNETIZATION PARAMETER C (C.F. EQ 7-1)	96
FIGURE 7-4	OPTICAL ABSORPTION DATA FOR AL[202], PT[203] AND CO[204] REVEAL A STRONG DEPENDENCE WITH REGARDS TO THE LASER WAVELENGTH.	99
FIGURE 8-1	ILLUSTRATION DE L'EFFET DE LA SPM SUR L'ÉLARGISSEMENT SPECTRAL.	105
FIGURE 8-2	SPECTRES HARMONIQUE DANS L'ARGON POUR DIFFÉRENTES DURÉES D'IMPULSIONS DE 1.6 MJ.	112
FIGURE 8-3	SPECTRES HARMONIQUE DANS LE NÉON POUR DIFFÉRENTES DURÉES D'IMPULSIONS DE 3.0MJ.	112
FIGURE 8-4	SPECTRES HARMONIQUE DANS L'HÉLIUM POUR DIFFÉRENTES DURÉES D'IMPULSIONS DE 3.3MJ.....	113
FIGURE 9-1	ILLUSTRATION OF THE EXPERIMENTAL SETUP FOR THE GENERATION OF HIGH INTENSITY FEW-CYCLE NIR PULSES.	118
FIGURE 9-2	COMPRESSED OUTPUT ENERGY AS A FUNCTION OF THE FIBER INPUT ENERGY FOR AN EVACUATED (BLUE CIRCLES) AND ARGON-FILLED (RED SQUARES) HOLLOW-CORE FIBER.	120
FIGURE 9-3	CHARACTERIZATION OF THE FIBER INPUT AND OUTPUT PULSES.	121

LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1-1	CHRONOLOGIE DU TRAVAIL DE THÈSE.....	27
TABLEAU 2-1	CONCEPTS IMPORTANTS POUR LA HHG COMME LIGNE DE RAYONNEMENT X [18]–[21], [51].....	31
TABLEAU 2-2	INTENSITÉ DE SATURATION CALCULÉE AVEC LE MODÈLE D’IONISATION NONADIABATIQUE DE YUDIN-IVANOV [55].....	35
TABLEAU 2-3	INTENSITÉ ET ÉNERGIE DE COUPURE (± 5 eV) POUR LA HHG AVEC DIFFÉRENTES LONGUEURS D’ONDE FONDAMENTALES ET DURÉE D’IMPULSION.	36
TABLEAU 3-1	SOURCES INTERNATIONALES DE RAYONNEMENT HHG DANS LA FENÊTRE DE L’EAU	42
TABLEAU 5-1	DESCRIPTION DES SONDÉS X DE L’AIMANTATION	70
TABLEAU 8-1	EFFET OBSERVÉ DES IMPULSIONS COURTES SUR LA HHG DANS L’ARGON, LE NÉON ET L’HÉLIUM.	109
TABLEAU 9-1	WAVELENGTH DEPENDENCIES OF CRITICAL PARAMETERS FOR THE ENERGY SCALING OF HCF POST-COMPRESSION SYSTEMS.	117

LISTE DES ÉQUATIONS

$E_{max} = I_p + 3.17U_p$	(2-1).....	30
$U_p = \frac{e^2}{8\pi^2\epsilon_0 m_e c^3} I \lambda^2$	(2-2).....	30
$\Delta k = k_q - qk_1 = 0$	(2-3).....	34
$\Delta k = \Delta ka + \Delta kfe + \Delta kfoc + \Delta ktraj = 0$	(2-4).....	34
$\Delta k = q \frac{\omega}{2\epsilon_0 c} N [\alpha_{poi}(q\omega) - \alpha_{poi}(\omega)] - q \frac{e^2}{2\epsilon_0 cm\omega} N_{fe} - \frac{q}{z_0} + sign(z) \alpha_q^{traj} \frac{\partial I}{\partial z} = 0$	(2-5).....	34
$E_q(r, t) = A_q(r, t) e^{iq\omega t + i\alpha_q^{traj} J(r, t)}$	(2-6).....	34
$C_e \frac{d}{dt} T_e = -G_{el}(T_e - T_l) - G_{es}(T_e - T_s) + P(t)$	(5-1).....	68
$C_l \frac{d}{dt} T_l = -G_{el}(T_l - T_e) - G_{sl}(T_l - T_s)$	(5-2).....	68
$C_s \frac{d}{dt} T_s = -G_{es}(T_s - T_e) - G_{sl}(T_s - T_l)$	(5-3).....	68
$\frac{d}{dt} m = Rm \frac{T_l}{T_c} \left[1 - m \coth\left(\frac{mT_c}{T_e}\right) \right]$	(5-4).....	68
$f_N = (\vec{e}'_f \cdot \vec{e}_0) f_N^c + i(\vec{e}'_f \times \vec{e}_0) \cdot \vec{m} f_N^{m1} + (\vec{e}'_f \cdot \vec{m})(\vec{e}_0 \cdot \vec{m}) f_N^{m2}$	(5-5).....	71
$I(q) = \Sigma_N f_N \exp iqr_N ^2$	(5-6).....	72
$\frac{M(t)}{M_0} = G(t) \otimes \left[1 - H(t) \left[B \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_1}\right) \right) \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) + C \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) \right) \right] \right] \propto \sqrt{I_{diff}}$	(5-7).....	79
$\frac{dJ}{dt} + \tau^{-1} J = \frac{Ne^2}{m_e^*} E = \sigma E$	(6-1).....	84
$\frac{dU}{dt} = C_e \frac{dT}{dt} = J \cdot E$	(6-2).....	84
$\Delta T_e = j \frac{\sigma_0 E_0^2}{4\omega_0 C_e (1 + j\omega_0 \tau)}$	(6-3).....	85
$\Delta T_e = \frac{\sigma_0 E_0^2}{4\omega_0^2 C_e \tau} = \frac{N}{C_e} \frac{e^2 E_0^2}{4m_e^* \omega_0^2} = \frac{N}{C_e} U_p$	(6-4).....	85
$\frac{M(t)}{M_0} = G(t) \otimes \left[1 - H(t) \left[B \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_1}\right) \right) \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) + C \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) \right) \right] \right]$	(7-1).....	94
$\Delta T_{e,max} = \sqrt{T_{e,0}^2 + \frac{2}{\gamma} W} - T_{e,0} \cong \frac{W}{C_e(T_{e,0})}$	(7-2).....	98
$\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle = \frac{1}{2} \left(\frac{\sigma}{1 + \omega^2 \tau^2} \right) E_0^2 \cong \frac{2N}{\tau} U_p \propto \lambda^2$	(7-3).....	98
$\omega(t) = \omega_0 + \delta\omega(t) = \omega_0 + \frac{d\phi_{NL}(t)}{dt} = \omega_0 \left(1 - \frac{n_2 L}{c} \frac{dI(t)}{dt} \right)$	(8-1).....	104

LISTE DES ABRÉVIATIONS

HHG	Génération d'harmoniques d'ordre élevé
XUV / EUV	Ultraviolet extrême
XRMS	Diffraction magnétique X résonante
ALLS	Laboratoire de sources femtosecondes
FEL	Laser à électrons libres
INRS	Institut national de la recherche scientifique
CPA	Amplification par dérive de fréquence
CEP	Phase de l'enveloppe de l'onde porteuse
BBO	Crystal de <i>bêta baryum borate</i>
MOKE	Effet Kerr magnéto-optique
CCD	Dispositif de charges couplés (caméra)
CMOS	Semiconducteur métal-oxide complémentaire (caméra)
MCP	Galette de micro-canaux (caméra)
XMCD	Dichroïsme magnétique circulaire X
MFM	Microscopie de force magnétique
AFM	Microscopie de force atomique
THz	Téraherz
SPM	Automodulation de phase
HCF	Fibre à cœur creux ou fibre creuse

1 INTRODUCTION

Quotidiennement, des dizaines de milliers d'ingénieurs, chimistes et physiciens observent et façonnent l'infiniment petit, le monde nanoscopique. Les citoyens des pays industrialisés traînent dans leurs poches un dispositif dont les composantes internes ne peuvent fonctionner que grâce au confinement quantique. Au 21^e siècle, des dispositifs quantiques éclairent littéralement nos maisons et s'achètent pour quelques dollars à la quincaillerie du coin. L'infiniment petit n'est plus hors de portée.

Un outil important pour ce développement fulgurant a été la maturation des technologies en émission et en détection des rayons X et de l'ultraviolet extrême (XUV)[1], [2]. Pour observer un objet dont la dimension est de l'ordre du nanomètre, il faut utiliser un outil de taille comparable. Les rayons X ont une longueur d'onde couvrant la gamme de 0,01 à 10 nm. Les XUV étendent cette gamme jusqu'à 124 nm.² La limite de diffraction d'une onde électromagnétique étant de l'ordre de sa longueur d'onde, la diffraction de rayons X est devenue une des techniques principales pour l'imagerie de nanostructures [1].

Outre sa capacité à observer (diffraction) et écrire (lithographie [2]) l'infiniment petit, une autre force de ce rayonnement est son utilisation en spectroscopie. La grande énergie des photons X donne accès aux seuils d'absorption de presque tous les niveaux électroniques des éléments du tableau périodique (jusqu'au seuil K de l'uranium à 0,01 nm)[3]. Avec le bon faisceau, n'importe quelle transition électronique devient spécifiquement accessible pour étude, rendant ce rayonnement très utile pour étudier les molécules et les matériaux.

Pour tous ces progrès, les théoriciens ont conservé un monopole quasi absolu sur un pan complet du domaine quantique. Les techniques X actuelles permettent de sonder les états électroniques à l'équilibre seulement. Elles permettent d'obtenir des « photos » des états initiaux et finaux, par exemple, d'une réaction chimique, ou d'un changement de phase cristalline. Pour comprendre les mécanismes dynamiques, nous devons nous rabattre sur des modèles théoriques très complexes, généralement peu intuitifs. Or, une observation directe de phénomènes transitoires apporte toujours cet élément d'intuition manquant et oriente conséquemment l'optimisation ou le développement des applications technologiques associées. Voici la

² Dans le reste du travail, nous qualifierons tout rayonnement provenant de la source HHG comme faisant partie de la gamme des rayons X. Ce traitement sera tantôt factuel, tantôt erroné. Par exemple, notre travail au seuil M des métaux de transition, 60 eV, correspond à des photons XUV. Notre travail au seuil N des terres rares, 155 eV, correspond à des photons X. Pour éviter la confusion, nous les qualifierons tous de photons X. Nous demandons au lecteur de garder cette nuance en tête.

réponse du récipiendaire du prix Discovery 2017 de l'université Stony Brook, à la question d'un journaliste sur l'utilité de son travail :

« Right, so maybe someone wants a better toaster or something? If you want a better toaster, you need the instrumentation to look at how a toaster works. If you want better devices, then you need to be able to see the processes that govern the efficiency of those devices. »

- Thomas Allison[4]

Dans le contexte d'un laboratoire, les rayons X excellent dans la caractérisation de phénomènes électroniques, moléculaires ou cristallins [1]. Ces phénomènes ont typiquement une durée de l'ordre de la dizaine à quelques centaines de femtosecondes. Pour pouvoir appliquer la puissance du rayonnement X à l'observation directe de phénomènes ultra-rapides, il faut une source de rayons X émettant des impulsions de durée comparable³. Ces sources existent déjà. Les synchrotrons et les lasers à électrons libres (FELs) sont des installations massives, souvent conçues au sein de collaborations internationales[5], [6].

Notre objectif est d'ajouter une légitime troisième option, plus modeste, à cet illustre duo. Dans cette thèse, nous décrivons notre travail pour optimiser le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG) afin de convertir un procédé optique peu efficace en véritable ligne de rayonnement X. Ces lignes novatrices seraient parfaites pour remplir les créneaux scientifiques laissés vacants par les carences des sources X ultra-rapides traditionnelles.

1.1 Femtoslicing, FEL & HHG — complémentarité des sources

1.1.1 Synchrotron

Les synchrotrons sont de gigantesques machines, très complexes et incroyablement dispendieuses. Le synchrotron canadien, CLS, très modeste parmi ses semblables, a coûté 230 M\$ pour ses phases I et II. Il coûte 2,5 millions de dollars par année en services publics seulement : électricité, eau et vapeur ; consommant de 3,2 à 3,5 MW d'électricité lorsque l'anneau de stockage est en fonction. L'anneau de stockage peut être opérationnel jusqu'à 42 semaines par année [7].

Les synchrotrons opèrent naturellement en mode pulsé. Chaque impulsion de photons a une durée de l'ordre de 100 ps [8]. Une technique relativement récente permet de réduire cette durée à ≈ 100 fs, au sacrifice

³ Pour observer les détails d'un phénomène de durée t , il faut l'observer avec un temps d'obturation au moins plus rapide que t . L'exemple classique est la série de clichés montrant le cheval de Muybridge au galop. Des exemples plus modernes incluent l'observation du vol d'un colibri, la propagation d'une fissure dans le verre trempé, une balle de pistolet frappant une pomme ou un melon d'eau, etc.

de 99,999 999 9 % (10^{-9}) du flux de photons X. En femtoslicing [9]–[11], un laser femtoseconde est co-propagé avec le paquet d'électrons dans un onduleur, appelé le modulateur. Le champ optique du laser module l'énergie d'une partie du paquet d'électrons. Les électrons affectés auront une dispersion différente lors de leur déflexion par un aimant. L'impulsion lumière femtoseconde émise subséquentement par ces électrons pourra donc être spatialement séparée de son équivalent picoseconde.

Bien que la source ne soit pas intrinsèquement cohérente spatialement et temporellement, l'utilisation d'un sténopé et d'un monochromateur permet d'atteindre des longueurs de cohérence plus que suffisantes pour les applications de diffraction X mentionnées ci-haut [8].

1.1.2 FELs

Les FELs sont des machines tout aussi imposantes, complexes, et donc tout aussi dispendieuses. Ce sont essentiellement des synchrotrons « dépliés ». Au lieu de mesurer plusieurs centaines de mètres de circonférence, l'accélération des électrons est faite en ligne droite sur plusieurs centaines de mètres. Ceci permet aux FELs d'utiliser des onduleurs beaucoup plus longs qu'en synchrotron, augmentant significativement le flux de rayons X soutiré du paquet d'électrons [12].

Dans un long onduleur, un paquet électronique incohérent sera affecté par le même rayonnement X qu'il produit. Cette interaction regroupera le paquet d'électrons en tranches très fines, alignées sur les crêtes et creux du champ électromagnétique produit. Le rayonnement émis subséquentement par ces tranches fines sera en phase avec celui existant. Cette amplification cohérente du rayonnement X mène à des brillances jusqu'à 10 ordres de grandeur plus élevés qu'en synchrotron et à des impulsions naturellement courtes [12]. Par contre, le bruit de phase généré par cette période initiale d'émission incohérente confère au faisceau une mauvaise cohérence longitudinale (temporelle). Une technique d'ensemencement permet d'augmenter le niveau de cohérence temporelle et le gain des FELs [13].

Un problème technique majeur des FELs vient de la difficulté à synchroniser un laser externe au rayonnement provenant du faisceau d'électrons. Typiquement, la gigue temporelle entre les deux sources de radiation est de l'ordre de 100 fs. Dans les nouvelles générations de FELs, ce problème est réglé grâce à des techniques de chronométrage absolu disponibles pour chaque tir d'électrons [14]–[17].

1.1.3 HHG

La génération d'harmoniques d'ordre élevé est une méthode très différente des deux sources de rayonnement ci-haut. Il s'agit d'un processus optique nonlinéaire qui permet d'augmenter l'énergie des photons d'un faisceau laser. La fréquence optique du faisceau obtenue sera une harmonique, impaire, de la fréquence du faisceau incident. La conversion peut être extrême. Nous montrerons un cas où l'harmonique

défecté est la 795^e harmonique du faisceau initial. Comparés aux deux sources précédentes, les défis techniques sont simples et les coûts de construction et d'opération sont à peine dignes de mention. Les références suivantes constituent des articles de synthèse sur le sujet [18]–[21].

La HHG est un outil spectroscopique très puissant puisque l'amplitude du spectre harmonique est proportionnelle à la section efficace de photo-ionisation du milieu de génération [22]–[24]. Pour ne nommer que deux observations faites dans ALLS, le minimum de Cooper du krypton (85 eV) et une résonance géante dans le xénon (95 eV) ont été observés en utilisant un faisceau fondamental de 1,8 μm , 11 fs [24], [25].

Comme source de rayonnement X, la force de la HHG réside plutôt dans les caractéristiques temporelles des impulsions de rayons X obtenues.

1. Le processus est parfaitement cohérent, et l'impulsion X générée sera plus courte que l'impulsion de génération.
2. Grâce à la grande largeur de bande du spectre de rayons X obtenu, cette technique peut même mener à la génération d'impulsions isolées attosecondes.
3. Étant dérivée de la même source, la synchronisation des impulsions de rayons X avec les impulsions laser fondamentales est intrinsèquement libre de toute gigue temporelle.

Évidemment, le flux obtenu est à peine comparable au rayonnement synchrotron ou FEL[26]⁴. L'énergie de photon maximale pouvant être atteinte est aussi basse en comparaison.

Ainsi, les sources HHG s'inscrivent en parfaite complémentarité aux grandes infrastructures. Les synchrotrons et FELs sont immenses, dispendieux et la grande demande pour l'offre faible rend difficile leur accès. En comparaison, les sources HHG requièrent seulement un laser femtoseconde et une chambre à vide. Moyennant un financement très raisonnable, elles pourraient être introduites dans pratiquement n'importe quel laboratoire d'optique haute intensité sur la planète. Les synchrotrons et FELs montrent une brillance énorme, mais un niveau de cohérence et des caractéristiques temporelles plutôt ordinaires. Les sources HHG atteignent des énergies de photons et des brillances beaucoup plus modestes, mais leurs propriétés temporelles sont sublimes. La figure 1-1, tirée de *Young et al. J. Phys. B 2018* [26], illustre parfaitement ce point.

⁴ Il est comparable sinon plus élevé que les lignes de synchrotrons avec femtoslicing.

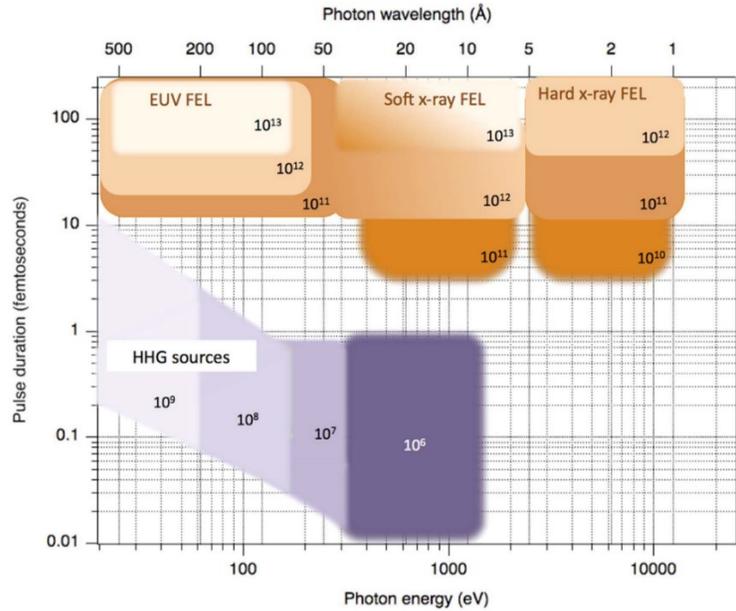


Figure 1-1 Zones d'émission et complémentarité des sources XUV et rayons X ultracourts dans l'espace des paramètres de la durée des impulsions (fs) en fonction de l'énergie de photon accessible (eV).

L'ordre de grandeur dans chaque section correspond à l'intensité de ces sources mesurée en nombre de photons par impulsions pour 1 % de largeur de bande du spectre. L'image est tirée telle quelle de *Young et al. J. Phys. B 2018*[27].

1.2 Objectifs & réalisations

Les sources HHG n'atteindront jamais les brillances ni les énergies de photon disponibles en FEL. Les créneaux d'utilisation de chaque type de sources ont été bien définis. Ceci étant dit, l'utilisation de la HHG comme ligne de lumière est une technique encore jeune et nous sommes convaincus qu'il est encore possible d'en augmenter significativement le flux disponible à des énergies de photons encore plus élevées. L'objectif sera de démontrer que l'optimisation de la technique HHG peut mener à son utilisation comme ligne de lumière pour l'étude de phénomènes ultra-rapides dans la matière condensée.

À cette fin, nous avons entrepris d'étudier la dynamique de désaimantation ultra-rapide dans les matériaux condensés au seuil d'absorption N des terres rares (≈ 150 eV), par diffraction magnétique X résonante (XRMS). Cette technique est très vorace en photons X, mais en contrepartie, elle fournit beaucoup plus d'informations sur le matériau étudié que d'autres méthodes d'analyse magnéto-optiques [28]–[33]. Outre sa propre valeur scientifique, le succès d'une telle expérience exigeante aurait aussi démontré la valeur des sources HHG comme ligne de lumière X.

Ultimement, nous n'y sommes pas arrivés au laboratoire ALLS. Nous avons dû nous rabattre au seuil M des métaux de transition qui, autour de 60eV, est une énergie plus facilement accessible en HHG. La raison de l'échec est incertaine et l'objectif initial n'a toujours pas été abandonné. En revanche, le développement

laser qui a découlé des efforts fournis par l'équipe pour l'optimisation du flux d'harmoniques à 150eV a permis l'atteinte d'objectifs secondaires tout aussi significatifs. Ces objectifs secondaires réussis démontrent bien le potentiel de la HHG comme source de rayonnement X. La XRMS au seuil N du terbium a finalement été atteinte dans les laboratoires d'un collaborateur à l'université technique de Vienne (TU Wien) en utilisant aussi une source HHG.

Au Canada, la désaimantation ultra-rapide au seuil M du cobalt dans ALLS représente la première instance où une source X, sur table, a permis d'étudier une dynamique électronique ultra-rapide dans les matériaux condensés. Avec l'obtention récente de la subvention FCI ALLS+, il sera aussi possible de retenter la XRMS aux seuils N des terres rares d'ici 2 à 3 ans, au Canada. Avec les nouvelles sources laser qui seront disponibles et l'expérience acquise à Vienne, le succès de ces expériences dans ALLS+ est garanti.

1.3 Chronologie

Pour comprendre la chronologie du travail effectué, quelques concepts de base de la HHG sont nécessaires. Ils seront tous développés plus en détail au chapitre suivant.

1. Augmenter la longueur d'onde du faisceau fondamental augmente quadratiquement l'énergie de photon maximale accessible [34], mais réduit énormément l'efficacité de conversion. [23], [35], [36].
2. Utiliser un médium de génération avec un grand potentiel d'ionisation, I_p , augmente linéairement l'énergie maximale accessible [34], mais réduit l'efficacité de conversion.
3. Réduire la durée des impulsions du faisceau fondamental augmente l'énergie maximale accessible [25], [37] et l'efficacité de conversion.
4. Pour une efficacité de conversion donnée, plus la puissance moyenne du faisceau fondamental est élevé, plus le flux d'harmoniques sera élevé.

Comme l'objectif initial nécessitait d'optimiser le flux d'harmoniques autour de 150 eV, nous avons décidé d'utiliser un faisceau fondamental infrarouge, de 2 à 3 cycles optiques et de générer les harmoniques dans l'argon. Le tableau 1-1 décrit les objectifs primaires et secondaires atteints, en ordre chronologique.

1.4 Division des chapitres

L'échec de l'observation XRMS au seuil N du terbium dans ALLS a marqué une coupure dans le flot du travail dans le laboratoire. En tout état de cause, ce moment a été un nouveau point de départ du travail doctoral, deux ans après son commencement. La chronologie du travail ayant été ainsi chamboulée, les chapitres de cette thèse présenteront l'information dans un ordre logique plutôt que chronologique.

Tableau 1-1 Chronologie du travail de thèse.

Objectif primaire	Méthodologie	Objectifs secondaires et accomplissements
Optimisation du flux d'harmoniques à 155 eV (Seuil N du terbium)	Conversion 800nm => 1800nm par amplification paramétrique optique de haute énergie (HEOPA)	HHG dans la fenêtre de l'eau. + Génération d'impulsions infrarouges énergétiques. - <i>Thire et al. APL 2015 (AS I)</i> + Extension de la fréquence de coupure & démonstration du régime de verrouillage d'intensité. - <i>Cardin et al. J. Phys. B 2018 (Chap. 4)</i>
	Post-compression d'impulsions énergétique dans l'infrarouge par propagation dans une fibre creuse	Amélioration de la technique de post-compression dans les fibres creuses. + Démonstration de la plus haute intensité crête obtenue dans l'infrarouge - <i>Cardin et al. APL 2015 (Chap. 9)</i>
	HHG dans l'argon à 1800 nm avec 3,5 mJ, 15 fs	$\approx 10^4$ photons/impulsion/1 % largeur de bande sur cible au seuil N du terbium. - Impossible d'observer la XRMS
Optimisation du flux d'harmoniques à 60 eV (Seuil M du cobalt)	HHG dans le néon à 800 nm avec 11 mJ, 50fs.	$\approx 10^7$ photons/impulsion/1 % largeur de bande sur cible au seuil M du cobalt. + Observation de la XRMS au seuil M du cobalt + Imagerie par diffraction - <i>Truong et al. Sci. Report 2018 (AS II)</i>
	Mesures pompe-sonde de la désaimantation à différentes longueurs d'onde de pompe sur une multicouche $[\text{Co}_{0,6}\text{Pt}_{0,8}]_{30}$. Sonder en XRMS.	Démonstration de la dépendance en longueur d'onde de la désaimantation ultra-rapide. + Courbes de désaimantation acquises pour des pompes de 400, 800 et 1800 nm. - <i>Cardin et al. PRB 2020 (Chap. 7)</i>
Optimisation du flux d'harmoniques à 155 eV en utilisant un laser Ytterbium à la TU Wien	Post-compression d'impulsions longues à grande puissance moyenne (sources laser ytterbium).	Compression d'impulsion de 220 fs à 25 fs avec 4 W de puissance moyenne (8 mJ), à Vienne + Compression d'un facteur de 33 en utilisant une seule étape de compression, à l'INRS. - <i>Jeong et al. Sci. Report 2018 (AS III)</i>
	HHG dans le néon à 1030 nm avec 8 mJ, 25fs.	$\approx 10^6$ photons/impulsion/1 % largeur de bande sur cible au seuil N du terbium. + Observation de la XRMS
	Mesure pompe-sonde de la désaimantation au seuil N du terbium sur un alliage CoTb. Sonder en XRMS.	Seconde observation mondiale d'un phénomène magnéto-optique au seuil N des terres rares avec une source sur table. Première observation de ce type donnant aussi des informations structurales sur l'échantillon. - <i>Fan et al. Soumis 2019 (AS IV)</i>

La première colonne décrit les objectifs primaires qui ont guidé le travail de thèse. La troisième colonne décrit les objectifs secondaires qui ont été réalisés et les articles scientifiques qui en sont découlés. La colonne centrale décrit la méthodologie qui a été utilisée pour atteindre ces objectifs secondaires. «AS X» réfère à un article supplémentaire qui ne fera pas l'objet d'un chapitre à part entière. Il s'agit de travaux de collègues ou collaborateurs qui ont requis ma participation active.

Au chapitre 2, nous établirons les bases conceptuelles de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz rares. Nous couvrirons le modèle à trois étapes introduit par *Corkum PRL 1993* [34] et discuterons des considérations d'accord de phase de ce processus hautement nonlinéaire.

Au chapitre 3, nous appliquerons ces concepts à la génération d'harmoniques dans la fenêtre de l'eau. Nous introduirons la source infrarouge de ALLS, décrite dans *Thiré et al. APL 2015* [38], ainsi que le concept de verrouillage d'intensité qui a mené à la publication de *Cardin et al. J. Phys. B. 2018* [39].

Au chapitre 4, nous présentons *Cardin et al. J. Phys. B. 2018* [39].

Au chapitre 5, nous présenterons les caractéristiques de la source HHG optimisée au seuil M du cobalt, 60 eV. Les résultats de XRMS à ce seuil seront aussi montrés. Le travail d'un collaborateur en imagerie par diffraction cohérente, *Truong et al. Sci. Report 2018* [40], sera aussi introduit.

Au chapitre 6, nous introduirons la publication *Cardin et al. PRB 2020*, qui présente nos résultats sur la dépendance en longueur d'onde de la désaimantation ultra-rapide d'une multicouche de [CoPt]₃₀.

Au chapitre 7, nous présentons *Cardin et al. PRB 2020*.

Au chapitre 8, nous introduirons les concepts importants derrière la technique de post-compression d'impulsion par fibre creuse. Nous introduirons *Cardin et al. APL 2015* [41]. L'effet de l'utilisation d'impulsions courtes sur la HHG sera présenté en utilisant des spectres HHG acquis dans ALLS, mais qui n'ont jamais été publiés.⁵

Au chapitre 9, nous présentons *Cardin et al. APL 2015* [41] qui montre les résultats de la compression d'impulsions infrarouge énergétiques. Nous avons, pour un temps, la plus haute intensité crête mesurée mondialement à 1800 nm.⁶

Au chapitre 10, nous présenterons la compression d'impulsions à haute puissance moyenne provenant d'une source ytterbium, et leur utilisation pour la génération d'harmoniques à haute brillance jusqu'à 200 eV. La brillance obtenue a été suffisante pour finalement observer la XRMS au seuil N du terbium à partir d'une source sur table. Deux articles de collaborateurs présentent ces accomplissements. *Jeong et al. Sci. Report 2018* [42] présentent la compression extrême, un facteur 33, d'une source ytterbium à l'INRS. *Fan et al. Soumis 2019* présentent la désaimantation ultra-rapide au seuil N du terbium à partir d'une source HHG haute brillance bénéficiant de ces impulsions courtes.

⁵ De nouvelles prises de mesures sont nécessaires avant la publication. Les résultats de la HHG dans l'hélium sont mal compris et une confirmation qu'il ne s'agit pas d'une erreur de mesure est nécessaire.

⁶ Le record n'a pas tenu longtemps. *Gruson et al. Opt. Exp. 2017* [117], aussi sous la supervision de François Légaré, ont fracassé notre record moins de deux ans plus tard.

2 HHG DANS LES GAZ RARES

2.1 Modèle à trois étapes

Bien que la première démonstration de génération d'harmoniques d'ordre élevé ait été faite en 1987 à l'Université de l'Illinois à Chicago par le groupe du professeur Charles Rhodes (17^e harmonique d'un laser excimer à 294 nm dans le néon) [43], la vraie date d'anniversaire du domaine de recherche est 1993. Nous avons fêté ses 25 ans l'an dernier [44].

En 1993, les premières observations du rayonnement harmonique provenant d'impulsions hautes intensités ont été publiées. Elles étendaient l'énergie de coupure dans la centaine d'ordres harmoniques du faisceau fondamental (109° et 135°) [45], [46]. Les impulsions fondamentales étaient produites par un système d'amplification novateur, c.-à-d. l'amplification par dérive de fréquence (CPA). Le CPA permet d'amplifier des impulsions ultracourtes à de hautes énergies sans détruire les cristaux d'amplification[47]. La technique a valu le prix Nobel à Gérard Mourou et Donna Strickland en 2018.

La même année, 1993, la publication d'un modèle d'une élégante simplicité a permis de développer une intuition physique du phénomène. Bien que semi-classique, en utilisant principalement la seconde loi de Newton, $\mathbf{F} = m\mathbf{a}$, le modèle permettait de prédire précisément l'énergie maximale de photon pouvant être atteint en HHG en fonction du milieu de génération et des paramètres du faisceau fondamental. C'est un modèle de recollision électronique appelé le modèle à trois étapes. Il a été introduit par le Prof. Paul Corkum de l'Université d'Ottawa dans sa lettre *Corkum PRL 1993* [34]. La figure 2-1 illustre ces trois étapes. Elles sont :

1. Ionisation d'un électron par effet tunnel ($v_0 = 0$ m/s) suite à la déformation du potentiel atomique par le champ électrique laser (requiert un paramètre de Keldysh $\gamma \leq 1$ [48])
2. Accélération de l'électron dans le continuum sous l'effet du champ électrique laser.
3. Retour de l'électron vers l'ion parent suite à l'inversion du champ électrique laser. Recollision possible de l'électron avec l'ion parent.

Suite à la recollision avec l'ion parent, l'électron peut :

1. Diffuser élastiquement, i.e. ionisation simple.
2. Provoquer l'éjection d'un second photoélectron, menant à la création d'un atome doublement ionisé.
3. Recombiner avec l'ion en libérant l'énergie cinétique acquise sous forme d'un photon énergétique.

C'est cette troisième option qui mène à la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

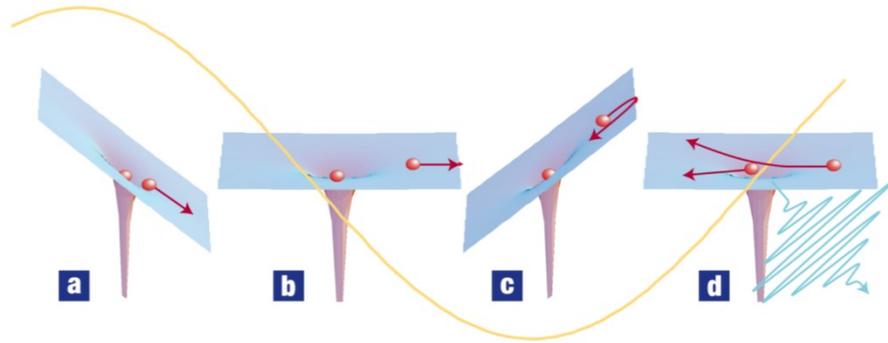


Figure 2-1 Schématisation du modèle à trois étapes

(a) Ionisation tunnel due à la déformation du potentiel atomique par le champ laser. (b & c) Accélération dans le continuum suivant le champ laser. (d) Recollision avec l'ion parent menant à la libération de l'énergie cinétique sous la forme d'un photon VUV, XUV ou X. Tirée de *Corkum & Krausz Nature 2007* [49].

Selon la phase du champ laser lors de l'ionisation tunnel l'électron peut gagner une énergie cinétique allant jusqu'à :

$$E_{max} = IP + 3.17U_p \quad (2-1)$$

avec

$$U_p = \frac{e^2}{8\pi^2\epsilon_0 m_e c^3} I \lambda^2 \quad (2-2)$$

où IP est le potentiel d'ionisation du milieu de génération, et U_p est le potentiel pondérateur, c.-à-d. l'énergie cinétique minimale d'un électron libre soumis à un champ laser oscillant[50]. I est l'intensité du champ laser et λ en est la longueur d'onde. Les concepts importants pour l'utilisation de ce phénomène comme source de rayonnement X sont énoncés au tableau 2-1.

Tableau 2-1 Concepts importants pour la HHG comme ligne de rayonnement X [18]–[21], [51]

Concept	Corollaire	Fig
La trajectoire d'un électron accéléré dans le continuum par un champ polarisé elliptiquement ne recroisera pas l'ion parent.	La section efficace de collision décroît rapidement avec l'ellipticité du champ générateur. La polarisation du laser doit être parfaitement linéaire [52]. ⁷	-
Le champ doit être assez intense pour permettre l'ionisation tunnel, c.-à-d. déformer suffisamment le potentiel atomique.	Une impulsion de rayons X sera émise suite à l'ionisation près d'une crête du champ laser, là où il est le plus intense. Deux impulsions seront émises par cycle optique.	-
Les impulsions X émises dans les crêtes séparées par une demi-période optique interfèrent entre elles.	Seulement les harmoniques du faisceau fondamental peuvent interférer suite à plusieurs événements de recollision.	figure 2-2
	Les harmoniques paires interfèrent destructivement. Les harmoniques impaires interfèrent constructivement et permettent l'obtention d'un champ harmonique important.	
Chaque phase d'ionisation de l'électron dans le champ laser est associée à une phase unique de recollision et une énergie de photon émis également unique.	L'énergie maximale est atteinte pour une phase d'émission de 17° (ou 197°).	figure 2-3
Les électrons ionisés avant ou après ces phases maximales vont suivre des trajectoires différentes. Les impulsions X émises lors de leur recollision auront des propriétés spatiales très différentes.	Les électrons ionisés avant 17° suivront des trajectoires longues. La dispersion du paquet d'électrons durant ce long parcours confère au faisceau harmonique une grande divergence et une mauvaise cohérence temporelle et spatiale. La dispersion spectrale de second ordre de l'impulsion X est significative.[53]	figure 2-3
	Les électrons ionisés après 17° suivront des trajectoires courtes. Le faisceau harmonique sera faiblement divergent et conserve une bonne cohérence temporelle et spatiale.	figure 2-4

Le concept est énoncé dans la colonne de gauche. Son corollaire est écrit dans la colonne centrale. Les figures identifiées dans la dernière colonne en font l'illustration.

⁷ Le corollaire n'est certainement pas absolu. Une ionisation tunnel avec $v_0 \neq 0$ m/s combiné avec la bonne polarisation ou la génération à partir d'une molécule massive pourrait permettre la recollision suite à l'accélération par un champ elliptique. Certaines méthodes de genèse de champs laser suite à la combinaison de deux champs laser polarisés circulairement permettent aussi la recollision de l'électron [269]–[271], malgré la complexité du champ électrique généré. En revanche, dans le contexte de la HHG en tant que ligne de rayonnement X à haute brillance, le corollaire tient.

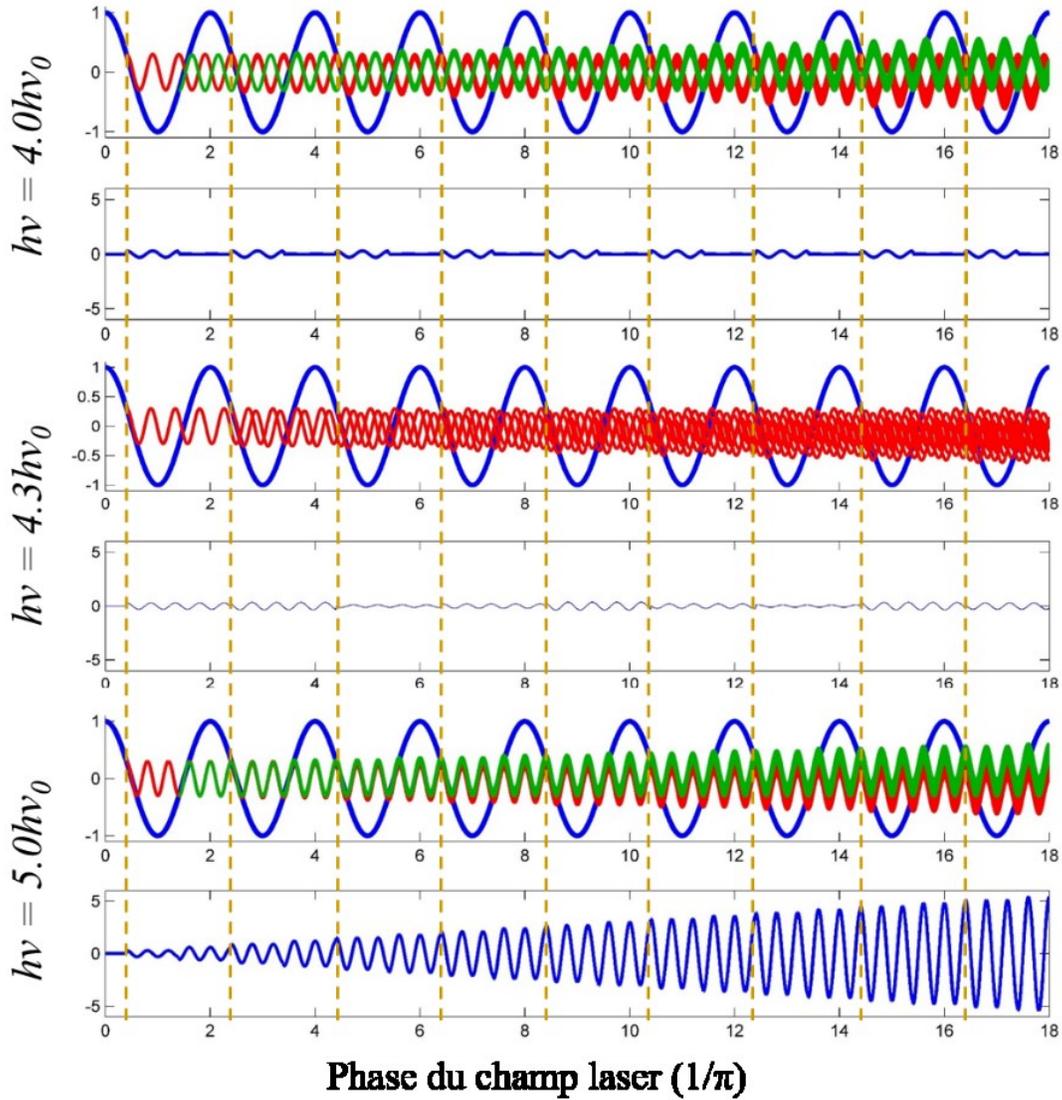


Figure 2-2 Illustration de la construction cohérente du signal harmonique pour les harmoniques impaires

Illustration des interférences destructives pour (a) les harmoniques paires et (b) pour les fréquences qui ne sont pas des harmoniques du champ fondamental. (c) Illustration de la construction cohérente du signal harmonique par interférence constructive des harmoniques impaires du champ fondamental. Les unités d'amplitude sont arbitraires. Les ondes rouges sont émises à chaque période à la même phase. Les ondes vertes ont la même amplitude et fréquence que les ondes rouges, mais sont émises à une demi-période de plus que les ondes rouges. Les oscillations rapides bleues représentent la somme des ondes rouges et vertes du cadre supérieur.

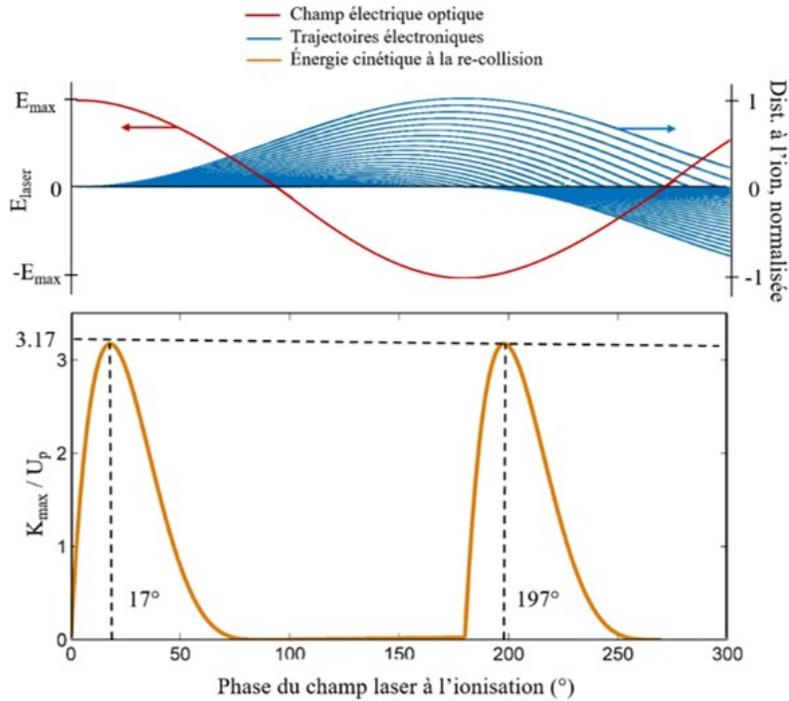


Figure 2-3 Trajectoires harmoniques et énergie d'émission à la recombinaison

(a) Trajectoire électronique, en bleu, en fonction de la phase du champ laser (en rouge) à l'ionisation. (b) Énergie cinétique acquise, en unité de U_p , à la recollision en fonction de la phase du champ laser à l'ionisation

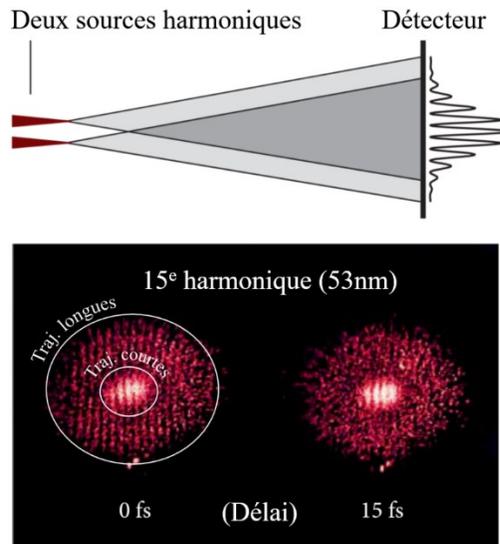


Figure 2-4 Interférences entre deux sources harmoniques identiques, séparées d'un délai de 0 et 15 fs.

La cohérence temporelle est perdue après 15 fs pour les trajectoires longues, mais conservée pour les trajectoires courtes. Tirée de Shultz & Vrakking, *Attosecond & XUV Physic*, Wiley-VCH 2014, Chapitre 10 par Anne L'Huillier [51]. Données tirées de Bellini et al. *PRL* 1998 [53].

2.2 Considérations d'accord de phase

Comme tout processus non linéaire, la seule façon d'obtenir un taux de conversion intéressant est de combiner de façon cohérente les photons émis par plusieurs centres d'émission. Dans ce cas-ci, chaque atome de gaz rare présent dans le volume focal du faisceau fondamental peut être un émetteur. Pour permettre la combinaison cohérente de l'émission de chaque atome, les photons émis par HHG doivent demeurer en phase avec le faisceau fondamental tout au long de sa progression. En équation, ceci signifie :

$$\Delta k = k_q - qk_1 = 0 \quad (2-3)$$

Δk correspond au déphasage (c.-à-d. différence d'amplitude des vecteurs d'onde) entre le faisceau fondamental et son harmonique. k_q représente l'amplitude du vecteur d'onde de l'harmonique d'ordre q ($q = 1 \Rightarrow$ fondamental). Lorsque le déphasage est nul, $\Delta k = 0$, les harmoniques pourront interférer constructivement et mener à un flux de photons significatif.

La géométrie de focalisation, la dispersion dans le gaz d'atomes neutres et dans le nuage d'électrons libres, et finalement, le gradient de la phase du moment dipolaire entre l'électron ionisé et son ion parent sont les éléments principaux qui influent sur l'accord de phase dans une géométrie de focalisation longue [51], [54]. L'équation (2-3) devient :

$$\Delta k = \Delta k_a + \Delta k_{fe} + \Delta k_{foc} + \Delta k_{traj} = 0 \quad (2-4)$$

$$\Delta k = q \frac{\omega}{2\varepsilon_0 c} N [\alpha_{pol}(q\omega) - \alpha_{pol}(\omega)] - q \frac{e^2}{2\varepsilon_0 cm\omega} N_{fe} - \frac{q}{z_0} + \text{sign}(z) \alpha_q^{traj} \frac{\partial I}{\partial z} = 0 \quad (2-5)$$

$\alpha_{pol}(\omega)$ représente la polarisabilité de l'atome du gaz rare à une fréquence ω . La variable z dénote la position sur l'axe de propagation avec z_0 étant la longueur de Rayleigh du faisceau focalisé. N et N_{fe} sont les densités d'atomes neutres et d'électrons libres, respectivement. Le coefficient α_q^{traj} apparaît dans la description de l'harmonique d'ordre q émis :

$$E_q(r, t) = A_q(r, t) e^{iq\omega t + i\alpha_q^{traj} I(r, t)} \quad (2-6)$$

Ce coefficient dépend essentiellement de l'ordre harmonique et de la trajectoire de l'électron dans le continuum. Il est faible pour les trajectoires courtes, mais important pour les trajectoires longues.

Deux conclusions importantes peuvent être tirées de l'équation (2-5).

1. Une trop grande densité d'électrons libres empêchera l'accord de phase. Typiquement, le taux d'ionisation maximal est de 2 à 5 % [54], selon la nature de l'atome considéré, l'ordre harmonique qui doit être optimisé, la longueur d'onde du champ électromagnétique du faisceau fondamental et la durée temporelle de son enveloppe. Ce taux maximal définit une intensité de saturation pour laquelle l'accord de phase n'est plus possible. Les intensités correspondant à un taux d'ionisation de 43 % sont présentées

au tableau 2-2, tiré de *Shiner et al. J. Mod. Opt. 2013* [37]. La conversion à un taux d'ionisation de 2 % et l'énergie de coupure associée sont présentées au tableau 2-2.

2. Pour un laser fondamental et une géométrie de focalisation donnés, le paramètre le plus important pour le contrôle de l'accord de phase est la pression de gaz rare dans le volume focal de l'impulsion. Ceci permet la construction de « recettes » d'accord de phase telle que montré à la figure 2-5, tirée de *Rudawski et al. Rev. Sci. Instr. 2013* [54].

Tableau 2-2 Intensité de saturation calculée avec le modèle d'ionisation nonadiabatique de Yudin-Ivanov [55].

λ (nm)	Cycles	τ (fs)	$I_{\text{sat}} (10^{14} \text{ W cm}^{-2})$				
			Xe	Kr	Ar	Ne	He
800	2	5	1.60	2.85	4.51	14.4	23.0
800	10	27	1.01	1.81	2.86	9.10	14.5
800	20	53	0.86	1.54	2.44	7.75	12.3
1400	2	9	1.52	2.62	4.06	12.5	19.8
1400	10	47	1.03	1.77	2.72	8.28	13.0
1400	20	93	0.89	1.53	2.35	7.13	11.2
1800	2	12	1.45	2.47	3.81	11.6	18.4
1800	10	60	1.01	1.71	2.62	7.90	12.4
1800	20	120	0.88	1.49	2.27	6.82	10.7

L'intensité de saturation, ici, correspond à un taux d'ionisation de 43 %. Voir référence *Shiner et al. J. Mod. Opt. 2013*[37] pour les détails.

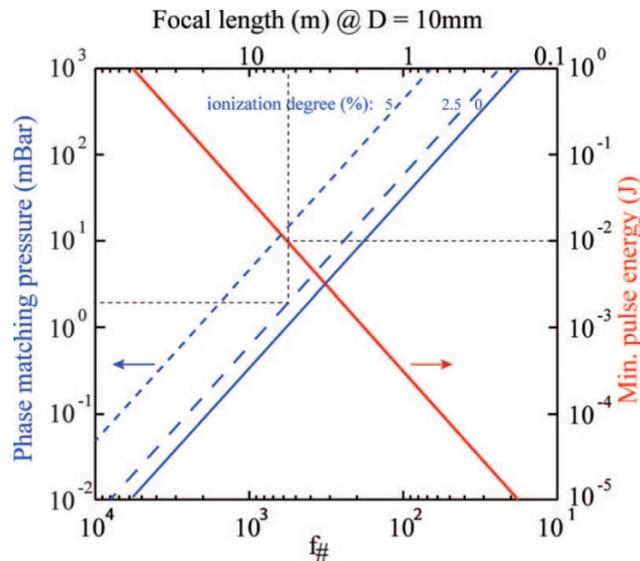


Figure 2-5 Pression (bleue) et énergie minimale d'impulsion (rouge) pour l'accord de phase de l'harmonique 21 d'un faisceau de 800 nm dans l'argon, en fonction de la géométrie de focalisation.

Les pressions pour l'accord de phase à trois degrés d'ionisation sont présentées. Calculé pour un faisceau de 10 mm de diamètre FWHM avant focalisation, une cellule de génération placée au point focal, une intensité de $1,5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et une durée d'impulsion de 45 fs. Figure et description tirées de *Rudawski et al. Rev. Sci. Instr. 2013*[54].

2.3 Énergie de coupure et efficacité de génération

En utilisant les équations dans *Hankin et al. PRA 2001* [56] avec le modèle d'ionisation non adiabatique de *Yudin & Ivanov PRA 2001*[55], nous pouvons convertir les intensités de saturation du tableau 2-2 à un taux d'ionisation total de 2,0 %. Avec l'équation (2-1), nous pouvons utiliser ces valeurs pour définir les énergies de photon maximales pouvant être atteintes pour un gaz et une longueur d'onde fondamentale donnée. Ces énergies sont présentées au tableau 2-3.

Tableau 2-3 Intensité et énergie de coupure (± 5 eV) pour la HHG avec différentes longueurs d'onde fondamentales et durée d'impulsion.

	Argon	Neon	Helium
800 nm – 10 cycles	1.12 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 36 eV	3.5 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 88 eV	6.72 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 152 eV
1030 nm – 10 cycles	1.16 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 52 eV	3.5 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 132 eV	6.68 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 234 eV
1800nm – 10 cycles	1.18 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 129 eV	3.4 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 350 eV	6.28 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 630 eV
1030nm – 7 cycles	1.22 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 54 eV	3.7 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 137 eV	7.05 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 243eV
800nm – 2 cycles	1.49 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 45 eV	4.76 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 112 eV	9.28 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 200 eV
1030 nm – 2 cycles	1.51 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 63 eV	4.60 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 167 eV	8.90 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 304 eV
1800 nm – 2 cycles	1.50 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 160 eV	4.40 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 443 eV	8.40 x 10 ¹⁴ W/cm ² - 830 eV

Les intensités correspondent à une efficacité d'ionisation de 2,0 %, calculé par le modèle d'ionisation non adiabatique de *Yudin & Ivanov PRA 2001* [55]. Les zones colorées représentent des combinaisons qui ont été utilisées dans ALLS pour ce travail de thèse.

Pour utiliser la génération d'harmoniques comme source de rayonnement X, le seuil d'absorption que nous voulons étudier doit être inférieur à l'énergie de coupure pour un couple gaz rare/longueur d'onde donné. Cependant, les facteurs affectant l'énergie de coupure affectent aussi l'efficacité de conversion. Les trois facteurs importants sont :

1. L'efficacité de conversion près de l'énergie de coupure est très faible (voir figure 2-6).
2. Un gaz de génération avec un I_p plus faible aura une efficacité de conversion plus grande, puisque la section efficace de recombinaison est proportionnelle à la section efficace de photo-ionisation [22]–[24].
3. Selon le gaz de génération, l'efficacité de conversion évolue approximativement en $\lambda^{-(6,3 \pm 1,1)}$. Plus longtemps le paquet d'ondes électronique diffuse dans le continuum (plus longue période du champ laser), moins grande sera l'amplitude des interférences quantiques avec le potentiel atomique de l'ion parent [23], [35], [36]. Cette perte significative d'efficacité peut être partiellement compensée en augmentant adéquatement le nombre d'émetteurs dans le volume focal [57]–[59]. Cette solution sera discutée plus en détail dans le chapitre suivant.

Pour l'instant, il suffit de retenir que mieux vaut utiliser une combinaison de paramètres pour une fréquence de coupure significativement supérieure⁸ au seuil d'absorption que l'on veut étudier. Ceci signifie généralement utiliser l'hélium comme milieu de génération et utiliser la longueur d'onde la plus courte possible. Pour une longueur d'onde fixe, il faut alors minimiser l' I_p du milieu générateur.

Les zones colorées du tableau 2-3 correspondent aux zones d'intérêt pour lesquelles nous avons voulu optimiser le flux harmonique. Elles sont :

Argon 160 eV	=> Tentative dans ALLS pour le seuil N du terbium à 155 eV	
Hélium 630 eV	=> Fenêtre de l'eau, seuil K de l'oxygène à 543 eV	Chapitre 3
Néon 88 eV	=> Seuil M du cobalt à 60 eV	Chapitre 5
Hélium 243 eV	=> Seuil N du terbium à 155 eV, à Vienne	Chapitre 10

Une autre avenue pour augmenter l'efficacité de génération et étendre la fréquence de coupure est d'utiliser des impulsions courtes. Le tableau 2-2 montre que des impulsions plus courtes augmentent l'intensité de saturation. Premièrement, dans la réponse d'un atome unique, une impulsion plus courte pour la même énergie correspond à une intensité crête plus élevée, et donc une énergie pondéromotrice plus élevée. Deuxièmement, pour les considérations d'accord de phase, la formation de la population d'électrons libres prenant un certain temps, la crête de l'impulsion peut interagir plus efficacement avec le milieu de génération si l'impulsion est courte [25].

Nous montrons au chapitre 6 que des impulsions courtes aident également à augmenter l'efficacité de génération globale des harmoniques.

Pour récapituler les instructions pour l'optimisation du flux HHG pour une énergie de photon donnée :

1. Optimiser le couple longueur d'onde et I_p du gaz qui nous permet d'atteindre l'énergie voulue, i.e. plus petite longueur d'onde dans l'hélium ou plus bas I_p possible pour un λ fixe.
2. Pour une énergie et une durée d'impulsion données, déterminer la géométrie de focalisation nécessaire pour maintenir le taux d'ionisation autour de 2 %.
3. Pour une géométrie de focalisation donnée, trouver la pression de gaz appropriée pour optimiser l'accord de phase selon la « recette » définit dans la section précédente.
4. L'utilisation d'impulsions courtes améliore l'efficacité de génération et étend la fréquence de coupure accessible.

⁸ Par expérience, une règle de pouce adéquate serait de viser une énergie de coupure au moins 10 % supérieure à l'énergie du seuil d'absorption considéré.

2.4 Durée des impulsions de rayons X

Les intensités nécessaires pour la génération d'harmoniques sont élevées. Non seulement la technique requière des impulsions femtosecondes, mais les harmoniques seront émis principalement en flashes rapides, concentrés près des crêtes du champ électrique du laser fondamental. Ainsi, par cycle optique, deux impulsions harmoniques seront émises. Chacune de ces impulsions aura une durée dans les attosecondes. L'émission successive par plusieurs cycles optiques conduit donc à l'émission d'un train d'impulsions attosecondes dont la durée totale (de la première à la dernière impulsion) sera légèrement plus courte que la durée du faisceau fondamental.

Cette représentation dans le domaine temporelle se traduit très bien dans le domaine spectral. Un train d'impulsions attosecondes est représenté dans le domaine spectral par un spectre large-bande pouvant supporter une durée attoseconde, séparée en dents de peigne. C'est exactement ce qui est montré à la figure 2-6. La figure présente un spectre d'harmoniques d'un faisceau de 800 nm dans le néon. La largeur entre chaque dent correspond au double de l'énergie d'un photon fondamental, c.-à-d. l'équivalent temporel de deux émissions par cycle optique.

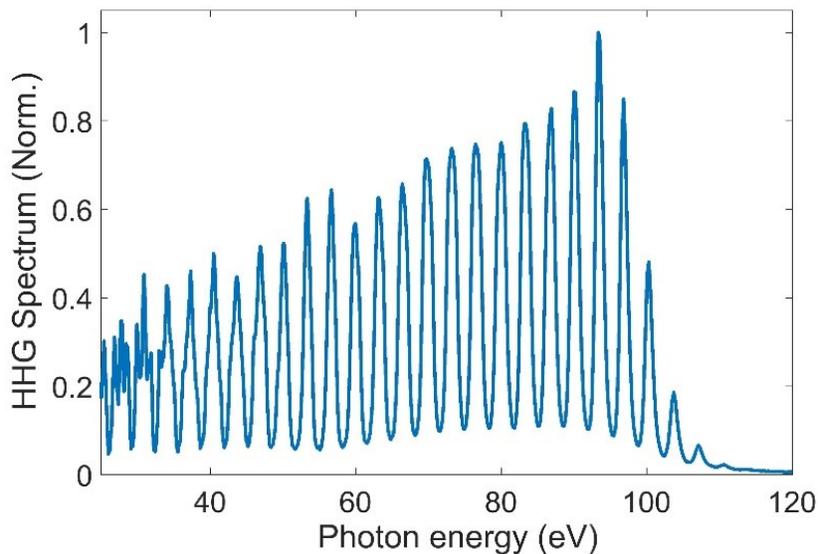


Figure 2-6 Spectre d'harmoniques normalisé à 800 nm dans le néon, pour une impulsion de 40 fs.

La différence entre la fréquence de coupure montrée ici et la valeur calculée au tableau 2.1 vient de l'évaluation du taux d'ionisation correspondant à la limite pour l'accord de phase. Le tableau 2-2 contient les valeurs pour 2,0 % d'ionisation alors que la valeur réelle peut être plus élevée.

Il existe des techniques pour ne permettre l'émission d'harmoniques que durant un demi-cycle optique seulement [20], [60]–[63]. Elles nécessitent généralement la stabilisation de la phase absolue de l'onde porteuse du laser sous son enveloppe d'amplitude, c.-à-d. la CEP. Ces techniques mènent à la création d'une impulsion attoseconde isolée. Le spectre harmonique sera alors complètement continu. Des techniques interférentielles ou de spectroscopie de photoélectrons permettent de caractériser temporellement une telle impulsion. Les techniques les plus fréquemment utilisées sont le RABBITT [64]–[68], une technique interférentielle, et le « streaking » attoseconde [60], [69], [70], une technique de spectroscopie de photoélectrons. Le record de mesure actuel est de 43 as [71].

Dans cette thèse, la résolution temporelle apportée par la durée totale d'un train d'impulsions attosecondes sera plus que suffisante. Aucun effort n'a été déployé pour stabiliser la CEP du laser, générer ou mesurer des impulsions attosecondes isolées. Par contre, nous verrons plus loin que l'utilisation d'impulsions plus courtes augmente la largeur spectrale de chaque pic harmonique, surtout dans les hautes énergies où seulement le demi-cycle optique central, seul assez intense, participe à la génération des photons près de l'énergie de coupure.

3 HHG DANS LA FENÊTRE DE L'EAU

3.1 Définition de la fenêtre de l'eau

La fenêtre de l'eau est une région du spectre électromagnétique dans laquelle la molécule d'eau absorbe significativement moins de photons que dans les régions avoisinantes. Elle est délimitée par le seuil d'absorption K du carbone à 284 eV et le seuil K de l'oxygène à 543 eV[3]. Par exemple, à 540 eV, juste avant le seuil de l'oxygène, 10 µm d'eau transmettent environ 30 % des photons incidents. À 544 eV, juste au-delà du seuil de l'oxygène, la transmission pour la même épaisseur d'eau chute à $6,5 \times 10^{-7}$ %.

Cette transparence, combinée aux seuils d'absorption qu'elle couvre (carbone, azote, oxygène et autres), rend cette fenêtre très intéressante pour l'imagerie et la spectroscopie de molécules biologiques in situ. La plupart de ces molécules se retrouvent naturellement dans un milieu aqueux.

Finalement, combinée à la courte durée d'impulsion intrinsèque à la HHG, la dynamique de ces molécules pourrait être observée en temps réel. Plusieurs groupes de recherche tentent de pousser la HHG vers de plus hautes efficacités de conversion dans la fenêtre de l'eau afin d'étudier la dynamique moléculaire en utilisant les seuils d'absorption dans cette région spectrale.

3.2 Autres sources dans le monde

Le tableau 2-3 du chapitre précédent nous dit comment générer des énergies qui « ferment » la fenêtre de l'eau, c.-à-d. énergie de coupure supérieure à 543 eV. Il faut utiliser des longueurs d'onde dans l'infrarouge et utiliser l'hélium comme gaz de génération. Or, nous avons vu que ces deux facteurs sont nuisibles pour l'obtention d'une efficacité de conversion importante et, qu'en compensation, il faut augmenter le nombre d'émetteurs.

Au Canada, la seule source X HHG s'étendant dans la fenêtre de l'eau se trouve dans ALLS. Notre solution pour augmenter le nombre d'émetteurs dans le volume focal est décrite dans la suite de ce chapitre et dans *Cardin et al. J. Phys B. 2018* (Chapitre 4). Les autres techniques déployées dans le monde pour atteindre ce même objectif sont décrites dans le tableau 3-1.

Tableau 3-1 Sources internationales de rayonnement HHG dans la fenêtre de l'eau

Publication	λ μm	E mJ	f kHz	Durée FWHM fs
Chen PRL 2010 [72]	2,00	2,40	0,01	40
Ishii Nat Comm 2014 [73]	1,60	0,38	1,00	9
Cousin Opt. Lett 2014[74]	1,85	0,46	1,00	12
Stein J. Phys. B 2016[75]	2,10	1,35	1,00	32
Teichman Nat Comm 2016[76]	1,85	0,40	1,00	12
Popmintchev PRL 2018 [77]	2,10	2,75	1,00	26

Publication (Cont.)	Gaz	Géométrie	E_{coup} eV	Eff. Conversion /1 % largeur de bande
Chen PRL 2010[72]	He	Capillaire \varnothing 200 μm — 1 cm — 10,6 bar	520	3×10^{-9} @ 450 eV
Ishii Nat Comm 2014[73]	Ne	Cellule 1,4 mm — 1,4 bar	350	7×10^{-12} @ 300 eV
Cousin Opt. Lett. 2014[74]	Ne	Tube percé 1,5 mm — 7 bar	400	2×10^{-9} @ 300 eV
Stein J. Phys. B 2016 [75]	Ne	Cellule + Capillaire \varnothing 300 μm — 6 mm — 3 bar	450	4×10^{-11} @ 350 eV
Teichman Nat Comm 2016[76]	He	Tube percé 1,5 mm — 6 bar	543	2×10^{-11} @ 284 eV
Popmintchev PRL 2018 [77]	He	Capillaire \varnothing 400 μm — 5 cm — 20 bar	550	3×10^{-8} @ 450 eV

3.3 Résumé français de *Cardin et al. J. Phys B. 2018* => Notre solution

En simplifiant un peu le concept d'accord de phase décrit au chapitre précédent, nous pouvons séparer la génération d'harmoniques en deux catégories.

1. La génération avec un laser de faible énergie par impulsion, mais à haute cadence.
2. La génération avec un laser de haute énergie par impulsion, mais à faible cadence.

Le premier cas requiert une focalisation étroite pour atteindre les intensités de saturation nécessaires. Une focale courte signifie une grande pression pour atteindre un bon accord de phase et conserver un grand nombre d'émetteurs dans le volume focal. En pratique, ces hautes pressions sont difficiles à atteindre et maintenir et l'efficacité de conversion par impulsion demeure généralement plus faible. Néanmoins, l'accumulation de

nombreuses impulsions dans un délai d'une seconde permettra l'obtention d'une quantité significative de photons par seconde.

Le second cas permet l'utilisation d'une focalisation plus relâchée et donc d'une plus faible pression dans la zone de génération. Cette technique suppose que la construction cohérente de l'impulsion dans un plus grand volume (plus grande longueur de Rayleigh et plus grande tache focale) pourra atteindre de meilleures efficacités de conversion par impulsion. Cette amélioration pourrait être suffisante pour compenser le plus faible nombre d'impulsions par seconde.

Alors que la majorité des sources du tableau 3-1 utilise des taux de répétitions de 1 kHz avec des énergies allant au plus à 2,8 mJ, nous utilisons plutôt des énergies allant jusqu'à 7,7 mJ à un taux de répétition de 100 Hz.

Les hautes énergies à 1,8 μm sont obtenues par amplification paramétrique à quatre étapes. La dernière étape est l'amplification dans un large (22 x 22 mm) et épais (2 mm) cristal de *bêta baryum borate* (BBO) de type II. La source est décrite dans *Thiré et al APL 2015* [78]. Elle peut fournir jusqu'à 13 mJ de 1,8 μm à une durée de 30 fs. Les impulsions sont focalisées dans une cellule de génération remplie sporadiquement d'hélium à haute pression par une vanne pulsée. Comme la pression est délivrée de façon pulsée, le volume total de gaz diffusant jusqu'à la chambre de détection peut être gardé sous contrôle. La cellule est incluse dans deux chambres de pompage différentiel, permettant l'utilisation de très fortes pressions au point de génération, sans nuire à la qualité du vide dans le reste de la chambre expérimentale.

En utilisant une cellule de 8 mm et une pression d'hélium de 20 bar, nous obtenons une efficacité de conversion de $3,6 \times 10^{-11}/1$ % de large de bande à 284 eV avec une énergie de coupure fermant la fenêtre de l'eau.

Nous amenons l'hypothèse d'un autoguidage de l'impulsion de génération dû à la divergence du faisceau causée par les électrons libres compensant initialement la convergence naturelle du faisceau. Ceci permet la formation d'un canal où l'indice de réfraction est stable en son centre et augmente rapidement à ses extrémités, c.-à-d. aux extrémités radiales du faisceau. Il y aura verrouillage de l'intensité laser à une valeur déterminée par la densité d'électrons libres.

Les observations qui appuient cette hypothèse sont :

1. Collimation des harmoniques sur l'intégralité du spectre. figure 4-5
2. Effet de la longueur de la cellule sur l'efficacité de génération. figure 4-5
 - a. Trop courte, le canal ne se forme pas.
 - b. Trop longue, l'absorption devient trop importante.
3. Effet de l'intensité sur le spectre harmonique. figure 4-6

- a. L'énergie de coupure augmente avec l'intensité jusqu'à une certaine valeur.
- b. Ensuite, l'efficacité de conversion continue d'augmenter, mais l'énergie de coupure ne change pas.

Pour supporter davantage cette hypothèse, le professeur Valer Tosa (*National Institut for R&D Isotopic and Molecular Technologies*, Roumanie) a résolu les équations d'onde en 3D dans le contexte expérimental décrit ci-haut. Les calculs démontrent bien la formation du canal du guidage et le verrouillage de l'intensité dans ce canal. La longueur calculée nécessaire pour la formation du canal correspond bien à la longueur de cellule minimale nécessaire pour l'obtention d'une bonne efficacité de conversion.

Au final, le flux mesuré par seconde est plus faible que ce que d'autres sources comparables obtiennent (voir *Teichman et al. Nat. Comm. 2016 [76]*). Nous obtenons bel et bien une efficacité de conversion légèrement supérieure. Le gain n'est pas suffisant pour compenser parfaitement le taux de répétition inférieur, menant à ce flux total plus faible.

Notre technique comporte certains autres avantages. Le couplage dans le canal est automatique puisqu'il est auto-formé. La collimation des harmoniques est aussi très avantageuse pour son utilisation dans des expériences requérant une longue propagation.

3.4 Autres résultats

À la figure 3-1, nous présentons des résultats de calculs qui ne se retrouvent pas dans *Cardin et al. J. Phys. B 2018 [39]*. Il s'agit de cartes 2D de l'émission harmonique à 300 eV en fonction de la distance radiale par rapport à l'axe de propagation.

Le cadre supérieur montre bien le verrouillage de l'intensité le long de l'axe de propagation. On y voit l'intensité maximale du faisceau fondamental le long de cet axe. Alors que l'intensité devrait augmenter significativement à l'approche du foyer géométrique sous vide (situé à 0 mm), elle chute plutôt rapidement pour se stabiliser après seulement ≈ 1 mm de propagation. Alors que le faisceau devrait aussi se concentrer radialement à l'approche du point focal, il prend plutôt de l'expansion. Cette expansion se comprend dans le cadre du verrouillage d'intensité puisque l'énergie dans l'impulsion, c.-à-d. l'intégrale radiale de l'intensité à une position z donnée, doit être conservée.

Le cadre du bas illustre la construction cohérente du signal harmonique qui se fait principalement sur l'axe de propagation après la création du canal d'autoguidage, là où le gradient d'intensité est faible. Le profil d'émission harmonique suit aussi très bien le profil de l'intensité du dipôle, le second cadre. L'émission harmonique est le fruit de l'interdépendance entre l'accord de phase et l'intensité du dipôle.

La forte modulation radiale du champ harmonique est typique des champs harmoniques aux ordres très élevés. Les composantes spectrales du dipôle et du champ harmonique sont fortement modulées dans l'espace et en fréquence. Ceci se reflète dans le spectre harmonique total mesuré où les harmoniques ne peuvent plus être distinguées malgré le fait que nous n'ayons pas une impulsion attoseconde isolée.

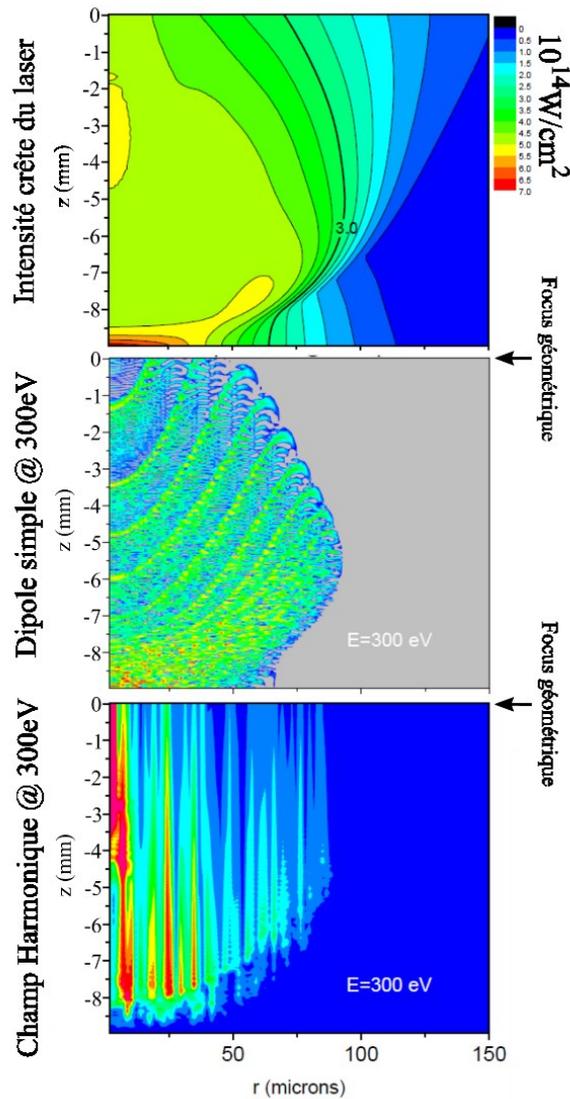


Figure 3-1 Cartes 2D de l'intensité crête du champ laser (haut), de l'amplitude du dipôle (milieu) et du champ harmonique (bas) à 300 eV en fonction de la distance radiale par rapport à l'axe de propagation ($r = 0 \mu\text{m}$). Symétrie cylindrique le long de l'axe de propagation. La position $z = 0$ mm correspond à la position du focus géométrique. Le laser se propage des z négatifs vers $z = 0$ mm. Ces cartes sont générées à partir des solutions numériques des calculs du Prof. Tosa.

3.5 Article supplémentaire I – 10 mJ 5-cycle pulses at 1.8 μm through optical parametric amplification

Impulsions de 5 cycles et 10 mJ à 1,8 μm par amplification optique paramétrique

Nicolas Thiré¹, Samuel Beaulieu¹, Vincent Cardin¹, Antoine Laramée¹, Vincent Wanie¹, Bruno E. Schmidt^{1,2} et François Légaré¹.

1 Institut National de la Recherche Scientifique, Centre Énergie Matériaux et Télécommunications, 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec J3X 1S2, Canada

2 Few-cycle Inc., Montréal, Qc. H1L 5W5, Canada

Applied Physics Letters

Reçu 14 janvier 2015

Publié 6 mars 2015

<http://dx.doi.org/10.10631/1.4914344>

3.5.1 Mise en contexte et résumé

L'article du Dr. Nicolas Thiré décrit la source infrarouge haute puissance dans ALLS. Sa mise en place au début du doctorat a été la pierre angulaire de la majorité du travail décrit dans cette thèse.

3.5.2 Résumé Anglais

We report the generation of 10 mJ, 5-cycle pulses at 1.8 μm (30 fs) at 100 Hz repetition rate using an optical parametric amplifier pumped by a high energy Titanium-Sapphire laser system (total energy of 23 mJ for Signal and Idler). This is the highest reported peak power (0.33 TW) in the infrared spectral range. This high-energy long wavelength laser source is well suited for driving various nonlinear optical phenomena such as high harmonic generation for high flux ultrafast soft X-ray pulses.

3.5.3 Contribution personnelle

Soutien à Nicolas Thiré, l'expérimentateur principal, pour la caractérisation spatiale et temporelle du faisceau infrarouge amplifié.

4 ARTICLE I - SELF-CHANNELLED HIGH HARMONIC GENERATION OF WATER WINDOW SOFT X-RAYS

Auto-guidage de la génération d'harmoniques dans la fenêtre de l'eau.

Vincent Cardin¹, Bruno E. Schmidt^{1,2}, Nicolas Thiré¹, Samuel Beaulieu^{1,3}, Vincent Wanie^{1,4}, Matteo Negro⁴, Caterine Vozzi⁴, Valer Tosa⁵ & François Légaré¹

1 Institut National de la Recherche Scientifique – Énergie, Matériaux & Télécommunication, Varennes, Qc. J3X 1P7

2 Few-cycle Inc., Montréal, Qc. H1L 5W5, Canada

3 Université de Bordeaux - CNRS - CEA, CELIA, UMR5107, F-33405 Talence, France

4 Intitute for Photonics and Nanotechnologies CNR-IFN, I-20133 Milan, Italy

5 National Institut for R&D Isotopic and Molecular Technologies, 400293 Cluj-Napoca, Romania

Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics

Reçu 12 mars 2018

Révisé 17 juillet 2018

Publié 3 août 2018

DOI : <http://doi.org/10.1088/1361-6455/aad49c>

Vincent Cardin était responsable de l'écriture du manuscrit, de la communication avec le Prof. Valer Tosa, de l'organisation des données traitées et de la formation des figures. J'ai également reproduit et confirmé les données lors d'une autre campagne d'expérimentation indépendante.

Les Dr. Nicolas Thiré et Dr. Bruno Schmidt ont été les expérimentateurs principaux avec l'aide de Samuel Beaulieu et Vincent Wanie. Matteo Negro et Caterina Vozzi ont assisté aux expériences en personne lors d'une visite à l'INRS.

Valer Tosa était le théoricien chargé de l'interprétation et de la modélisation des résultats.

Le projet a été initié et subséquemment géré par le Prof. Légaré en collaboration avec la Prof. Caterina Vozzi.

4.1 Abstract

Owing to the increasing significance of high harmonic generation (HHG) as a tabletop coherent X-ray source and the coming of age of intense infrared (IR) lasers, the development of high brightness soft X-ray beamlines is gaining a lot of attention. We discuss the self-guided propagation of high energy IR pulses around 1.8 μm center wavelength being loosely focused into a long, high-pressure gas cell. A bright X-ray beam with photon energies extending up to the oxygen K-edge at 543 eV is achieved with a flux of 2.9×10^3 photons/shot/1% bandwidth around the carbon K-edge (280 eV). We provide experimental and numerical evidence of an ionization steady state condition in the generation medium causing self-channelling and intensity clamping of the driving field. While the latter limits the HHG cut-off energy for a given driving field wavelength, self-channeling increases the HHG flux through a longer, phase-matched, interaction length and provides a well-collimated HHG beam covering more than three octaves from $<50\text{eV} - 550\text{eV}$.

4.2 Main article

For the past 25 years, the recollision picture of a tunnel-ionized electron linked to its parent ion served as a powerful basis to gain extensive information on said parent ion. HHG spectroscopy and many other techniques related to the 3-step model [34] are still highly relevant today, with recent efforts being spent, for example, on recovering the band structure of condensed matter [79], studying chirality of organic enantiomers [80], or probing elemental resonances in gases [81]. This recollision mechanism, however, not only provides means for dynamic imaging of matter, but also is a convenient approach to generate soft X-ray photons with unmatched properties. To date, it is the only mechanism to achieve attosecond (as) light pulses [62], [68], [70], [82] with recent pulse duration records in the few tens of as [71], [83]. As a tabletop, coherent X-ray source, HHG complements very well the traditional large scale facilities by offering advantages that fill the gaps left by the shortcomings of synchrotrons and FELs, e.g. availability of these sources, easy access to low photon energies, short pulse duration and easy pump-probe synchronization with potential attosecond resolution [27], [84].

Tremendous scientific insights have been gained due to the unique characteristics of HHG as an X-ray source. Transient X-ray absorption spectroscopy was used to study the sub-femtosecond dynamics of charge carriers in germanium [85] and to characterize the photodissociation of CF_4^+ and SF_6^+ with near single femtosecond resolution [86]. Resonant X-ray magnetic scattering using HHG photons was used to study the effect of magnetic domain walls on the time scale of ultrafast demagnetization in Co/Pd multilayers [32] with a temporal resolution traditionally unattainable because of the $\approx 100\text{fs}$ synchronization jitters between a laser

pump and a synchrotron or XFEL beamline. A bright HHG source of 53nm photons was used to image superfluid helium nanodroplets with single-shot coherent diffractive imaging [87]. These are but a few examples showing the immense potential of HHG-based soft X-rays beamlines. One can also easily foresee the potential applications for high spatial resolution biomedical imaging [88], [89] using such a source in the spectral range where water is transmissive, i.e. the so-called water window.

As such, the discussions on the most efficient method and geometry for the optimization of this highly nonlinear up-conversion process are more relevant than ever before. Recent results indicate that the conversion efficiency of the process for a given driving wavelength and generation medium largely depends on the phase matching conditions and number of emitters [90], [91]. With that assumption, the maximum average X-ray flux achievable by a tabletop laser source would only be limited by the laser average power and potentially optimized by increasing the numbers of coherent emitters for a given generation intensity.

Comparing conversion efficiencies achieved by low energy tightly focused beams in a gas jet [84], [90], [92]–[98] with multi-mJ beams loosely focused in a semi-infinite or finite gas cell, or in capillary waveguide [99]–[106], the former rarely come out on top. Multi-kHz fiber chirped pulse amplification (1030 nm - FCPA) systems driving HHG in xenon or krypton show typical conversion efficiencies of $\approx 10^{-8} - 10^{-7}$ for a single harmonic (typically H19 or H21). In contrast, HHG driven by multi-mJ Ti:Sapph (800 nm) systems in argon showed efficiencies on the order of $10^{-6} - 10^{-5}$ for a single harmonic (H15 to H27). Although its role is undeniable, wavelength scaling alone cannot account for this difference, nor can the different ionisation potential of the generating gas, which actually works to favor multi-kHz system in this comparison. Comparing conversion efficiencies in harmonic 27 of a 800 nm driver generated in argon, Takahashi *et al.* 2002 [102] reach an efficiency of 10^{-5} with a 10 Hz, 50 mJ driver. In a slightly more recent work, Brichta *et al.* 2009 [106] demonstrated 10^{-4} conversion efficiency in the same harmonic using a 100 Hz, 800 uJ driver. On the multi-kHz side of the comparison, Rothhardt *et al.* 2014 [90] achieved an efficiency of 1.4×10^{-6} at H27 with a 150 kHz, 6.5 μ J, 820 nm laser. The efficiency reported by Rothhardt *et al.* is orders of magnitude higher than typically achieved for similar generation conditions and is attributed to proper phase-matching of the tightly focused driving field. Nevertheless, this record value remains an order of magnitude lower than typical efficiency achieved by loosely focused multi-mJ drivers 12 years prior. This comparison indicates that the number of emitters is a crucial parameter to optimize in order to reach the highest X-ray conversion efficiency for given laser parameters, and, at the very least, that proper phase-matching conditions are much easier to achieve in loose focusing conditions.

High average power sources are typically achieved by scaling the repetition rate of low energy pulses in the multi-kHz to MHz regime. As such, even if the conversion efficiency of tightly focused beam remains lower than loosely focused multi-mJ beams, their total soft X-ray flux (photons s^{-1}) are still typically much

larger. Rothard et al. measured 2.2×10^{11} ph/sec in harmonic 27 in argon. Recent work using 120 and 50 kHz short wavelength drivers in krypton achieved record breaking flux as high as 4.3×10^{14} photons s^{-1} at 21.7 eV [107], or 3.3×10^{13} photons s^{-1} at 22.3 eV, [108] respectively. These types of sources, however, prevent reaching the water window photon energy range needed for the applications discussed above. Solving the technological problems of scaling the average power of multi-mJ sources would provide ideal laser drivers for high flux HHG with high photon energy [109].

In addition to the discussion on the conversion efficiency and spatial beam quality, the choice of the repetition rate as such may depend on the type of experiment to be performed. Any pump-probed experiment involving thin films in vacuum will benefit from low repetition rate system since these films are poor heat conductors. Furthermore, small-angle scattering experiments like Coherent Diffractive Imaging (CDI) and ultrafast demagnetization would require a low beam divergence as it naturally comes out of a loose focusing geometry. Angular Resolved Photoelectron Spectroscopy (ARPES), Cold-Target Recoil-Ion-Momentum Spectroscopy (COLTRIMS), or other coincidence measurements, on the other hand, would benefit much more from high repetition rate sources [110].

Extending the cut-off energy of HHG in the water window spectral range requires to increase the wavelength of the driving laser [58]. So far, HHG in the water window has been demonstrated using neon and helium with driving laser wavelength in the range from 1.3 to 2.1 microns [72]–[76], [111], [112]. One major issue faced with HHG in the soft X-ray range arises from the wavelength scaling of the nonlinear optical process. In the single atom response, HHG yield scales with $\lambda^{-6.5 \pm 1.1}$ [35]. Furthermore, HHG arises from three steps with the last one being recombination [34]. The recombination cross-section is the same as the complex conjugate of the photoionization cross-section, which typically decreases with increasing the photon energy (when away from resonances). Thus, to compensate for the wavelength scaling and the reduced recombination cross-section, one needs to increase significantly the number of emitters. To phase-match the process, one needs to ensure that the phase velocity of the driving laser matches that of the generated harmonics. At longer wavelengths, the contribution of the free electrons to the wavevector mismatch is more important thus the critical ionization level is reduced compared to HHG driven by Ti-Sa or Yb lasers [58]. This requires the use of a lower laser peak intensity at the cost of lower cut-off energy.

Existing high flux sources extending up to the upper edge of the water window claim conversions efficiency of $\approx 10^{-12} - 10^{-11}$ per 1% bandwidth close to the carbon edge, 284 eV, for 1.8 μm drivers in helium [76] or 2.0 μm drivers in neon [75]. For 1.6 μm or 1.8 μm drivers in neon, which optimise the conversion near the carbon k-edge, the efficiency increases to 10^{-9} per 1% bandwidth at 280 eV [73], [74]. Other sources report HHG past the carbon K-edge, but the efficiency of conversion is either simply estimated or not reported [72], [112], [113]. Owing to the unfavorable scaling from both the longer wavelength and higher ionisation

potential needed to reach the water window, even in the best cases, these efficiencies are orders of magnitude lower than for 800 nm or 1030 nm drivers in argon or krypton. For a flat-top, 2 μm driving laser generating harmonics in helium, analytical and numerical calculations taking absorption and phase-matching for infrared driver into account predict efficiency around 10^{-10} near the carbon and oxygen K-edge, with a narrow band being phase-matched around 440 eV showing an efficiency of 3×10^{-8} [114].

In this work, we present HHG from loosely focusing up to 8mJ of IR pulses on target into a finite helium-filled gas cell. We achieve a very well collimated XUV beam showing the same divergence over 2.5 octaves of frequency from 100 eV up to 550 eV which we attribute to a self-guiding mechanism, established over $\sim 8\text{mm}$ of propagation in a highly pressurized gas cell. The relatively high flux (2.9×10^3 photons/shot/1% bandwidth neighbouring 280 eV) enabled single shot absorption measurements at the carbon k-edge with a standard flat field spectrometer.

4.3 Experimental details

The experimental setup is shown in figure 4-1. The HHG driving field is provided by the high energy optical parametric amplifier (OPA) of the 100 Hz line of the Advanced Laser Light Source (ALLS). Briefly, 5 mJ from a 50 mJ CPA line are used to seed a white-light OPA (TOPAS - Light Conversion Ltd.). The TOPAS is tuned to provide 750 μJ of idler centred on 1800 μm with 40 fs FWHM. This idler is spatially filtered and boosted in a 22x22 mm BBO crystal (2 mm thick, type II) pumped by the remaining energy of the Titanium-Sapphire system (45 mJ, compressed to 40 fs). This last amplification stage provides up to 10 mJ, 30 fs compressed pulses centred on 1800 nm. The laser system and its characterization are discussed in details in Thire *et al.* APL 2015 [38].

The harmonics are generated by focusing the IR beam in a helium-filled gas cell whose length (L , Figure 4-1) can be varied from 2 to 12 mm by steps of 2 mm. The centre of the cell is positioned at a distance z from the geometrical focus position of the plano-convex lens. The work presented here was done using a 60 cm lens. The high helium pressure is delivered through a pulsed valve (*Parker Hannifin*) injecting bursts of pressurized helium. Small laser-drilled holes in the interaction and differential pumping section allow the unhindered propagation of the beam while preventing the high helium pressure to easily dissipate. Two sequential differential pumping stages are necessary to keep the pressure in the linked X-ray spectrometer chamber at 10^{-6} mbar.

The effective interaction-pressure in the gas cell is affected by many experimental parameters. Namely, they are the pressure in the back of the pulsed valve, the duration of a gas burst from the valve, the delay between the gas burst and the transient laser pulse, the length of the gas cell and the size of the laser drilled holes. All those parameters are adjusted to achieve the best phase matching conditions by optimizing the HHG

yield and collimation. Thus, experimental numbers for the absolute pressure are hard to quantify but are estimated to be one to two orders of magnitude lower than the backing pressure. For future work, a novel approach to quantify the medium density profile using the plasma emission from the interaction region during high harmonic generation could be implemented in the current system.[115] As for the current discussion of experimental parameters we will refer to the backing pressure of the pulsed valve.

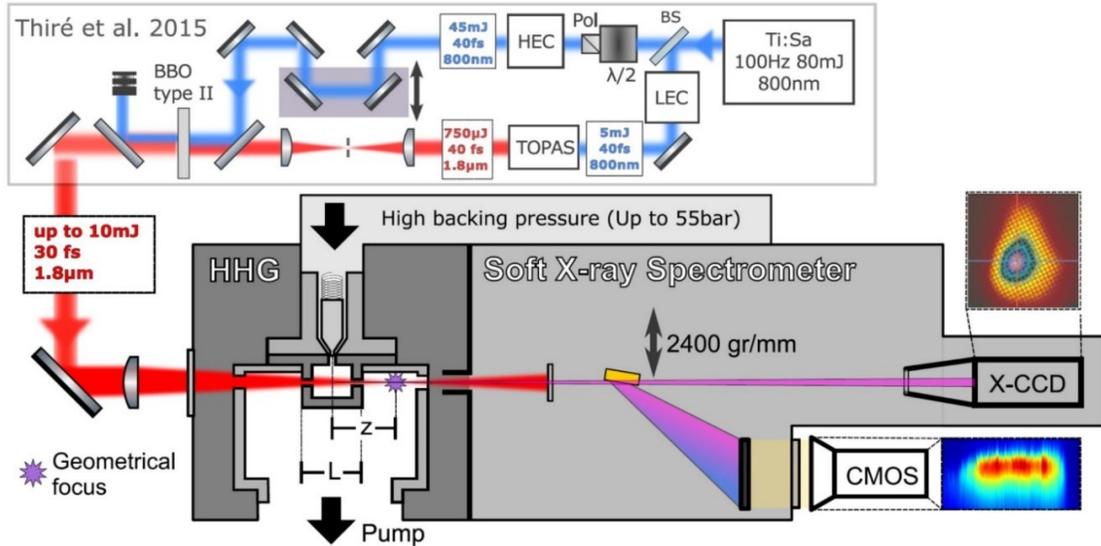


Figure 4-1 Representation of the HHG driving laser (upper box, as described in ref [53]) with the generation and characterization vacuum chambers.

The generation chamber consists of a two-stage differential pumping system handling the high pressure delivered in bursts by a pulsed valve. Grey areas are part of the vacuum system. The spectrometer uses a curved-groove lamina replica grating with 2400gr/mm.

Spectral characterization is achieved with a 2400 gr/mm lamina-type replica diffraction grating (*Shimadzu Inc.*). The detector in the image plane of the grating is a typical micro-channel plate/P20 phosphor screen/low-noise CMOS camera trio. Spectral calibration is done using both the harmonic comb and absorption edges from metallic or polymeric thin foils (Al, C, N, Ti). The grating can be removed from the beam path to proceed with flux calibration and beam profiling by direct illumination of a calibrated, back-illuminated CCD (*PI-MTE, Princeton Instruments*). The CCD chip is protected from the fundamental IR beam and from stray light by an aluminum foil providing decent transmission in the water window ($\approx 20\%$ at C K-edge and $>70\%$ at O K-edge), but a very high attenuation coefficient in the infrared.

4.4 Results

The best flux and highest photon cut-off energy were achieved using 7.85 mJ pulses focused by a 60 cm lens on an 8 mm gas cell backed by 44.8 bars of He. The corresponding spectra with different absorption filters are shown in Figure 4-2. A 200nm thick Mylar (polyethylene terephthalate, a polymer containing

carbon, oxygen, and hydrogen atoms) foil is used to identify the carbon K-edge (284 eV) and a 200 nm titanium foil for the Ti L₂-edge (460 eV). The spectra were recorded over a total of 2000 laser shots to achieve a high signal to noise ratio. The measured cut-off extends to 550 eV with a three orders of magnitude signal drop between ~130 eV to 550 eV. This high dynamic range requirement makes the detection of the oxygen edge difficult and we had to use an Al filter to block the bright low energy photons. Nevertheless, our source is bright enough to identify a weak absorption feature of the oxidized Al filter, seen as the green curve in the inset of Figure 4-2.

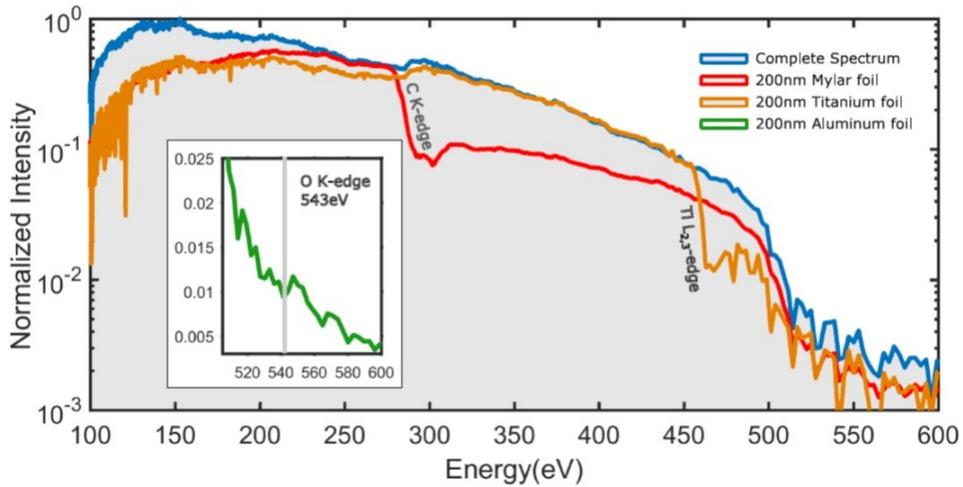


Figure 4-2 Water window HHG spectra with absorption spectra of a 200nm Mylar and 200nm Ti filters.

The green curve in the inset shows the absorption spectrum of an Al filter to prevent the MCP from saturation by low energy photons. The unfiltered spectrum (blue curve) is acquired over 2000 laser shots.

The CCD image in Figure 4-3 was acquired in similar conditions as the spectra in Figure 4-2 (6.05 mJ, 48 bars, 8 mm cell, 60 cm lens). It shows a FWHM of 3.0 mm which corresponds to a small beam divergence of only ≈ 3 mrad (full angle). Remarkably, this divergence is roughly similar within the entire spectral operation range of our detection system, c.f. the central image in Figure 4-5. Taking the quantum efficiency of the CCD (48% at 284 eV) and the transmission of the protective aluminum foil (19% at 284 eV) into account, the generated flux is calculated to be 5.5×10^5 photons per shot (5.5×10^7 ph/sec) in the entire spectral range of the detection system, or 8.0×10^4 photons/shot in the entire water window. At the carbon K-edge, this corresponds to 4.9×10^3 photons/shot/1% bandwidth. This translates to an energy in the XUV pulses near the carbon K-edge of 0.22 pJ, corresponding to a conversion efficiency of 3.6×10^{-11} for 1% bandwidth. This is higher than recent reported efficiencies using a gas cell configuration [76] despite our extended cut-off and the use of higher I_p gas medium [75]. We note that three orders of magnitude higher flux is reported for HHG driven within a capillary [72], [77].

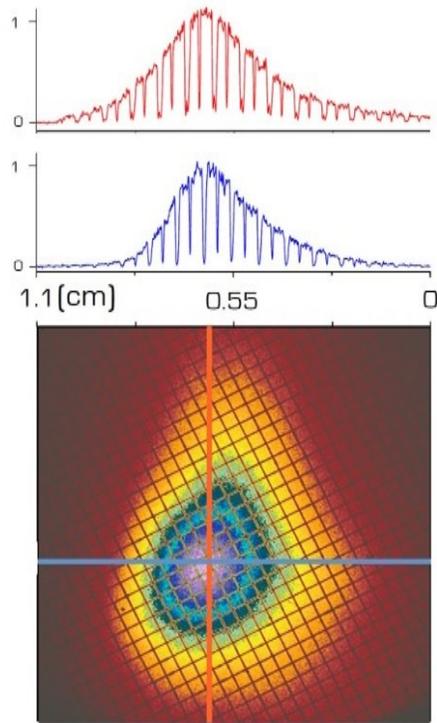


Figure 4-3 HHG beam profile as measured by the XUV-CCD with color-coded horizontal and vertical cross section. The visible grid structure is the support of the Al filter.

To demonstrate the capability of this high brightness water window source, we have performed single shot absorption measurement of a 200 nm mylar filter. The results are presented in Figure 4-4 where each horizontal line denotes a measured single shot spectrum. We implemented an edge-finding algorithm and the histogram for the edge detection is shown on top of the image. Within a few hundred shots, the carbon K-edge can be evaluated with a precision of 6 eV(FWHM). We note that this is the first reported single-shot HHG absorption spectrum, underlining our capability to optimize the flux in real-time.

After summarizing the final performance of our source we present a detailed discussion how we walked our way through the large parameter space of operating conditions. The first aspect is to optimize the driving laser itself. Apart from aiming for the shortest and most energetic pulses out of the high energy OPA, substantial efforts were undertaken to achieve a homogeneous spatial beam profile. In this regard, the spatial filter prior to the final OPA stage is crucial and it enables HHG without truncating the beam by an iris in front of the generation chamber. To further boost the driving laser specifications we aim to achieve shorter and more energetic pulse by implementing a Frequency domain Optical Parametric Amplifier [116]. This approach has recently been scaled to the 2.5 TW level of 2 cycles IR pulses with a clean focal spot quality [117].

The next step in our experiment was to investigate the focus condition for which we tried focal lengths from 25 cm up to 75 cm. While the cut-off did not change much in the different cases, the longer focal lengths lead to a much more collimated beam and overall higher brightness. Since there was almost no difference in term of source brightness and cut-off between 60 cm and 75 cm focal length, we choose the 60 cm because of experimental convenience. We expect to use a longer focal length for higher input peak powers, that could be provided by hollow core fibre compression [41].

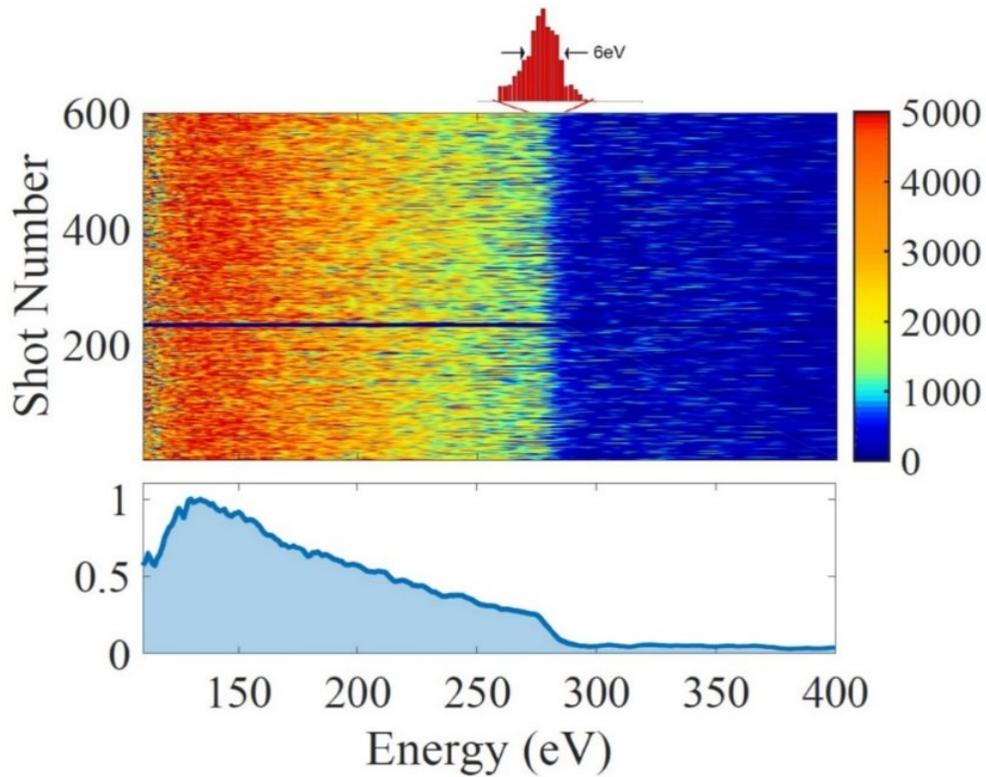


Figure 4-4 Single-shot carbon K-edge absorption spectra.

The histogram bins represent the position of the measured edge as retrieved by a simple edge-detection algorithm. The grey spectrum represents the normalized sum of the 600 shots on a linear scale. The laser was blocked for shot 220-225 to record the noise level.

As expected, the position of the gas cell relative to the geometrical focus of the plano-convex lens played a critical role in obtaining a bright, collimated harmonic beam. Although the data on the full dependence of the cell position z is not shown here, the best flux and divergence were achieved with the cell positioned about 3.5 – 5 mm prior to the geometrical focus. As the cell approaches the focus, the beam profile and HHG yield degrade significantly. A cell positioned after the focus (large z) had the same effect. The exact optimum position depends on the actual cell length. For an optimum cell length, 8 mm, the ideal position is about 4.1 mm upstream of the geometrical focus.

After defining the rough experimental framework conditions we investigated more thoroughly the details for the optimal generation of high harmonics. At the same time, this optimization serves to investigate the underlying laser propagation effects leading to a well collimated and efficient coherent build-up of soft X-ray photons. We systematically studied the effect of the backing pressure, pulse energy and cell length and the results are summarized in Figure 4-5. The images show the 2D-multi channel plate (MCP) of the flat field spectrometer. The horizontal axis resolves the photon energy while the vertical axis shows the vertical beam profile at each frequency, i.e. the spatio-spectral profile of the soft X-ray beam. The white lines mark three relevant photon energies (130 eV, 300 eV & 500 eV). The vertical columns show the evolution of the spatio-spectral profile for a given cell length as a function of backing pressure and the horizontal rows, the evolution of the profiles for given backing pressure as a function of cell length.

The combination of both the cell length and pressure (Figure 4-5) plays a crucial role to obtain a bright, collimated beam over the entire spectral range. For these generation conditions (7.7 mJ, 60 cm lens) an 8 mm cell with 20 bar backing pressure⁹ provided the best collimation and highest photon counts. If either a shorter cell or lower pressure was used, a more diffused beam was obtained. On the other hand, a cell too long or backing pressure too high showed attenuated low energy harmonics. This can be attributed to helium reabsorption causing both a decrease in the intensity of low energy photons around 130 eV, a degradation of the overall phase matching conditions [99] and to the reduced grating efficiency of the XUV spectrometer. For lower HHG signals with a larger divergence, the cut-off remained roughly the same. Although the backing pressure is difficult to relate directly to the medium density, we can understand that the latter should evolve along the indicated diagonal of the figure since a higher backing pressure is required to fill a larger cell with the same gas density.

After defining an optimum cell length of about 8mm, we performed a pressure scan. The spectra corresponding to the vertical column of the spatio-spectral profile of Figure 4-5 for an 8 mm cell at different pressures are presented in Figure 4-6 (A). They highlight the observation that low and high pressure limits the HHG yield. While the total spectral extension does not depend very strongly on pressure, the maximum yield in the water window region seems to saturate at a high backing pressure of 20 bar. The spectra also show that the photon cut-off energy does not vary significantly with pressure. This would be expected in the single atom response regime of HHG, and the data seems to indicate that it also applies to cases clearly beyond the single atom response.

⁹ We suspect the discrepancy between the optimal backing pressure for HHG in Figures 4-2 and 4-5 to arise from an uncertainty in the actual opening time of the pulsed valve at the level of $150 \pm 50 \mu\text{s}$.

The last experiment was to record HHG as a function of input energy, shown in the Figure 4-6 (B). From 3.5 to 6.0mJ, we see an increase of the cut-off energy, as expected with the increased intensity. However, past 6.0mJ and up to 7.7mJ, only the total HHG yield changes while the spectral shape and the cut-off energy remain the same. This observation suggests that intensity clamping occurs in the generation medium, possibly as a result of steady state propagation conditions.

Indeed, our observations can be qualitatively explained by the flattening of the laser intensity profile and subsequent self-guiding of the driving field inside the extended gas cell. A similar situation has been reported by Kim *et al.* for Ti:Sa laser pulses [118]. Beyond a certain intensity, the ionized medium (i.e. the free electrons) lowers the refractive index for the driving field, given by the radial intensity distribution. As this ionization occurs first near the peak of the Gaussian profile, plasma defocusing counteracts the natural convergence of the focused beam and creates a flattened spatial intensity profile. This profile transfers to the free electrons population, which creates a low refractive index channel around the propagation axis. The broadband collimation and Gaussian beam profile of the observed X-ray beam support this picture. As initially demonstrated numerically [119] good phase-matching conditions are achieved in this transient channel, due to the gentle variation of the driving field intensity and phase.

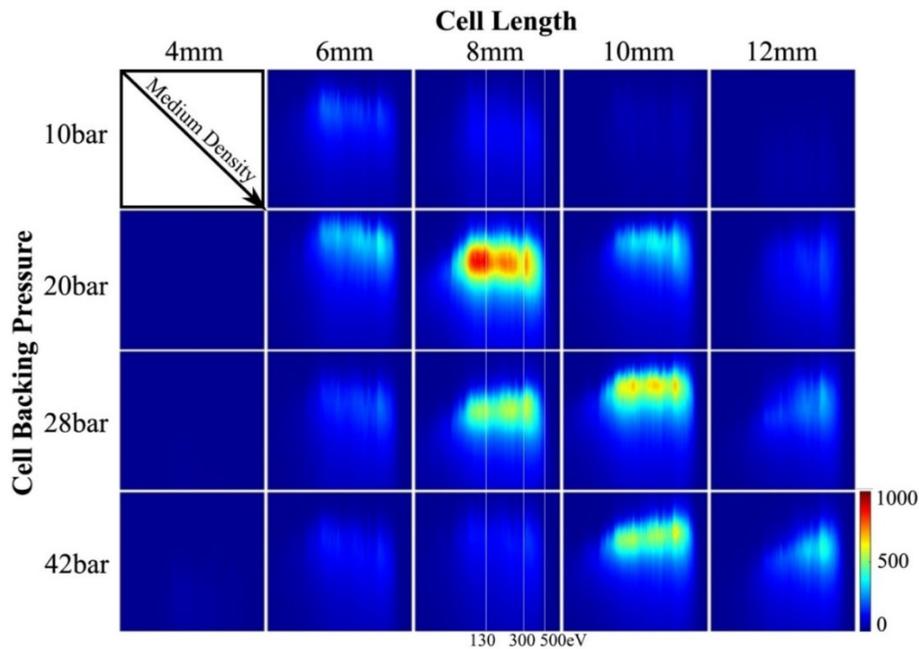


Figure 4-5 Evidence of self-guiding of the driving laser during the high harmonic generation process. The image panels show the spatio-spectral profiles of the generated harmonics acquired as a function of pressure and cell length.

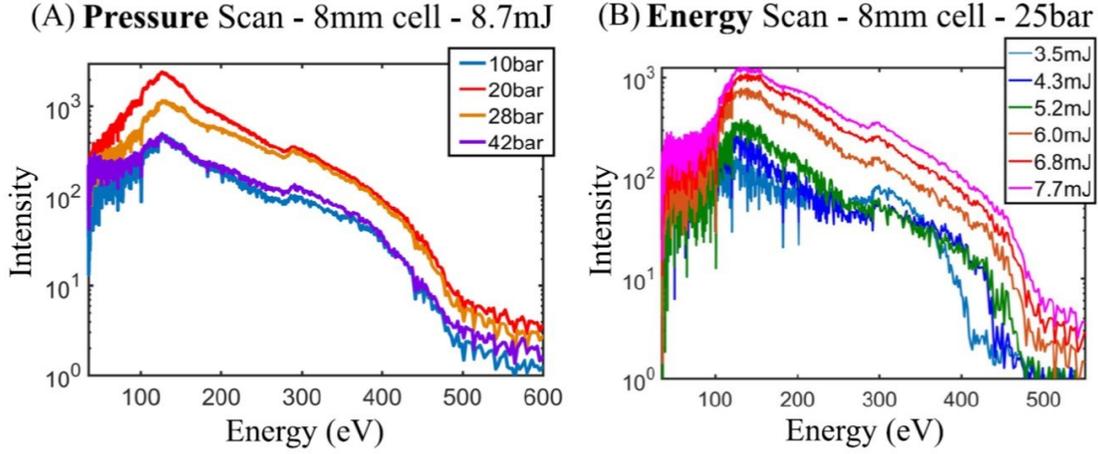


Figure 4-6 Pressure and energy scans for the water window harmonic spectra.

(A) shows the pressure dependence of the spectra associated with the spatio-spectral profiles of the 8 mm cell column of Figure 4-5. They were acquired with 8.7 mJ pulses. (B) shows the intensity dependence of the spectra. They were acquired for a backing pressure of 25bar and a cell length of 8mm.

Indeed, our observations can be qualitatively explained by the flattening of the laser intensity profile and subsequent self-guiding of the driving field inside the extended gas cell. A similar situation has been reported by Kim *et al.* for Ti:Sa laser pulses [118]. Beyond a certain intensity, the ionized medium (i.e. the free electrons) lowers the refractive index for the driving field, given by the radial intensity distribution. As this ionization occurs first near the peak of the Gaussian profile, plasma defocusing counteracts the natural convergence of the focused beam and creates a flattened spatial intensity profile. This profile transfers to the free electrons population, which creates a low refractive index channel around the propagation axis. The broadband collimation and Gaussian beam profile of the observed X-ray beam support this picture. As initially demonstrated numerically [119] good phase-matching conditions are achieved in this transient channel, due to the gentle variation of the driving field intensity and phase.

To support the above considerations we performed numerical calculations using a non-adiabatic three dimensional model [120] which describes the macroscopic effects in HHG. The calculations assume axial symmetry and solve the wave equation for the full electric field $E(r,z,t)$ of the pulse propagating in a space-time-dependent refractive index in which dispersion from neutral atoms, electron plasma and the optical Kerr effect are included. By using the strong field approximation [121], the gas polarizability response to the propagated field is estimated all over the interaction region then the polarizability is used as a source term to solve the harmonic field propagation equation, taking again into account the frequency dependent absorption and dispersion. The main result is the harmonic field $H(r,z,t)$ or its frequency counterpart $H(r,z,\omega)$ in the interaction region. Far field can be also estimated, when the optical setup is known.

Looking at the axial intensity of the driving field for a 3.5 mJ beam, 60 cm focus and 2000 torr in a 9 mm cell (Figure 4-7), simulations show a sharp decrease of the expected intensity followed by a levelling off of the intensity after approximately 4mm of propagation. This corresponds qualitatively well to the optimal cell distance to focus that provided the best HHG yield in our measurements. It also explains why short cells (Figure 4-5) would not provide a well-collimated beam as the channel seems to require at least 4 mm of propagation to be established. For these simulations a constant gas density was assumed over the 9 mm of propagation. Simulations taking into account a Gaussian-like decrease of the pressure at the edges of the gas cell produced very similar result as the harmonics are found to be built-up mainly in the slowly varying region of the intensity profile, i.e. after the creation of the channel.

From the calculations, we find that the ionization level needed to reach the steady state is 5-7%, more than one order of magnitude higher than the expected ionization rate for phase-matching of harmonics in a waveguide. Popmintchev et al. PNAS 2009 (SI) [58] reported a critical ionization level of $\approx 0.1\%$ for a $1.8 \mu\text{m}$ driver coupled in an helium-filled waveguide with 2200 torr of pressure. The simulations in Figure 4-7 (A) & (B) are presented for a helium pressure of 2000 torr, which should also be close to the estimated experimental pressure in our gas cell. Other than in the wave-guided condition at similar pressure, the self-guided regime of HHG supports a higher ionization rate while still providing good phase matching. A higher ionization rate should correspond to a higher number of emitters and, thus, a potentially higher HHG yield for similar experimental parameters.

Furthermore, HHG in a self-guided, intensity-clamped propagation regime is also quite straightforward to operate due to its adaptability. The self-formed channel essentially works as a self-adjusting, self-orienting waveguide with virtually no coupling losses. Higher intensities or pressures, up to the absorption threshold, only enlarge the channel core while keeping almost the same intensity on the medium for optimal phase-matching, hence the increase in yield observed in Figure 4-6 with no change on the spectral shape. The downside being a significantly reduce peak intensity compared to the free propagation as shown in Figure 4-7 (A).

We finally look into the radial profile and free electron density of the driving field at different distances of propagation in the gas cell (Figure 4-7 (A) & (B)). The simulations clearly confirm the creation of a guiding channel created from the flat distribution of free electrons and the clamping of the laser intensity. When the clamping regime is reached, the radial distribution for different pressures also shows that the clamped intensity varies only weakly with increased pressure (Figure 4-8). The only effect of an increased pressure is a larger diameter of the waveguide. In turn, this corresponds to an increased number of coherent emitters, and hence, a higher yield. This is in good agreement with our experimental observations on the effect of the pulsed valve backing pressure shown in Figure 4-6 (A) having no observable effect on the HHG cut-off.

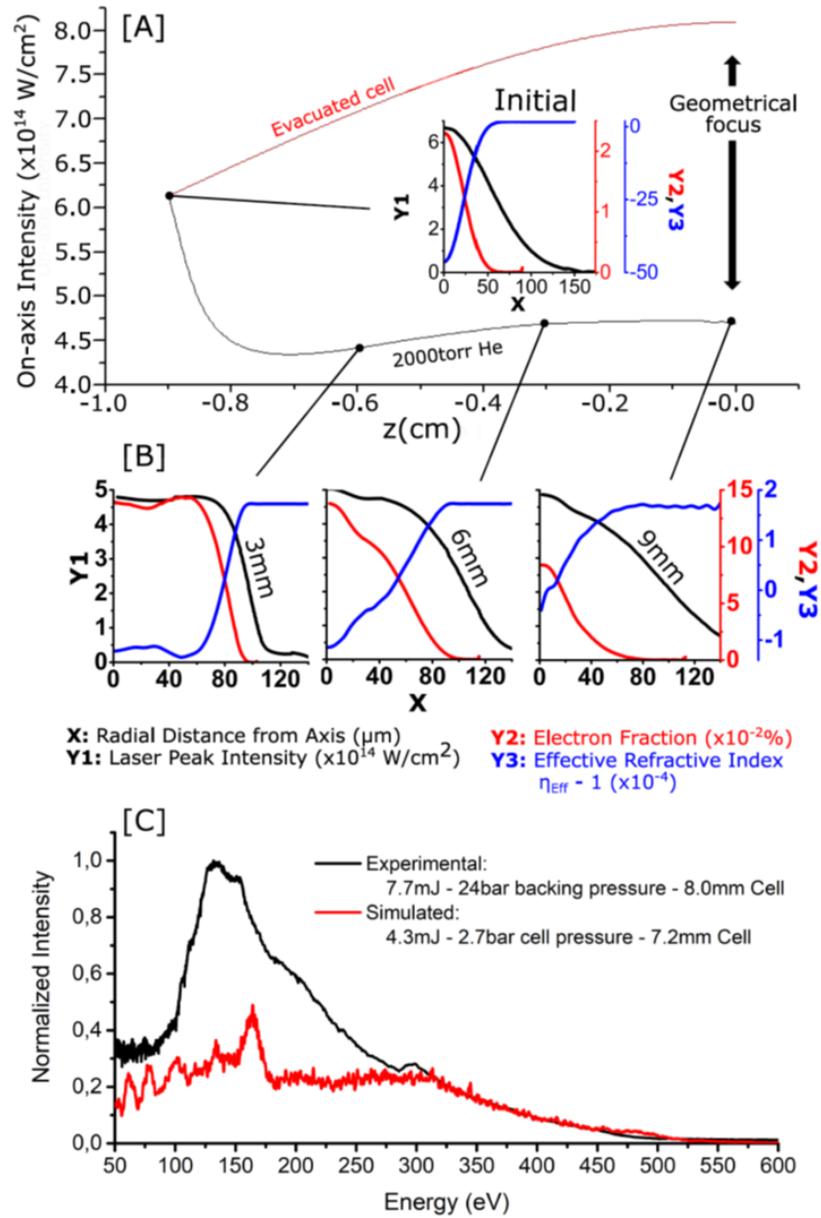


Figure 4-7 Simulation results for the axial and radial intensity profile assuming a 3.5 mJ, 30 fs, 1800 nm driving laser focused on a 9 mm, 2000 torr, helium cell by a 60cm lens.

(A) shows the axial profile compared to a vacuumed cell. (B) shows the radial peak laser intensity (black), the free electron density (red) and the corresponding effective refractive index (blue). The reconstructed HHG spectrum (C) qualitatively compared to the experimental spectrum. The simulated spectrum is shown for slightly different experimental parameters.

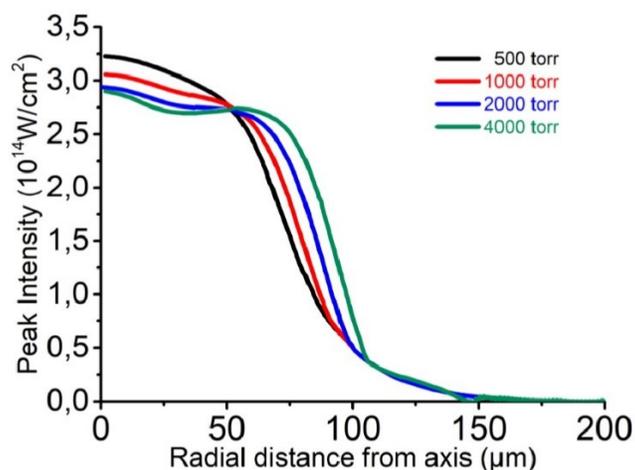


Figure 4-8 Radial intensity distribution of a 2 mJ, 30 fs, 1800 nm laser pulse focused on a neon-filled cell after 3mm of propagation. The initial intensity is 4.4×10^{14} W/cm².

The simulated spectra shown in Figure 4-7 (C) reproduce well the behaviour of the higher energy photons in the cut-off region, which follows closely the photo-ionization cross section of helium. At lower energies, the agreement is only qualitative. Both spectra show a maximum at around 150 eV and attenuated lower energy harmonics. Note that we expect the experimental pressure inside the gas cell to be at least an order of magnitude lower than the backing pressure.

4.5 Conclusion

Despite the low efficiency for the up-conversion of IR photons to water window frequencies, we have shown that the proper scaling of a HHG laser driver can provide sufficient flux for single shot absorption measurement at the carbon K-edge. By carefully selecting the cell length and helium pressure, we have measured harmonic beams with 3 mrad divergence and 2.9×10^3 ph/shot/1% bandwidth at the carbon K-edge. The associated spectra cover the entire the water window with evidence of oxygen K-edge absorption measurement..

4.6 Acknowledgment

Authors acknowledge financial supports from NSERC, PROMPT, Canada Foundation for Innovation – Major Science Initiatives; and AFOSR (FA9550-16-1-0149).

V.C. is grateful for the support of NSERC BESC D. scholarship and for the financial support from the MITACS Accelerate program. S.B. acknowledge the support from Vanier scholarship and stimulating discussion about phase-matching with Yann Mairesse and Antoine Comby. V.T. acknowledges support from Romanian Financing Authority CNDI-UEFISCDI project RO-CERN ELI-NP 03-ELI/2016 (ProPW)

5 LIGNE DE RAYONNEMENT X AU SEUIL M DES MÉTAUX DE TRANSITION

5.1 Optimisation de la source HHG dans ALLS au seuil M du cobalt

La région du spectre électromagnétique allant de 40 à 90 eV contient les seuils d'absorption M des métaux de transition[3]. La réponse magnétique ultra-rapide de ces matériaux sera cruciale pour les prochaines générations de support de données magnétiques ultra-rapides à haute densité [122]. À la limite de cette région du spectre électromagnétique, on trouve la longueur d'onde de 13,5 nm, utilisée en photolithographie EUV à des fins de miniaturisation en électronique [123], [124]. La même longueur d'onde peut être utilisée pour l'imagerie de nanostructures [125]. Cette dernière technique requiert une source parfaitement cohérente. Une ligne de rayonnement brillante, ultra-rapide, cohérente et abordable dans cette gamme de rayonnement serait donc très utile.

La ligne 100 Hz ALLS peut fournir des impulsions laser à 800 nm, 45 fs avec une énergie allant jusqu'à 50 mJ. Le tableau 2-2 montre que la HHG dans le néon avec cette source comme laser fondamental peut permettre de couvrir la gamme complète de 40 à 90 eV.

En principe, l'entièreté des 50 mJ pourrait être utilisée. Les défis ne seraient que techniques. Il faudrait une très grande longueur focale pour s'assurer de demeurer sous l'intensité de saturation. Il faudrait également augmenter la distance entre la zone de génération et les équipements de diagnostics du faisceau X afin d'éviter de les endommager avec le faisceau fondamental ayant survécu à la conversion. Pour ces raisons pratiques, selon les distances disponibles dans le laboratoire, nous avons limité notre utilisation à 13 mJ de 800 nm, focalisés dans le néon par un miroir de 3 m de longueur focale.

Avec un $f\#$ si grand ($f\# \approx 200$), la pression nécessaire de néon pour permettre l'accord de phase est très basse, soit environ 100 mbar de pression dans la vanne pulsée. L'utilisation d'une vanne pulsée n'est utile, ici, qu'à réduire la consommation de néon. C'est un gaz déjà dispendieux, mais qui peut devenir ridiculement hors de prix selon la situation géopolitique mondiale.

La figure 2-6 montre le spectre complet obtenu. Il a été mesuré avec un réseau à champ plat de 2400 traits/mm. Les harmoniques sont détectées par deux galettes de microcanaux (MCP) en série. Chaque photon X provoque la cascade de photoélectrons grâce à une tension de 1600 V appliquée aux bornes des MCPs. Cette avalanche de photoélectrons est ensuite accélérée sur un écran de phosphore (P20) dont l'intensité de la fluorescence dépend de la quantité d'électrons incidents. Cette fluorescence est imagée par une caméra CMOS à haut taux de rafraîchissement et activement refroidie pour réduire le bruit du capteur.

Dans un premier temps, nous nous intéresserons au flux accessible au seuil M (60 eV) du cobalt, pour une raison qui sera justifiée dans les sections suivantes. Nous optimiserons donc les paramètres de génération afin de maximiser la quantité de photons émis à 60 eV, c.-à-d. la 39^e harmonique de 800 nm. La figure 5-1 montre le profil du faisceau X pour une largeur de bande de 5 eV autour de 60 eV. La taille du faisceau montré correspond à sa taille suite à une propagation de 80 cm, soit une divergence naturelle inférieure à 1,5 mrad. L'image est acquise par un CCD sans fenêtre, rétro-illuminée (PI-MTE™, Princeton Instrument inc.). Ce genre de caméra est très sensible aux photons ayant une longueur d'onde sous ≈ 1100 nm. Elle doit donc être protégée du faisceau fondamental par deux filtres d'aluminium d'environ 200 nm d'épaisseur. Ces filtres sont tendus sur un grillage de nickel épais. C'est ce grillage qui apparaît dans la figure.

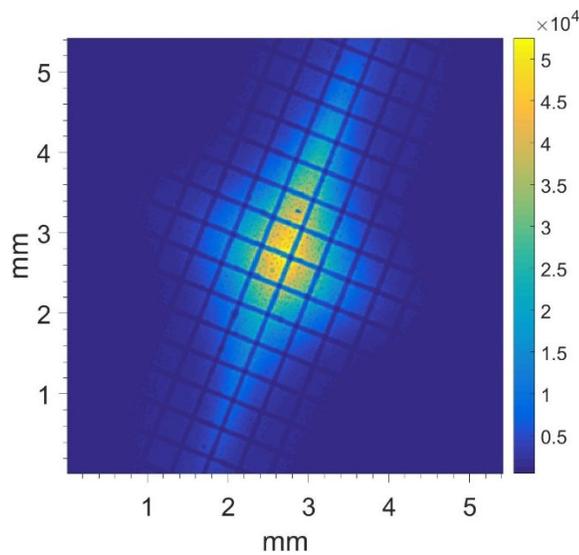


Figure 5-1 Profil du faisceau harmonique à 60 eV après l'équivalent d'une propagation de 80 cm suivant la zone de génération.

L'échelle de couleur représente le nombre de comptes mesuré en 1 seconde d'acquisition (100 tirs).

Le comptage absolu du nombre de photons est fait en prenant en compte les courbes d'absorption des filtres d'aluminium, de la conversion entre le nombre de photoélectrons sur un pixel de la caméra et l'énergie du photon incident et, finalement, de l'efficacité quantique du capteur CCD. À la génération, la figure 5-1 correspond à un flux de $1,9 \times 10^9$ photons/seconde dans la 39^e harmonique seulement. Ceci correspond à une efficacité de conversion de $1,4 \times 10^{-8}$ dans la 39^e harmonique, soit trois ordres de grandeur supérieurs au taux de conversion montré pour la génération dans la fenêtre de l'eau.

5.2 Efficacité de conversion autour de 60eV

Cette efficacité de conversion se compare favorablement aux efficacités des sources semblables dans le monde. *Vodungbo et al. Nat. Comm. 2012* [32] ont utilisé un laser avec des impulsions de 5 mJ, 815 nm opérant à 1 kHz. Leur cible de génération est une cellule de néon à une pression de 35 mbar. Sur leur échantillon magnétique, ils obtiennent une fluence de 5×10^{-5} mJ/cm² pour la 39^e harmonique du laser, avec une tache focale de 30 µm de diamètre. En prenant la transmission des filtres de protection et la réflectivité des miroirs diélectriques en compte, ceci correspond à une efficacité de conversion à la source de l'ordre de 1×10^{-9} . L'efficacité plus faible d'un ordre de grandeur est compensée par le taux de répétition supérieur au nôtre d'un facteur dix.

Truong et al. Sci Report 2018 [40] ont construit une source HHG à l'université de Manchester fortement inspirée de la source dans ALLS, mais opérant à 1 kHz. Ils utilisent des impulsions de 8 mJ et génèrent les harmoniques dans l'argon. Ils obtiennent un flux de $1,1 \times 10^8$ ph/s dans la 27^e harmonique du laser. En tenant encore les optiques X en compte, ceci correspond également à une efficacité de conversion de l'ordre de 8×10^{-9} .

Des travaux de 2010 calculent la limite d'efficacité de conversion dans le néon à 800 nm (300 mbar de néon, cellule de 2 mm) comme étant de l'ordre de 10^{-7} par harmonique [126]. Ces travaux prennent en compte les conditions d'accord de phase, la réponse d'un atome unique et la section efficace d'absorption du milieu générateur. Ils démontrent expérimentalement cette efficacité en utilisant un laser de 800 nm avec des impulsions de 2 mJ, 35 fs dans un jet de néon à 300mbar.

Notre propre efficacité de conversion est donc inférieure à cette limite calculée et mesurée dans un jet de gaz avec une faible énergie par impulsion. Néanmoins, elle demeure supérieure à celle des autres sources concrètement utilisées comme ligne de lumière. Malgré toutes les discussions sur l'invariance de l'efficacité de conversion en fonction de l'énergie des impulsions dans un gaz donné [90], [91], notre source à 100Hz présente encore une efficacité par impulsion supérieure aux sources à 1 kHz.

Finalement, des travaux de 1998[101] présentent un taux de conversion de 10^{-6} à 10^{-5} à la 29^e harmonique d'un laser de 1 kHz à 800 nm. La génération des harmoniques s'y fait dans un capillaire de 150 µm rempli d'argon avec une énergie < 1 mJ par impulsion. Il s'agit de plusieurs ordres de grandeurs supérieurs à ce qui a été obtenu par *Truong et al. Sci Report 2018* [40] dans le même gaz et à la même longueur d'onde fondamentale. Les auteurs attribuent simplement cette valeur au bon accord de phase dans leur long milieu de génération. Les travaux subséquents du même groupe de recherche échouent à bien caractériser l'évolution de cette impressionnante efficacité de conversion et l'écart avec les autres valeurs démontrées. Pour ces raisons, nous éviterons les comparaisons avec leur résultat.

5.3 Désaimantation ultra-rapide

La désaimantation ultra-rapide a été découverte en 1996 par Éric Beaurepaire [127]. Avant 1996, on pensait qu'il existait une limite fondamentale au temps de réorganisation d'une population d'électrons polarisés en spins. Cette limite est au moins plus élevée que 2,3 ps [128], [129]. Or, *Beaurepaire et al. PRL 1996*[127] montre que l'ordre magnétique dans une couche de nickel de 22 nm peut être désorganisé à l'intérieur de quelques dizaines de femtosecondes, au moins deux ordres de grandeur plus rapidement que la limite supposée.

Cette désorganisation survient après l'illumination du matériau par un faisceau laser femtoseconde d'une intensité de quelques mJ/cm^2 . Ce faisceau sera appelé le faisceau « pompe » dans le reste de cette thèse.

Le faisceau « sonde » est un autre faisceau laser femtoseconde qui utilise une méthode magnéto-optique pour sonder l'aimantation du matériau.

Une courbe de désaimantation correspond à plusieurs mesures de cette aimantation transitoire en fonction du délai entre les impulsions pompes et sondes.

La figure 5-2 montre la dynamique de désaimantation observée par Beaurepaire en 1996. Dans son cas, la pompe était un faisceau de 620 nm, 60fs avec une intensité de $7 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. Le même laser est utilisé en MOKE pour sonder l'aimantation en surface de l'échantillon. Le MOKE (« Magneto Optic Kerr Effect ») sera décrit plus bas.

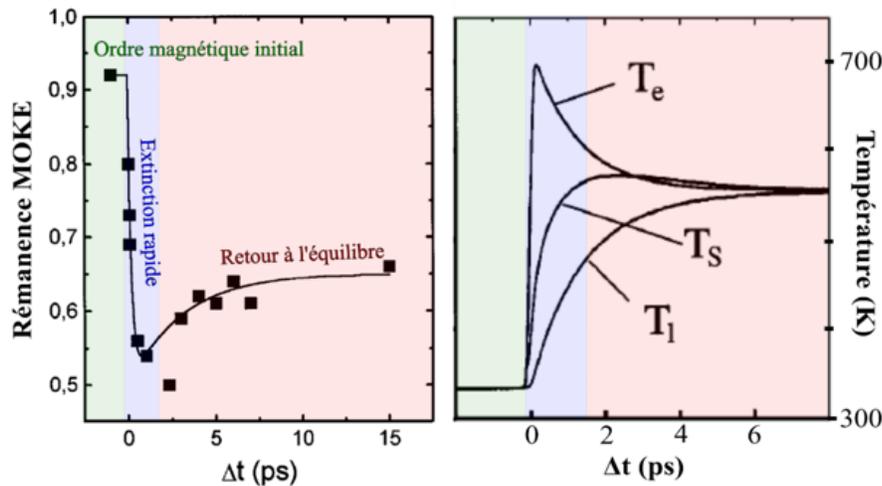


Figure 5-2 Désaimantation ultra-rapide du Nickel.

Le cadre de gauche représente la rémanence magnétique des courbes d'hystérésis complètes mesurées pour chaque délai entre la pompe et la sonde. Le cadre de droite représente les températures transitoires des électrons, des spins et des phonons du matériau. Modifiée à partir d'une figure de *Beaurepaire et al. PRL 1996*[127].

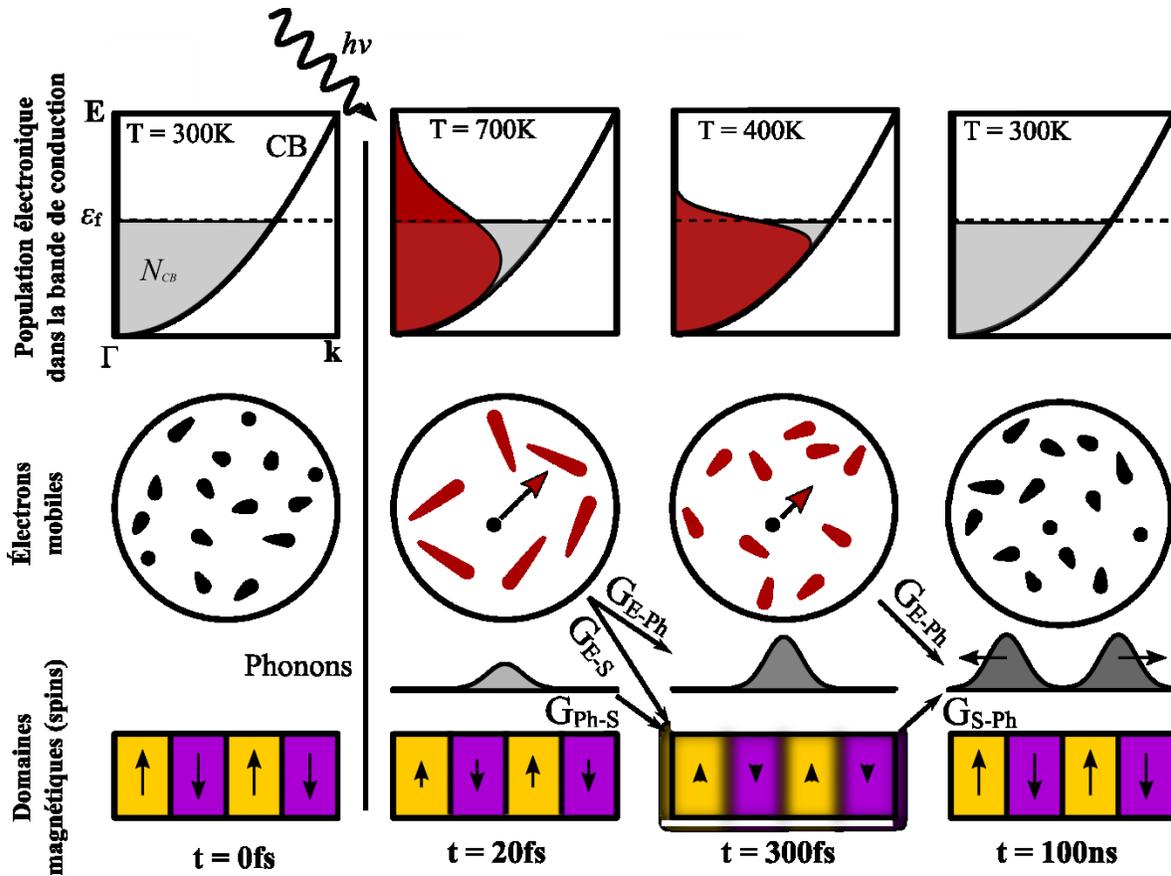


Figure 5-3 Schématisation de la désaimantation ultra-rapide

La zone rouge de la première ligne montre la distribution de Fermi-Dirac de la densité d'états occupés par les électrons chauffés par l'impulsion laser à $t = 0$ fs. La longueur de la flèche et de la queue des particules dans la seconde ligne représente l'énergie déposée dans le bain électronique. La troisième ligne représente les domaines magnétiques alternés et la force de leur aimantation. La ligne intermédiaire entre les électrons et les domaines magnétique illustre le transfert d'énergie vers les phonons, puis la dissipation de cette énergie qui permet au système de retourner à sa valeur initiale.

La forme de la courbe présentée à la figure 5-2 est typique de ce qui a été mesuré depuis dans une multitude d'échantillons contenant des métaux de transition [130]–[139]. Le mécanisme sous-jacent est illustré à la figure 5-3. La première étape est une excitation cohérente des électrons du métal [136], [140]–[144]. Cette excitation augmente la température du bain électronique (courbe T_e , figure 5-2). Le bain d'électrons est couplé au bain de spins par une constante de couplage G_{es} . À travers ce couplage, la température de la population de spin augmente (courbe T_s , figure 5-2), augmentant son désordre, et donc réduisant l'aimantation macroscopique du matériau (zone bleue, figure 5-2). Comme le bain d'électrons n'a plus de source d'énergie, la température du bain de spins atteint une valeur maximale, puis entame une décroissance. Cette décroissance est due au transfert d'énergie vers les phonons (courbe T_i , figure 5-2) qui la dissipe ensuite dans le reste du matériau, puis dans le support de l'échantillon, etc.[145]

Alors que la température du bain de spins diminue, une influence externe (un champ magnétique externe, ou, le cas échéant, l'interaction magnétique longue portée des domaines magnétiques hors de la zone excitée par la pompe) permet au matériau de recouvrer lentement son aimantation (zone rouge, figure 5-2). Le retour du matériau vers son état initial (zone verte, figure 5-2) peut prendre plusieurs dizaines de nanosecondes, selon l'énergie totale déposée par le champ laser, la nature de l'échantillon, de son substrat, etc.

Pour étudier ce couplage entre les trois bains de chaleurs, électrons, spins et phonons, *Beaurepaire et al. PRL 1996* [127] ont écrit les équations couplées suivantes.

$$C_e \frac{d}{dt} T_e = -G_{el}(T_e - T_l) - G_{es}(T_e - T_s) + P(t) \quad (5-1)$$

$$C_l \frac{d}{dt} T_l = -G_{el}(T_l - T_e) - G_{sl}(T_l - T_s) \quad (5-2)$$

$$C_s \frac{d}{dt} T_s = -G_{es}(T_s - T_e) - G_{sl}(T_s - T_l) \quad (5-3)$$

$P(t) = \sigma_0 E_0^2 \cos^2(\omega_0 t) \exp(-2t^2/T^2)$ est le terme source, c.-à-d. l'impulsion laser gaussienne dans un métal de conductivité statique σ_0 . Les constantes G_{el} , G_{es} et G_{sl} sont les constantes de couplage entre les bains de chaleur. $C_{e,s,l}$ sont les chaleurs spécifiques de chaque bain.

Faisant l'hypothèse que l'interaction électron-spin est rendue possible par les phonons à travers des collisions de type Elliott-Yafet, *Koopmans et al. Nat. Mat. 2010*[143] dérivent l'équation suivante pour faire un lien direct entre les équations couplées ci-dessus et l'aimantation macroscopique, m .

$$\frac{d}{dt} m = Rm \frac{T_l}{T_C} \left[1 - m \coth \left(\frac{mT_C}{T_e} \right) \right] \quad (5-4)$$

T_C est la température de Curie du matériau magnétique, c.-à-d. la température à partir de laquelle l'ordre magnétique est naturellement perdu.

5.4 Phénomènes magnéto-optiques comme sonde de la désaimantation ultra-rapide

Le « temps de réponse de l'appareil de mesure », c.-à-d. la résolution temporelle de la mesure, est la durée de la corrélation croisée entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde [146]. Pour obtenir les courbes de désaimantation avec une résolution de quelques dizaines de femtosecondes, il faut une pompe et une sonde tout aussi courtes. Le besoin d'une sonde aussi courte est ce qui justifie le besoin d'une méthode optique pour sonder l'aimantation.

Dans le visible, les effets principaux exploités sont l'effet MOKE et l'effet Faraday. L'effet MOKE et l'effet Faraday prennent leur origine dans le dichroïsme circulaire combiné à la biréfringence du matériau

causé par sa propre aimantation ou induit par un champ magnétique externe [147]. L'effet MOKE apparaît en réflexion. L'effet Faraday apparaît en transmission.

Ces effets lient l'aimantation d'un matériau au changement d'ellipticité et à la rotation de la polarisation d'un faisceau incident. L'ellipticité du faisceau incident est changée par le dichroïsme circulaire du matériau affectant différemment la réflectivité (MOKE) ou la transmission (Faraday) de ses composantes circulaires droites et circulaires gauches.

L'orientation de l'axe principal de polarisation du faisceau incident subira une rotation en fonction de la biréfringence acquise par le matériau sous l'influence du champ magnétique. Cette biréfringence retarde une des composantes circulaires de la polarisation incidente par rapport à l'autre composante orthogonale. L'amplitude de la rotation de la polarisation et du changement de l'ellipticité dépend de l'orientation relative entre le plan d'incidence, la polarisation incidente et la direction de l'aimantation dans le matériau (« Polar-MOKE, Longitudinal-MOKE, Transverse-MOKE »)[148], [149].

Une courbe de désaimantation est acquise dans des expériences de type pompe-sonde. Une première impulsion femtoseconde vient perturber l'aimantation et enclenche la réponse magnétique du matériau tel que montré dans le cadre gauche de la figure 5-2. Une seconde impulsion femtoseconde vient sonder l'aimantation par effet MOKE ou Faraday après un certain délai. La courbe complète est obtenue en faisant varier le délai entre les impulsions sonde et pompe.

L'utilisation du visible comme impulsion sonde pose deux problèmes principaux :

1. La lumière visible ne peut être utilisée que pour sonder la réponse magnétique d'un échantillon uniformément magnétisé.

Les matériaux ferro- ou ferrimagnétiques présentent naturellement des domaines magnétiques, c.-à-d. des grains où l'énergie d'échange entre les électrons avoisinant force l'orientation de leurs spins et moments angulaires orbitaux à être parallèles. Le matériau organise ses grains de façon à minimiser son champ magnétique externe. Ces grains forment alors des domaines d'aimantation, avec une cassure nette dans l'orientation de l'aimantation entre deux domaines adjacents, c.-à-d. une barrière de domaine. Un tel changement abrupt requiert de l'énergie. La taille et la forme de domaines magnétiques résulte de l'interaction entre l'énergie d'échange à courte portée, la minimisation de l'énergie dans les barrières de domaines et la minimisation de l'énergie dans le champ magnétostatique émis par le matériau [150].

Dans les disques durs modernes, chaque domaine correspond à un bit de donnée, c.-à-d. un « 1 » ou un « 0 », selon la direction de l'orientation de l'aimantation dans le domaine. La taille d'un tel domaine est environ 30 nm ($1 \text{ TB}/\text{po}^2$)[151]. Cette taille est trop petite pour être sondée par de la lumière visible à cause de sa limite de diffraction trop élevée.

2. La lumière visible influence elle-même le phénomène qu'elle essaie de sonder.

Bigot *et al.* Nat. Phys. 2009[152] ont démontré qu'une seule impulsion laser peut servir de pompe et de sonde à l'intérieur de sa propre durée d'impulsion. Ils exposent des phénomènes optiques et magnétiques cohérents affectant le matériau durant la présence de l'impulsion laser. Ces effets n'ont pas de seuil d'énergie et sont présents pour des intensités bien en deçà de 1 mJ/cm^2 .

Ceci ajoute une incertitude sur la validité des effets MOKE et Faraday comme sondes de l'aimantation dans les premières 100 fs suivant la désaimantation par la pompe. En quelle proportion la sonde est-elle affectée par ces effets cohérents, versus l'état actuel de l'aimantation suivant l'impulsion pompe? Cette question ne fait toujours pas l'objet d'un consensus dans la littérature [152]–[155].

La solution est l'utilisation de rayons X comme sonde de l'aimantation. Leur courte longueur d'onde permet l'observation de domaines individuels[30]–[33] et leur haute énergie de photon permet l'identification des comportements magnétiques spécifiques de certains éléments, c.-à-d. des phénomènes résonants. Au chapitre 1, nous avons présentés les options disponibles pour la génération d'impulsions X femtosecondes.

Les quatre méthodes magnéto-optiques principales pour sonder l'aimantation en utilisant des rayons X sont le dichroïsme circulaire magnétique X (XMCD), l'effet MOKE transverse (T-MOKE), l'effet Faraday et la diffraction résonante (XRMS).

Tableau 5-1 Description des sondes X de l'aimantation

XMCD	<p>Le dichroïsme circulaire correspond à la différence d'absorption entre un photon polarisé circulairement droit et gauche lorsqu'ils interagissent avec un matériau magnétique. Brièvement, le coefficient d'absorption d'un photon polarisé circulairement sera différent selon l'orientation parallèle ou antiparallèle de son moment angulaire avec le moment magnétique du matériau.</p> <p>Le phénomène est apparent lorsqu'on calcule les sections efficaces d'absorption en considérant la conservation du moment angulaire dans les règles de sélections qui relient deux niveaux électroniques dont au moins l'un des deux est magnétique. La technique requiert une énergie suffisante pour sonder le couplage entre des niveaux de cœurs et les orbitales présentant une forte aimantation (L ou $S \neq 0$). [156]</p>
------	--

T-MOKE	<p>L'effet MOKE transverse (T-MOKE) requiert une aimantation parallèle à la surface du matériau, mais perpendiculaire au plan d'incidence. La polarisation initiale doit être parallèle au plan d'incidence.</p> <p>Dans une telle configuration, la rotation de la polarisation sera nulle, mais une des composantes circulaires de la polarisation du faisceau sera atténuée. Cette atténuation se traduit par une perte d'intensité globale du faisceau incident, facilement mesurable sans polarimètre X [149], [157], [158].</p> <p>En mesurant l'asymétrie de la réflectivité selon la direction de l'aimantation $((I_{M+} - I_{M-})/(I_{M+} + I_{M-}))$, on peut retrouver l'aimantation du matériau [159].</p>
Faraday	<p>Les optiques sondant la polarisation et l'ellipticité de rayons X sont dispendieuses et peu efficaces. Rarement utilisés en réflectivité, certains exemples existent de leur utilisation en transmission [160]. Comme les rayons X sont facilement absorbés, les échantillons doivent être en couche mince.</p>
XRMS	<p>La diffraction résonante (XRMS) ne fonctionne que pour des matériaux présentant des domaines magnétiques, idéalement avec une aimantation perpendiculaire à la surface. Par dichroïsme circulaire, un faisceau incident interagira différemment avec chaque domaine du matériau, suivant l'orientation de son aimantation. Un tel matériau agira alors comme un réseau de diffraction. La forme du réseau, c.-à-d. de la distribution des domaines magnétiques, peut être reconstruite en regardant la transformée de Fourier de l'image de sa diffraction en champ lointain [29]–[32].</p>

Dans ce chapitre, c'est cette 4^e technique qui nous intéresse. Quelques considérations concernant la XRMS [29], [32], [33], [151], [161]–[165]:

1. Les domaines intéressants pour les supports de données magnétiques sont typiquement de l'ordre de quelques dizaines, voire quelques centaines, de nanomètres. L'utilisation de rayons X est nécessaire pour pouvoir observer la diffraction qu'ils causent.
2. Le dichroïsme circulaire est faible dans cette gamme de longueurs d'onde en l'absence de résonance avec un niveau électronique magnétique. Pour augmenter l'efficacité de la technique, il faut utiliser des rayons X résonants avec un seuil d'absorption du matériau présentant un bon coefficient magnéto-optique.
3. La technique fonctionne avec une polarisation linéaire aussi bien que circulaire, puisqu'une polarisation circulaire correspond à une combinaison linéaire de deux composantes circulaires d'hélicités opposées. Chaque composante voit la même figure de diffraction, mais décalée d'un domaine.
4. Mathématiquement, l'amplitude de diffraction prend la forme :

$$f_N = (\vec{e}'_f \cdot \vec{e}_0) f_N^C + i(\vec{e}'_f \times \vec{e}_0) \cdot \vec{m} f_N^{m1} + (\vec{e}'_f \cdot \vec{m})(\vec{e}_0 \cdot \vec{m}) f_N^{m2} \quad (5-5)$$

Avec l'intensité de diffraction en fonction du transfert de vecteur d'onde, q , donnée par :

$$I(q) = |\sum_N f_N \exp iqr_N|^2 \quad (5-6)$$

où la sommation se fait sur tous les nœuds du réseau illuminé. e'_f et e_0 représentent les vecteurs de polarisations diffractées et incidentes respectivement. m est l'aimantation atomique. f_N^G est le facteur de diffusion des charges. f_N^{m1} et f_N^{m2} sont des facteurs représentant la force de l'interaction magnétique et dépendent des éléments de matrices de transition pour les niveaux électroniques impliqués dans l'excitation résonnante.

Le premier terme de l'équation (5-5) dépend de l'hétérogénéité des charges. Il sera pratiquement nul dans la plupart des interactions magnéto-optiques sondées. La dominance du second ou du troisième terme dépendra de l'orientation relative entre la polarisation du faisceau incident et la direction de l'aimantation des domaines. Pour une polarisation incidente linéaire et une aimantation parallèle à la normale du matériau, le troisième terme sera nul. Le deuxième terme nous dit aussi que la diffraction sera maximale si la polarisation du faisceau diffracté est perpendiculaire à celle du faisceau incident [33].

5. Dans un même domaine, f_N sera identique pour tous les nœuds du réseau. $I(q)$ sera donc proportionnelle à $|S(q)|^2$ ou $S(q)$ est le facteur de forme associé à la transformée de Fourier de l'aimantation macroscopique du matériau (orientation des domaines, taille des domaines, etc).
 - a. La distribution azimutale des pics de diffraction (anneaux concentriques vs pics discrets) donne de l'information sur la distribution de l'orientation des domaines (domaines aléatoirement orientés vs parallèles).
 - b. La distribution radiale des pics de diffraction (transfert de vecteur d'onde, q) donne de l'information sur la distribution de la taille des domaines.
 - c. L'apparition d'ordres pairs de diffraction renseigne sur la force relative de l'aimantation dans les domaines d'orientation opposée.
 - d. L'efficacité de diffraction est proportionnelle à la seconde puissance de l'amplitude de l'aimantation et à la transmission de l'échantillon[164] ; $\sum I(q) \propto TM^2$

L'efficacité de diffraction, même en résonance, est très faible. La caractérisation sur la ligne SEXTANT du synchrotron SOLEIL de la diffraction au seuil N du terbium pour un alliage $Co_{0.9}Tb_{0.1}$ de 50 nm d'épaisseur donne une efficacité de diffraction au pic de la résonance, maximum à maximum, de $2,3 \times 10^{-4}$. Cette caractérisation est présentée à la figure 5-4. À cette efficacité, on doit rajouter environ 1% de transmission de nos rayons X à travers le 50 nm de CoTb et la membrane de Si_3N_4 qui supporte le film magnétique. L'efficacité totale de diffraction est de l'ordre de 10^{-6} .

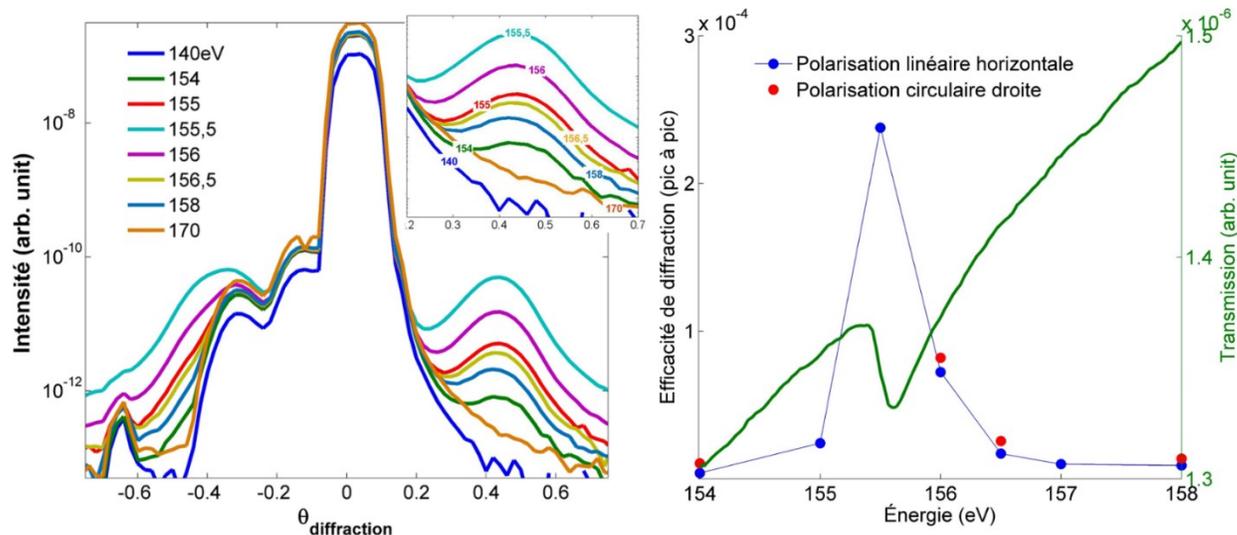


Figure 5-4 Caractérisation de la diffraction au synchrotron SOLEIL, ligne SEXTANT.

(a) Intensité de diffraction mesurée avec une photodiode avec une grande plage dynamique. L'énergie des rayons X était contrôlée par le monochromateur X de la ligne SEXTANT. (b) Efficacité de diffraction (pic central à pic de diffraction) pour chaque énergie et deux états de polarisation. La courbe de transmission de l'échantillon est présentée en vert. On y voit le seuil d'absorption du terbium. La largeur de bande du seuil d'absorption correspond bien à celle de la diffraction, confirmant l'aspect résonant du phénomène de diffraction.

5.5 Désaimantation ultra-rapide au seuil M du cobalt par diffraction magnétique résonante

Basée sur les éléments amenés à la section précédente, la XRMS a été choisie pour trois raisons.

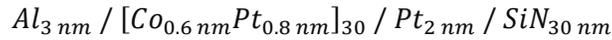
Premièrement, c'est la technique qui donne le plus d'information sur le matériau étudié puisqu'elle est sensible aux interactions intra- et interdomaines magnétiques. Ces interactions ne peuvent être négligées pour connaître la vraie réponse magnétique ultra-rapide de matériaux avec un vrai potentiel technologique.

Deuxièmement, elle produit les résultats qui sont les plus simples à interpréter. Le XMCD et le T-MOKE requièrent de connaître la réponse spectrale complète près d'une résonance afin de retirer l'information sur les spins et moments orbitaux des électrons à travers des règles d'additions compliquées (« sum rules ») [166]–[168]. En comparaison, l'intensité de diffraction est directement proportionnelle à la seconde puissance de l'aimantation dans les domaines [32], [164]. Le transfert de vecteur d'onde est également facilement relié à la taille de domaines.

Troisièmement, cette richesse d'information a un coût. La XRMS est une technique peu efficace en termes de flux de photons. La XMCD et T-MOKE sont des mesures relatives. Il « suffit » de mesurer la différence de transmission ou de réflectivité des rayons X dans deux cas d'orientation relative entre la polarisation incidente et l'aimantation du matériau (voir tableau 5-1). En comparaison, la XRMS est une mesure absolue. Il faut être capable de détecter les rayons diffractés avec une efficacité de 10^{-4} , par-dessus la

déjà très basse transmission. **Alors que cette faible efficacité est généralement un argument contre la XRMS, dans notre cas, elle est une bonne preuve de concept pour montrer la brillance de notre source X par HHG.**

Ici, nous étudions la XRMS d'un matériau composé d'une multicouche de cobalt et platine reposant sur une surface de platine et couvert d'une mince couche d'aluminium. La formule complète est :



Trente couches de $Co_{0.6}Pt_{0.8}$ s'alternent entre la couche de 3 nm d'aluminium et de 2 nm de platine.

L'échantillon subit un processus de désaimantation précis pour forcer l'alignement parallèle de ses domaines magnétiques. La méthode consiste à y appliquer un champ magnétique oscillant, lentement atténué, parallèlement à sa surface[30], [169].

Les domaines ont été imagés en microscopie de force magnétique (« MFM »), une variante de la microscopie à force atomique (« AFM ») qui utilise une pointe sensible au champ magnétique provenant de la surface étudiée [170]. La figure 5-5 montre le résultat MFM provenant de l'alliage de CoTb qui a été caractérisé au synchrotron SOLEIL (figure 5-4) et provenant de l'échantillon de $[Co_{0.6}Pt_{0.8}]_{30}$ décrit ci-haut.

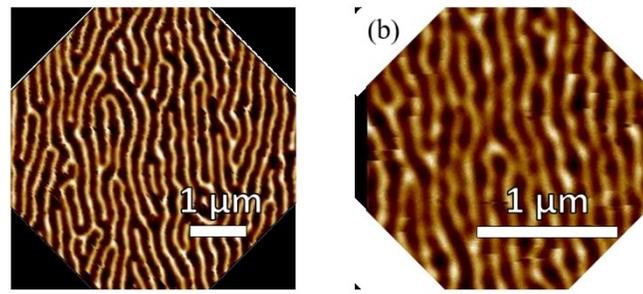


Figure 5-5 Image MFM de (a) l'alliage $Co_{0.9}Tb_{0.1}$ et (b) multicouche $[Co_{0.6}Pt_{0.8}]_{30}$. Le trait blanc représente une distance de 1 μm .

Les images MFM des domaines magnétiques présentées à la figure 5-5 montrent des largeurs de domaines d'environ ≈ 125 nm pour l'alliage CoTb (périodicité de ≈ 250 nm) et ≈ 80 nm pour les multicouches CoPt (périodicité de ≈ 160 nm).¹⁰

¹⁰ La périodicité des domaines de l'alliage CoTb ne correspond pas à l'angle de diffraction maximale mesurée au synchrotron SOLEIL. La raison en est incertaine, d'autant plus qu'une comparaison entre la diffraction mesurée en polarisation circulaire droite (non montrée) et linéaire horizontale montre un angle de diffraction différent de $0,1^\circ$, alors qu'ils devraient être strictement identiques. Nous verrons au chapitre 7 que la diffraction résonante mesurée au seuil N du terbium par une source HHG reproduit bien la taille des domaines mesurée en MFM. (Suite à la page suivante)

La figure 5-6 montre le montage expérimental pour la mesure de la diffraction au seuil M du cobalt (60 eV). Elle illustre la génération d'harmoniques tel que décrit au début du chapitre. Suite à la génération du faisceau harmonique, un premier filtre d'aluminium atténue grandement l'énergie dans le faisceau fondamental à 800 nm pour l'empêcher d'atteindre l'échantillon.

Un miroir concave multicouche diélectrique, spécialement conçu pour avoir une haute réflectivité dans les rayons X, image le point de génération des harmoniques 1:1 sur l'échantillon. La réflectivité du miroir multicouche est montrée à la figure 5-7. Elle est maximale à 36% et a une largeur à mi-hauteur de 5 eV autour de 60 eV.

Seulement la 39^e harmonique de notre faisceau fondamental est significativement réfléchi par le miroir. Suivant l'échantillon, un bloqueur de faisceau empêche l'ordre 0 de diffraction d'atteindre, et d'éblouir, la caméra X. Un dernier filtre d'aluminium protège la caméra de la lumière diffuse provenant du faisceau pompe.

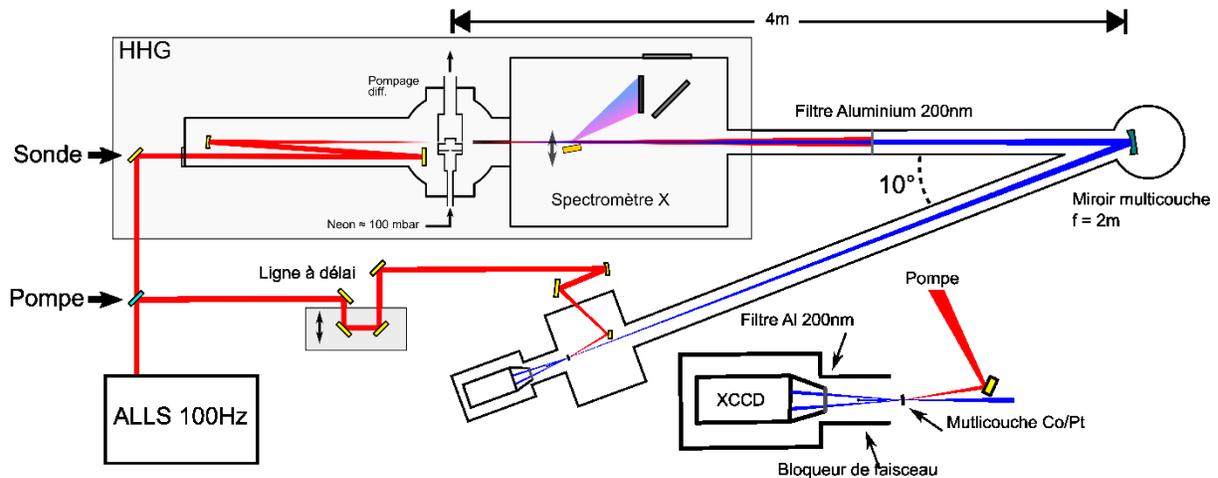


Figure 5-6 Montage expérimental pour l'expérience de XRMS.

Séquentiellement, le parcours de la sonde consiste en la génération des harmoniques, leur caractérisation avec le spectromètre X, la séparation du faisceau fondamental, puis la réflexion et la focalisation du faisceau X sur l'échantillon. La longueur du bras du faisceau pompe est ajustée pour donner aux impulsions pompes la même longueur de parcours optique avant l'échantillon. Les ordres +1 et -1 sont mesurés par une CCD PI-MTE™.

Également, la diffraction mesurée en synchrotron est bien un phénomène résonant avec le seuil d'absorption du terbium, comme le montre la courbe de transmission en vert.

La forme des pics de diffraction provient donc clairement de la distribution spatiale des domaines magnétiques. L'échantillon contenait plusieurs membranes disponibles pour étude. Il est possible que la membrane sondée en synchrotron ait contenu des domaines quatre fois plus larges que celle sondée en MFM et HHG. Les mesures en synchrotron, MFM et HHG ont été séparées de quelques années. Peut-être les domaines se sont-ils réorganisés entre-temps, mais ce serait très improbable.

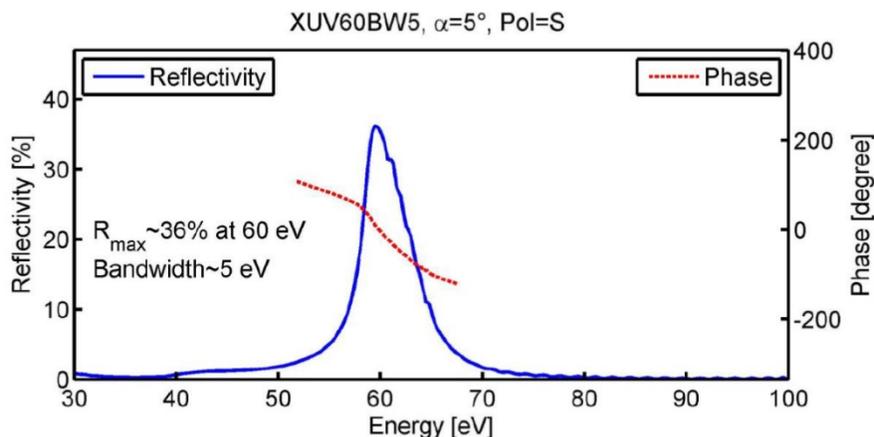


Figure 5-7 Courbe de réflectivité et de la dispersion du miroir multicouche utilisé. Gracieuseté de Ultrafast Innovation GmbH.

Les images de diffraction sont acquises par une caméra PI-MTE™ de Princeton Instrument inc. Il s'agit d'une caméra s'opérant complètement sous haut vide et dont le détecteur, composé de 2048 x 2048 pixels de $13,5 \times 13,5 \mu\text{m}^2$, est complètement exposé. Le détecteur est activement refroidi jusqu'à -40°C par un élément Peltier quadruple, lui-même refroidi par un mélange d'eau et de glycol maintenu à 10°C . Ce refroidissement est nécessaire pour réduire le courant sombre de la caméra CCD et le bruit de Poisson associé. Les longues acquisitions, nécessaires pour l'observation de la XRMS, seraient autrement impossibles.

Les paramètres de contrôle de la CCD sont fixés afin de réduire au maximum le bruit de détection et de lecture de la caméra (gain du préampli, fréquence du convertisseur analogue à digital, regroupement des pixels, etc.). La figure 5-8 montre une image de diffraction provenant des multicouches $[\text{CoPt}]_{30}$ acquise après trois minutes d'acquisition en utilisant un regroupement de 6×6 pixels.

Outre les deux pics de diffraction clairement visibles, on peut voir les ombres du bloqueur de faisceau, du substrat de l'échantillon et du support du filtre d'aluminium. On peut aussi voir la diffraction de charge causée par les arrêtes de la membrane. La zone brillante entre le substrat et le support de filtre correspond à de la lumière diffuse parasite.

Les images de diffraction de la figure 5-8 sont présentées suite au traitement d'image utilisé pour augmenter le rapport signal sur bruit, retirer le bruit de fond, et assurer une normalisation uniforme pour toutes les images de diffraction acquises. Les courbes de désaimantation sont acquises par l'acquisition consécutive de dizaines, sinon centaines, de ces images. Le traitement complet des images ainsi que la méthodologie d'acquisition d'une courbe complète de désaimantation sont présentés à l'annexe i — traitement des images de xrms.

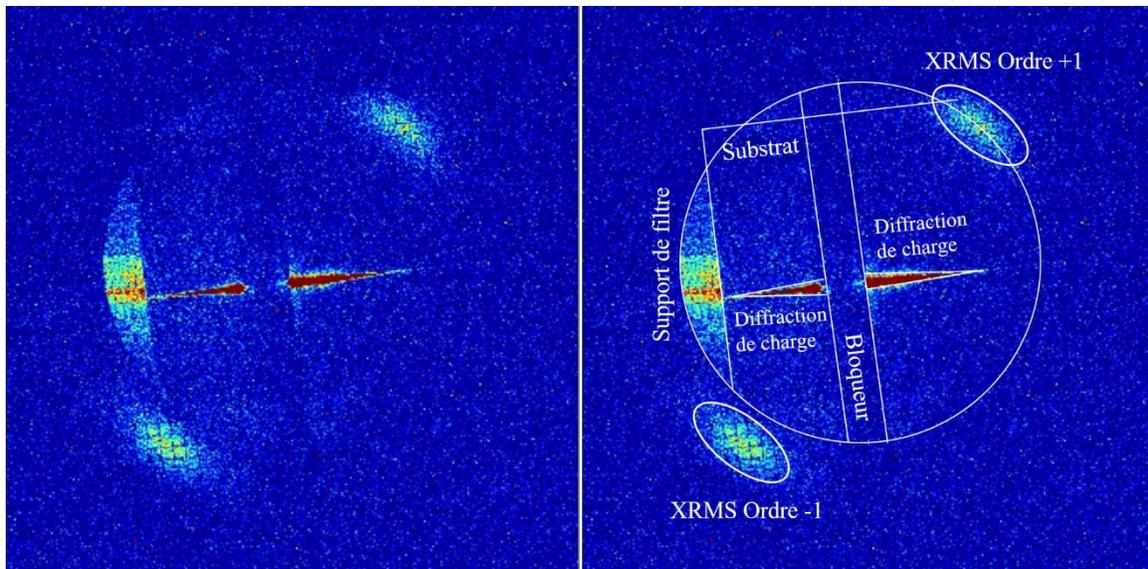


Figure 5-8 Images XRMS post-traitement à $1/6^{\text{e}}$ de la résolution complète de la CCD.

Pour un temps d'acquisition de 3 minutes. Le cadre de droite identifie les éléments clés de l'image.

En connaissant la taille des pixels du CCD et la distance entre le détecteur et l'échantillon, nous pouvons calculer la taille des domaines par une simple conversion du transfert de vecteur d'onde maximal. Nous obtenons des domaines d'une largeur moyenne de (88 ± 10) nm, soit bien en accord avec l'image MFM acquise précédemment. La grande incertitude vient principalement de la mesure de la distance précise entre l'échantillon et le détecteur de la CCD. Considérant la complexité, l'espace restreint, la fragilité et le coût de l'équipement, une mesure précise sans contact est difficile. Une différence de 5 mm cause une incertitude de 10 nm sur la taille des domaines.

Les courbes de la figure 5-9 reproduisent bien le comportement typique décrit et observé par *Beaurepaire et al. PRL 1996* [127]. Chaque point de donnée, c.-à-d. chaque triangle, représente l'intensité de diffraction de l'échantillon moyennée sur trois images distinctes. Elles sont normalisées pour que l'aimantation avant pompe ($t < 0$ fs) soit égale à 1 (voir annexe I).

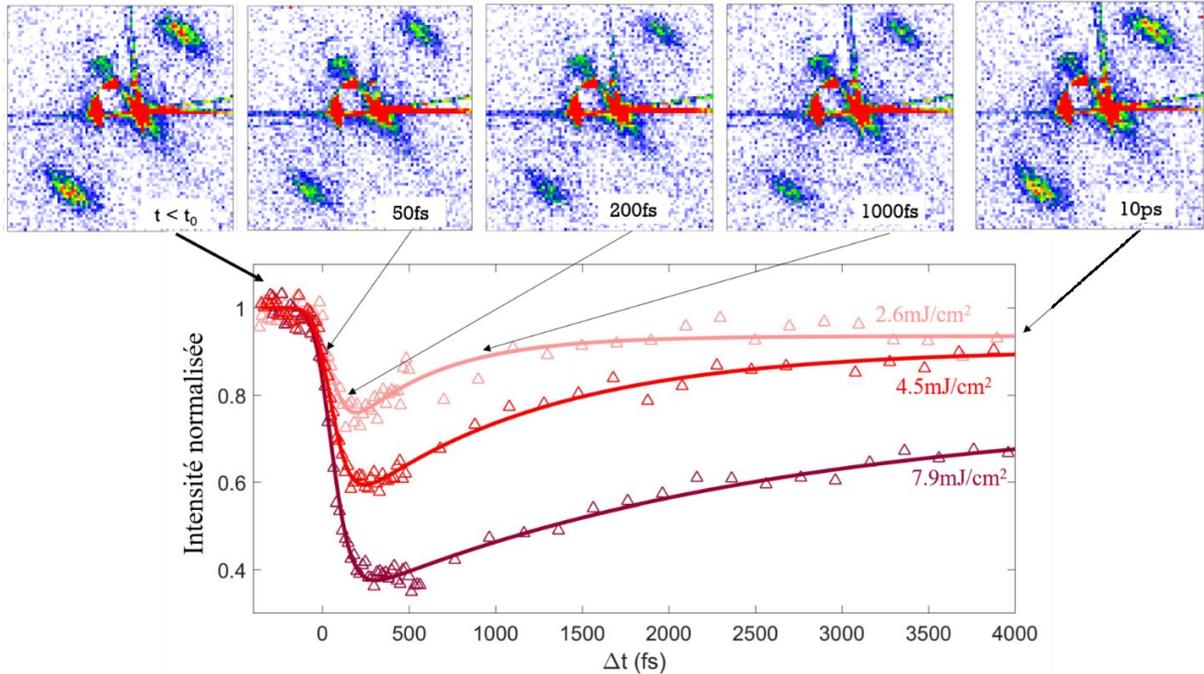


Figure 5-9 Exemples d'images de XRMS qui composent les courbes de désaimantation

Les courbes de désaimantation montrent l'intensité de diffraction en fonction du délai entre la pompe et la sonde pour trois fluences de pompe différentes (fluences directes, juste avant la surface de l'échantillon).

Les données expérimentales sont reproduites par un modèle empirique dérivé d'équations de taux (équation (5-7)) [32], [134], [135], [171], [172]. B et C sont des paramètres reliés respectivement à la désaimantation maximale, $\left(1 - \frac{M}{M_0}\right)_{min}$, et à la valeur pseudo-asymptotique de la désaimantation après plusieurs picosecondes $\left(1 - \frac{M}{M_0}\right)_{t>10ps}$. Les paramètres B et C sont graphiquement représentés à la figure 7-2 (voir page 95).

Ce modèle est assez typique et correspond à la convolution par une fonction gaussienne ($G(t)$) d'une fonction biexponentielle. La première exponentielle correspond à la décroissance rapide de l'aimantation et la seconde à son recouvrement lent. Les temps caractéristiques de chaque exponentielle seront appelés temps de désaimantation, τ_1 , et temps de recouvrement, τ_2 . La figure 5-10 montre le comportement de ces temps caractéristique en fonction de la fluence incidente. Le temps de désaimantation ne semble pas dépendre significativement de la fluence incidente, alors que le temps de recouvrement semble linéairement proportionnel à celle-ci. Ces observations sont conformes avec ce qui a été reporté dans la littérature [31], [32], [173], [174], bien que l'observation ne fasse pas l'unanimité [143], [175], [176].

Le temps de désaimantation, τ_1 , est le temps caractéristique du mécanisme microscopique qui permet de coupler les bains électroniques et de spins. L'invariabilité du temps caractéristique nous dit que la nature du mécanisme ne dépend pas de l'amplitude de la perturbation, au moins pour la plage de fluences étudiée.

Le temps de recouvrement, τ_2 , représente le taux de dissipation de l'énergie accumulée par la population de spin vers le bain de phonons¹¹. Une valeur basse représente un transfert efficace de cette énergie. Une valeur qui augmente avec la fluence incidente indique que plus il y a d'énergie injectée dans le système de spin, moins ce dernier est efficace à la transférer. L'hypothèse est que le temps de thermalisation entre les bains de spins et de phonons sera plus long pour un système de spin amené loin de l'équilibre.

$$\frac{M(t)}{M_0} = G(t) \otimes \left[1 - H(t) \left[B \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_1}\right) \right) \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) + C \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) \right) \right] \right] \propto \sqrt{I_{diff}} \quad (5-7)$$

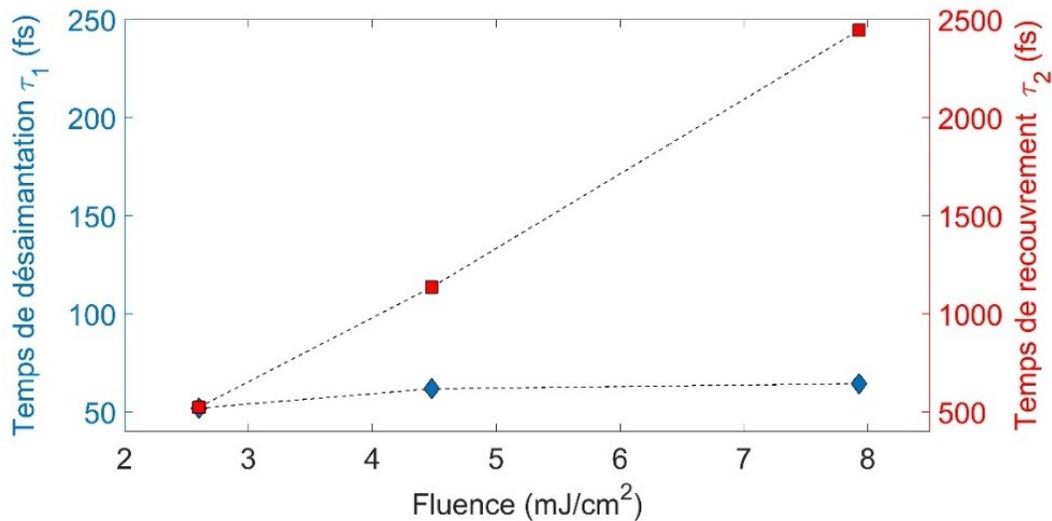


Figure 5-10 Temps caractéristiques de désaimantation (losanges bleus, gauche) et temps de recouvrement (carrés rouges, droite) des courbes de désaimantation mesurées à la figure 5-10 et modélisées par l'équation 5-7 en fonction de la fluence directe.

Les échelles des deux paramètres sont montrées avec les mêmes valeurs relatives pour comparer les dépendances de chaque temps caractéristique avec la fluence directe.

Finalement, nous pouvons aussi nous attarder à l'évolution de la forme des pics de diffractions en fonction du délai entre la sonde et la pompe. Un changement de la taille ou de la position des pics nous renseignerait sur tout changement transitoire dans la structure des domaines magnétiques. À l'intérieur de la plage dynamique offerte par notre ratio signal/bruit, nous ne pouvons détecter aucun changement dans la position du maximum, ou dans la distribution radiale ou azimutale du transfert de vecteur d'onde. C'est donc que la

¹¹ Qui le dissipe ensuite, beaucoup plus lentement, au reste du substrat, et puis dans le système du laboratoire, en étapes successives. Le rétablissement complet de l'aimantation pourrait être représenté par une succession d'exponentielles montrant toutes des temps caractéristiques plus lents que l'étape précédente.

structure des domaines n'est pas affectée par la perturbation optique. Cette observation est conforme à ce qui a été observé par *Vodungbo et al. Nat. Comm. 2012* [32]. Cependant, ces derniers ont plutôt étudié des multicouches CoPd.

Pfau et al. Nat. Comm. 2012 [31] ont observé la diffraction résonante au seuil M du cobalt dans une multicouche de $[\text{Co/Pt}]_{18}$, très semblable à la nôtre. Ils voient un changement transitoire de la taille des domaines. Le changement de transfert de vecteur d'onde observé, 4% en 0,5 ps, correspondrait à des vitesses de barrières de domaines de 10^4 - 10^5 m/s. Ces vitesses étant beaucoup trop rapides pour des phénomènes de réorganisation magnétiques, le changement de structure est plutôt associé à la migration d'électrons de spin polarisés superdiffusifs. Ces électrons polarisés peuvent atteindre des vitesses de l'ordre de 10^6 m/s dans les bonnes conditions[136]. La raison pour laquelle nous n'observons pas le même changement de taille de domaine est probablement expérimentale. *Pfau et al. Nat. Comm. 2012* [31] ont travaillé en FEL, leur rapport signal sur bruit est beaucoup plus élevé que le nôtre, malgré leurs domaines aléatoirement orientés qui diluent l'intensité de diffraction sur un anneau de 360° .

La décroissance plus rapide de l'aimantation comparée à des échantillons semblables, mais uniformément aimantés est aussi associée à une diffusion des électrons chauds polarisés en spin de part et d'autre des barrières de domaines [32]. Cette migration réduit l'aimantation effective de chaque domaine et réduit l'acuité des barrières de domaines. Ce dernier facteur diminue le contraste de diffraction sans affecter les éléments de son image en champ lointain (voir l'illustration des domaines magnétiques de la figure 5-3 à $t = 20$ et 300 fs).

5.6 Conclusion

Les résultats obtenus ne sont pas innovants. Ils ne font que reproduire, pratiquement intégralement, ce qui a déjà été observé par *Vodungbo et al. Nat. Comm. 2012* [177] dans un échantillon semblable en utilisant également une source HHG. Ils servent plutôt à démontrer, avec succès, l'utilité de notre source et la validité de notre méthodologie puisqu'ils reproduisent avec justesse leurs observations.

Si *Vodungbo et al. 2012* devaient utiliser l'entièreté de la puissance de leur source pour obtenir ces mesures, ici, nous n'utilisons que 26% de la puissance totale disponible dans le laser. La puissance restante pourrait être utilisée pour améliorer la brillance de la source, ou, comme nous le verrons au prochain chapitre, modifier le faisceau de pompe en utilisant des procédés de conversion non linéaires.

5.7 Article supplémentaire II – Coherent tabletop EUV ptychography of nanopatterns

Ptychographie de nanostructure avec une source EUV cohérente sur table

Nguyen Xuan Truong^{1,2}, Reza Safaei³, Vincent Cardin³, Scott M. Lewis¹, Xiang Li Zhong⁴, François Légaré³ & Melissa Denecke^{1,2}.

1 School of chemistry, The University of Manchester, M13 9PL, Manchester, UK.

2 Dalton Nuclear Institute, The University of Manchester, M13 9PL, Manchester, UK.

3 Institut National de la Recherche Scientifique, Centre Énergie Matériaux et Télécommunications, 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec J3X 1S2, Canada

4 School of Materials, The University of Manchester, M13 9PL, Manchester, UK

Scientific Report

Reçu 4 mai 2018

Publié 12 novembre 2018

<http://dx.doi.org/10.10631/1.4914344>

5.7.1 Mise en contexte et résumé

Pour démontrer davantage l'utilité de notre source HHG comme ligne de rayonnement X, nous rapportons ici les travaux d'un collaborateur l'ayant utilisé pour faire l'imagerie de nanostructures par ptychographie d'imagerie diffractive.

Dr. Nguyen Xuan Truong, travaillant dans le groupe de la Prof. Melissa Denecke de l'université de Manchester, a utilisé les photons XUV à 41 eV (30 nm) pour imager des structures linéaires d'une taille de 500 nm avec une résolution globale de 32 nm.

L'expérience a d'abord été faite dans ALLS en utilisant la source décrite ci-haut. Dans ALLS, les paramètres d'optimisation du flux harmoniques étaient les mêmes que ceux décrits dans la section précédente.

Ensuite, le savoir-faire acquis dans nos laboratoires a permis la construction d'une nouvelle source s'y inspirant fortement, dans les laboratoires de la Prof. Denecke, à Manchester. L'expérience d'imagerie par diffraction cohérente y a été reproduite. Ce sont ces derniers travaux qui sont présentés dans l'article *Truong et al. Sci. Report 2018*[40]. Contrairement à ce qui a été fait dans ALLS, ils ont utilisé l'argon comme milieu de génération à Manchester. L'énergie de photon visée étant plus petite, 41 vs 60eV, l'argon leur a quand même permis d'atteindre une fréquence de coupure suffisante et amélioré leur efficacité de génération.

5.7.2 Résumé anglais

Coherent diffraction imaging (CDI) or lensless X-ray microscopy has become of great interest for high spatial resolution imaging of, e.g., nanostructures and biological specimens. There is no optics required in between an object and a detector, because the object can be fully recovered from its far-field diffraction pattern with an iterative phase retrieval algorithm. Hence, in principle, a sub-wavelength spatial resolution could be achieved in a high-numerical aperture configuration. With the advances of ultrafast laser technology, high photon flux tabletop Extreme Ultraviolet (EUV) sources based on the high-order harmonic generation (HHG) have become available to small-scale laboratories. In this study, we report on a newly established high photon flux and highly monochromatic 30 nm HHG beamline. Furthermore, we applied ptychography, a scanning CDI version, to probe a nearly periodic nanopattern with the tabletop EUV source. A wide-field view of about $15 \times 15 \mu\text{m}$ was probed with a $2.5 \mu\text{m}$ -diameter illumination beam at 30 nm. From a set of hundreds of far-field diffraction patterns recorded for different adjacent positions of the object, both the object and the illumination beams were successfully reconstructed with the extended ptychographical iterative engine. By investigating the phase retrieval transfer function, a diffraction-limited resolution of reconstruction of about 32 nm is obtained.

5.7.3 Contribution personnelle

- Optimisation, et opération du faisceau laser et HHG dans ALLS.
- Conception 3D et production de la chambre d'expérience dans ALLS (reproduite à Manchester).
- Installation et asservissement des contrôles moteurs dans ALLS (reproduite à Manchester).
- Assistance et résolution de problèmes.

6 DÉPENDANCE DE LA DÉSAIMANTATION ULTRA-RAPIDE SUR LA LONGUEUR D'ONDE DE LA POMPE

6.1 Avantage de ALLS

ALLS est un laboratoire spécialisé dans le développement de sources laser innovantes. Conséquemment, l'utilisation de phénomènes nonlinéaires pour convertir le rayonnement de la source Ti:Sapphir en UV (SHG, THG) ou infrarouge moyen (DFG/OPA) y est monnaie courante.

ALLS est aussi spécialisé dans la caractérisation de l'interaction lumière-matière. La réponse électronique dans les gaz, molécules ou matériaux condensés suite à l'illumination par un faisceau laser y est quotidiennement étudiée. L'effet de la longueur d'onde d'excitation sur une population électronique est bien connu des gens qui y travaillent. Par exemple, un électron dans le continuum sous l'effet d'un champ laser doit avoir une énergie cinétique au moins égale à $U_p \propto I\lambda^2$, où I est l'intensité du laser et λ sa longueur d'onde. U_p est l'énergie pondéromotrice introduite ci-haut. Alternativement, elle correspond à l'énergie cinétique moyenne de cet électron qui oscille rapidement dans le champ électrique du laser. Cette quantité physique est particulièrement importante dans l'interaction laser avec les gaz. C'est pourquoi elle apparaît dans l'expression de la fréquence de coupure en HHG.

Ces spécialisations du laboratoire ALLS offrent une perspective unique sur l'approche au problème de la désaimantation ultra-rapide introduite au chapitre précédent. La grande majorité des laboratoires mondiaux qui s'intéressent au phénomène de désaimantation ultra-rapide ne voit le laser femtoseconde que comme une source utile pour le dépôt ultra-rapide d'énergie dans le matériau magnétique. Le matériau est traité comme un conducteur simple, et la dispersion optique, $n(\lambda)$ et son effet sur le courant électronique transitoire est ignoré. Les études publiées depuis *Beaurepaire et al. 1996* [127] utilisent donc en grande majorité une longueur d'onde d'excitation près de la bande d'émission laser du Ti :Sapphir, 800 nm, c.-à-d. la technologie femtoseconde la plus répandue au monde. Sauf quelques exceptions notables [140], [178]–[180], l'effet de la longueur d'onde sur le mécanisme d'aimantation n'a pas fait l'objet d'une attention particulière.

Or, la première étape, universellement reconnue, de la désaimantation est la création d'une distribution d'électrons chauds hors équilibre thermodynamique [136], [140]–[144] via l'absorption d'énergie. L'interaction lumière-matière dans un métal peut se classer en deux catégories; les transitions interbandes, et intrabandes.

Dans les transitions interbandes, des électrons de la bande de valences pourront être transférés par absorption d'un photon vers une bande de conduction supérieure. Ces interactions seront hautement

dépendantes de la nature exacte du matériau, et, évidemment de l'énergie des photons incidents. Ce genre de transition sera particulièrement important pour des photons de hautes énergies[181]–[183].

Les transitions intrabandes correspondent à une transition d'un électron vers un état voisin de la bande sur laquelle il se trouve. Ce genre de transition n'est permis que si des états adjacents sont disponibles. Pour des matériaux à la température de la pièce, ceci signifie que ces transitions auront lieu surtout près du niveau de Fermi[181]–[183].

Étant donné la très grande population d'électrons mobiles disponibles dans un conducteur, les transitions intrabandes sont mieux représentées en termes de variables continues. Ces variables représentent le mouvement collectif d'une population d'électrons de masse effective m_e^* . La masse effective dépend de la courbure de la bande d'énergie sur laquelle évolue l'électron. Soumis à un champ laser, cette population subira une force analogue à la force de Lorentz : $m_e^* \frac{dv}{dt} = -eE$.

Ces dernières considérations correspondent au modèle de Drude[184], [185]. C'est un modèle phénoménologique, mais il est possible d'en faire la démonstration à partir d'une théorie statistique (grand nombre d'électrons), en supposant que les électrons forment un fluide homogène et rigide (incompressible et irrotationnel). Il représente la réponse optique associée au déplacement du nuage d'électrons, mais en néglige la déformation et les contributions électroniques individuelles (comme les transitions interbandes). Il permet de bien reproduire la réponse optique des matériaux dans la limite des grandes longueurs d'onde[186].

6.2 Intuition sur la réponse optique du métal à une longueur d'onde de pompe différente

Dans le contexte du modèle de Drude, l'évolution de la densité de courant, J , créée dans un métal par l'action d'un champ électrique, E , s'obtient par:

$$\frac{dJ}{dt} + \tau^{-1}J = \frac{Ne^2}{m_e^*}E = \sigma E \quad (6-1)$$

où τ est le temps caractéristique de relaxation du métal, c.-à-d. l'inverse du temps moyen entre deux collisions électroniques et N est la densité électronique. L'énergie absorbée dans un métal de volume constant est alors:

$$\frac{dU}{dt} = C_e \frac{dT}{dt} = J \cdot E \quad (6-2)$$

où C_e est la chaleur spécifique du métal. Prenant la transformée de Fourier de l'équation (6-1), nous obtenons $J = \sigma_0 E / (1 - j\omega_0\tau)$. En supposant un champ complexe, $E(t) = E_0 \exp(-j\omega t)$, la densité de puissance moyennée dans un cycle optique est $P(\omega_0) = \sigma_0 E_0 / 2(1 + j\omega_0\tau)$. Le gain de température électronique s'écrit donc :

$$\Delta T_e = j \frac{\sigma_0 E_0^2}{4\omega_0 C_e (1+j\omega_0\tau)} \quad (6-3)$$

Dans la limite où les oscillations sont plus courtes que le temps de relaxation ($\omega_0\tau \gg 1$) :

$$\Delta T_e = \frac{\sigma_0 E_0^2}{4\omega_0^2 C_e \tau} = \frac{N}{C_e} \frac{e^2 E_0^2}{4m_e^* \omega_0^2} = \frac{N}{C_e} U_p \quad (6-4)$$

Nous retrouvons l'énergie pondéromotrice, U_p , dans l'équation (6-4). Le lien n'est pas si surprenant. Le modèle de Drude-Sommerfeld [187] traite les électrons de la bande de conduction du métal comme une mer d'électrons libres et mobiles, c.-à-d. la bien connue « mer de Fermi » [181]–[183]. Ces électrons, en plus de leur mouvement thermique naturel, sont libres d'osciller dans le champ électrique du laser et donc draineront l'énergie du champ laser en fonction de l'amplitude et la fréquence de cette oscillation. Comme pour le cas d'électrons libres provenant d'atomes sous phase gazeuse, le transfert d'énergie sera plus efficace à grande longueur d'onde.

6.2.1 Nuances

Les deux cas précédents, inter et intrabandes, donnent une raison de croire que la désaimantation ultra-rapide, à travers l'augmentation de la température électronique, devrait être affectée par la longueur d'onde du faisceau de pompe. Ils servent de justification aux efforts entrepris, mais il faut garder en tête les limitations du modèle de Drude. La dérivation précédente concerne la réponse d'un métal pur, homogène, dans la limite des grandes longueurs d'onde. Aucune considération n'est accordée à la structure, ni à la nature chimique du matériau et à leurs effets sur l'interaction avec le faisceau pompe.

La réponse considérée est aussi purement électronique. Les spins et les phonons ne sont pas inclus. La raison étant que les électrons sont « chauffés » dans les premières dizaines de femtosecondes, c.-à-d. lorsque le faisceau incident est présent. Le temps de réponse des spins et des phonons est beaucoup plus long. Les calculs précédents s'intéressent donc seulement à la hausse de la température électronique durant l'excitation laser. La désaimantation suit ensuite son cours normal, où une température électronique initiale plus élevée devrait mener à une désaimantation plus importante.

6.3 Résumé français de *Cardin et al. PRB 2020* => Expérience

Le montage expérimental et les résultats sont présentés dans *Cardin et al PRB 2020* (Chapitre 7) et son matériel supplémentaire (Annexe II). La figure 6-1 reproduit le schéma expérimental. Brièvement, l'expérience reproduit la diffraction résonante décrite au chapitre précédent pour trois longueurs d'onde de pompe différente.

Le faisceau pompe à 400 nm est obtenu par doublage de fréquence dans un cristal de BBO.

Le faisceau pompe à 800 nm est utilisé directement.

Le faisceau pompe à 1800 nm est obtenu par amplification paramétrique, aussi dans un cristal de BBO.

La difficulté de l'expérience réside dans la comparaison absolue des trois longueurs d'onde. Pour conserver une taille focale sur l'échantillon comparable pour les trois longueurs d'onde, nous imageons la sortie d'une fibre creuse directement sur l'échantillon avec un montage d'imagerie 4f de grossissement 2:1. La propagation dans une fibre évacuée permet aussi de nettoyer le profil spatial des impulsions pompes. La fibre creuse évacuée avait un cœur de 500 μm , et donc, la tache focale sur l'échantillon pour les trois longueurs d'onde était d'environ 640 μm . Comparativement, la taille focale du faisceau sonde a été mesurée à environ 70 μm $1/e^2$. Lorsque la pompe et la sonde sont parfaitement superposées, nos rayons X sondent donc une section dont l'illumination est relativement uniforme. Les modes d'ordres élevés du faisceau à 400 nm n'étaient pas bien atténués par une fibre de si large cœur [188]. Le faisceau à 400 nm a plutôt été focalisé au point focal de l'objet du montage 4f avec un diamètre $1/e^2$ de 320 μm .

Un séparateur échantillonne une partie des faisceaux pompes juste avant la chambre de l'échantillon et l'envoie vers une caméra CMOS placée dans le plan image du montage d'imagerie 4f. Cette procédure permet de mesurer et de positionner la tache focale des faisceaux pompes avant chaque ensemble de prise de données. Une monture piézoélectrique permettait de balayer le faisceau pompe sur l'échantillon pour s'assurer que les faisceaux pompe et sonde étaient parfaitement superposés sur la section active de l'échantillon.

Un obturateur permet de mesurer une image de diffraction en l'absence de pompe à toutes les trois mesures. Ceci permet de garder un œil constant sur la puissance harmonique et sur la position de sa tache focale sur la section transparente de l'échantillon (voir annexe i — traitement des images de).

Un atténuateur permet de contrôler finement l'énergie dans l'impulsion pompe pour chaque prise de mesures. L'atténuateur était d'une nature différente pour chaque longueur d'onde. Pour le faisceau à 400 nm, nous avons utilisé des filtres de densité neutre. Pour le faisceau à 800 nm, nous avons utilisé des polariseurs à couche mince avec une lame demi-onde. Pour le faisceau à 1800 nm, nous avons utilisé la réflexion sur une surface de germanium polie après une lame demi-onde.

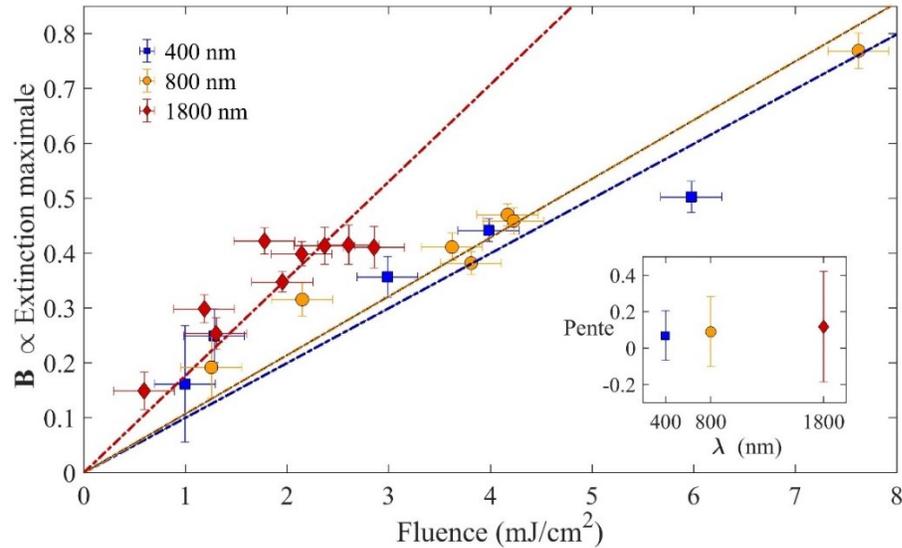


Figure 6-2 Paramètre B du modèle (équation (5-7)) en fonction de la fluence incidente pour les courbes de désaimantation aux trois longueurs d'onde de fluences (400 nm – carrés bleus ; 800 nm – cercles orange ; 1800 nm – losanges rouges).

La pente de la régression linéaire est montrée dans l'encadré. Les régressions linéaires sont forcées de traverser l'origine.

L'évaluation de la fluence effective est d'autant plus complexe si on considère que la distribution exacte de cette énergie dans les couches semble aussi importante pour la désaimantation [179], [180]. Cette distribution est significativement plus difficile à mesurer avec certitude et précision.

Pour affranchir notre analyse de ces incertitudes, nous utilisons des nouvelles jauges pour l'énergie déposée dans le système magnétique. Ces jauges sont les paramètres C et τ_2 du modèle.

Le paramètre C est la valeur asymptotique du modèle à long temps (environ 4 à 15 ps). Après ≈ 4 ps, les électrons et les spins sont en équilibre thermodynamique et commencent l'échange d'énergie avec les phonons [152]. À ces temps, les effets critiques transitoires sont terminés et le système commence à chercher à retourner à l'équilibre avec son environnement. L'énergie contenue dans le système magnétique commence à peine à se dissiper à travers les phonons. Le retour complet à l'équilibre sera très long en comparaison, et la courbe de désaimantation nous apparaît donc comme constante dans la plage de temps étudiée. Le modèle reproduit ce comportement. Plus le plateau est loin de 1.0, c.-à-d. plus C est grand, plus il reste de l'énergie dans le système. Dans *Cardin et al. Soumis 2019* (figure 7-3), nous traçons donc B en fonction de C .

Nous avons vu au chapitre précédent que τ_2 augmente linéairement avec la fluence incidente sur l'échantillon. Cette dépendance linéaire est aussi observée ici (voir figure 5-10). Comme τ_2 est extrait directement de la réponse magnétique de l'échantillon et qu'il est proportionnel à l'énergie incidente sur

l'échantillon, il peut être utilisé comme un indicateur intrinsèque de l'énergie déposée dans le système magnétique. À la figure 7-3, nous traçons donc aussi B en fonction de τ_2 .

Dans les deux cas, un effet clair de la longueur d'onde peut être observé. Les dépendances ont certaines particularités que nous discuterons ci-bas, mais la tendance claire est que l'extinction maximale de l'aimantation est plus importante pour des pompes de plus grandes longueurs d'onde.

La figure 6-3 montre une interdépendance claire entre τ_2 , C et la fluence mesurée. L'avantage principal de la figure 6-3 est qu'elle montre que peu importe la nature exacte de cette interdépendance, elle n'est pas affectée par la longueur d'onde de la pompe. Il est en effet très difficile d'extraire une tendance forte sur l'effet de la longueur d'onde dans ces images. Ceci renforce l'utilisation de C et τ_2 comme jauge pour la comparaison entre les désaimantations pour différentes longueurs d'onde de pompe et l'évaluation d'une loi d'échelle pour cette dépendance.

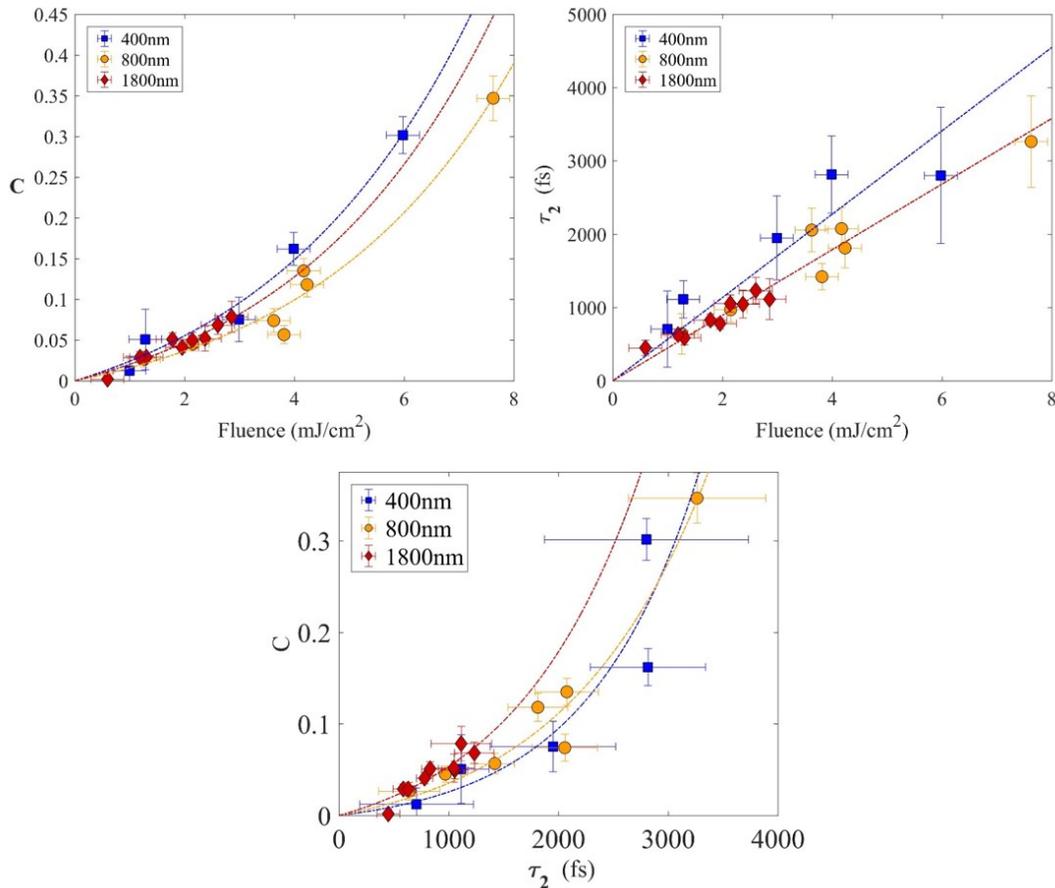


Figure 6-3 Interdépendance des jauges de l'énergie déposée dans l'échantillon magnétique.

Aucun effet clair de la longueur d'onde ne peut être discerné dans les relations entre les paramètres. Les modélisations sont empiriques.

6.3.2 Conclusions de l'article et suite

Le travail présenté dans Cardin et al. 2019 montre clairement un effet important de la longueur d'onde sur la désaimantation atteinte dans une multicouche de $[\text{Co}_{0.6}/\text{Pt}_{0.8}]_{30}$. Des calculs supplémentaires s'intéressant principalement à la réponse optique de chaque couche d'élément simple composant notre matériau montrent aussi que le taux d'absorption de l'énergie peut être relié à U_p et, donc, augmente quadratiquement avec la longueur d'onde. Nos résultats expérimentaux présentés au chapitre suivant ne peuvent cependant pas confirmer l'ordre de cette dépendance. Nos calculs ne peuvent non plus offrir d'hypothèses fortes sur le mécanisme microscopique causant cette dépendance en longueur d'onde.

Des modèles statistiques plus complexes seront nécessaires pour permettre de comprendre le phénomène. Une désaimantation plus importante à énergie égale pour les grandes longueurs d'onde signifie que ce n'est pas seulement l'énergie absorbée dans le matériau qui est importante, mais « comment » l'énergie est absorbée. Le modèle futur devra donc tenir en compte une distribution statistique de l'énergie des électrons où l'énergie totale sera toujours la même, mais où la température électronique, c.-à-d. la valeur moyenne de l'énergie de la distribution, sera plus grande pour les grandes longueurs d'onde. Le modèle de Drude, qui décrit le nuage électronique en termes de variables continues n'est donc certainement pas suffisant.

Ce travail, en plus d'offrir une nouvelle intuition physique sur les mécanismes en jeu dans la désaimantation ultra-rapide, sert aussi à démontrer la puissance et le potentiel de ALLS pour l'étude de phénomènes dynamiques dans les matériaux condensés. Le laboratoire occupe une position unique grâce à sa capacité à générer un haut flux de rayons X avec assez d'énergie en surplus pour façonner les faisceaux pompes aux longueurs d'onde, énergies, polarisation et durées d'impulsion voulues.

En ce qui concerne la désaimantation, l'étude ne se termine pas ici. Quelques options pour lesquelles ALLS est bien équipé en termes d'équipements disponibles et de savoir-faire :

1. Une pompe THz permet de contrôler l'aimantation de faisceau cohérente[190]. L'aimantation du matériau subit alors une précession contrôlée par le champ magnétique de l'onde THz. À quelle longueur d'onde est la transition entre la désaimantation incohérente comme étudiée ici et le contrôle cohérent de l'aimantation? Comment se produit la transition? ALLS possède une expérience reconnue sur la génération d'infra-rouge lointain et de rayonnement THz[78], [191].
2. L'effet de la structure en multicouche et de la longueur de pénétration du faisceau pompe comparativement à l'épaisseur du film complet n'ont pas été pleinement traités ici. L'utilisation d'échantillons différents pourrait permettre de définir l'universalité de la loi d'échelle présentée ici. Notamment, l'utilisation d'alliages minces permettrait de retirer les considérations sur l'influence des multicouches et de la distribution longitudinale de l'énergie provenant de la pompe.

7 ARTICLE II - WAVELENGTH SCALING OF ULTRAFAST DEMAGNETIZATION IN CO/PT MULTILAYERS

Dépendance en longueur d'onde de la désaimantation ultra-rapide de multicouches de Co/Pt

Vincent Cardin¹, Tadas Balciunas², Katherine Légaré¹, Andrius Baltuska², Heide Ibrahim¹, Emmanuelle Jal⁵, Boris Vodungbo⁵, Nicolas Jaouen³, Charles Varin⁴, Jan Luning⁵ and François Légaré¹

¹ INRS-EMT, 1650 boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Quebec, Canada J3X1P7

² TU WIEN, Faculty of Electrical Engineering, Gußhausstr. 25-29, 1040 Wien, Austria

³ Synchrotron SOLEIL, L'Orme des Merisiers, 91190 Saint-Aubin, France

⁴ Cégep de l'Outaouais, Gatineau, Québec, Canada J8Y 6M4

⁵ UPMC, 4 Place Jussieu, 75005 Paris, France

Accepté pour soumission à PRB le 29 janvier 2020.

Vincent Cardin a été le principal expérimentateur. Ses rôles incluaient : conception et production de la chambre d'expérience, optimisation de la source HHG, acquisition des échantillons, prise de mesure, traitement des données, discussion avec Charles Varin pour la mise en place du contexte théorique et rédaction du manuscrit.

Tadas Balciunas et Katherine Légaré ont participé à toutes les séances d'expérience et même une de plus pour l'optimisation de la source HHG durant un congé parental de Vincent. Tadas a été particulièrement instrumental dans la mise en place des lignes pompes sondes pour les différentes longueurs d'onde. Katherine s'est chargée brillamment de l'asservissement des moteurs et du logiciel d'acquisition automatique des données.

Andrius Baltuska était le superviseur de Tadas Balciunas durant l'expérience.

Heide Ibrahim, Emmanuelle Jal et Brosi Vodungbo ont aidé durant la révision du manuscrit.

Nicolas Jaouen et Jan Luning ont été instrumental dans l'élaboration initiale du projet et dans son suivi.

Charles Varin a été en charge de construire le cadre théorique pour expliquer nos résultats.

François Légaré était le superviseur du projet et s'est assuré de son suivi constant.

7.1 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 XUV photons from a high harmonic source, we studied the ultrafast demagnetization dynamics of Co/Pt multilayers by tuning the pump wavelength to 0.4 μm , 0.8 μm , and 1.8 μm . 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.

7.2 Main article

In 1996, Beaurepaire *et al.* [127] discovered the ultrafast demagnetization phenomenon as a femtosecond laser driven process. More recently, coherent control of magnetization has been demonstrated using THz pulses [190], [192], where the magnetic moment of the material follows the magnetic field component of the optical excitation. However, for the vast majority of reported cases, the exact nature and shape 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 [140], or to separate the optical coherent effects from the true magnetization response of a material when MOKE is used as the probing mechanism [193]. In comparison, most studies gave no consideration to the effect of the pump wavelength, with a few notable exceptions [178]–[180], 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 universal first step of the demagnetization sequence [136], [140]–[144]. It has been recently shown using *ab initio* calculations by Krieger *et al.* [194] that the early onset of demagnetization is dominated by electronic processes. Tengdin *et al.* [173] provide evidence via photoelectron measurements 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 [137], [173], [195]. It has been demonstrated that magnetization can be quenched via an indirect excitation by hot electrons optically created in an IR-opaque capping layer [137], [196]–[198]. In case of such indirect excitation, super-diffusion of non-thermal [137], [197] or diffusion of thermal [196], [198] hot electrons from this capping layer into the magnetic structure initiates the magnetization dynamics, its initial quenching and the subsequent recovery. In

the case of direct excitation, we expect the wavelength of the exciting pulse to influence the energy transfer to the hot electrons responsible for the ultrafast demagnetization.

In this letter, 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 pulses with wavelengths of 0.4 μm , 0.8 μm , and 1.8 μm . HHG-based X-ray resonant magnetic scattering (XRMS) at the cobalt M-edge (60 eV) was used to follow the evolution of the magnetization dynamics. The experiment, schematized in Figure 7-1, is further detailed in the SI, along with a more thorough discussion on the pump-probe method and the beam characterization. We observe a significant wavelength dependence of the maximum degree of magnetization quenching at constant absorbed energy, with a stronger quenching achieved for longer pump wavelength.

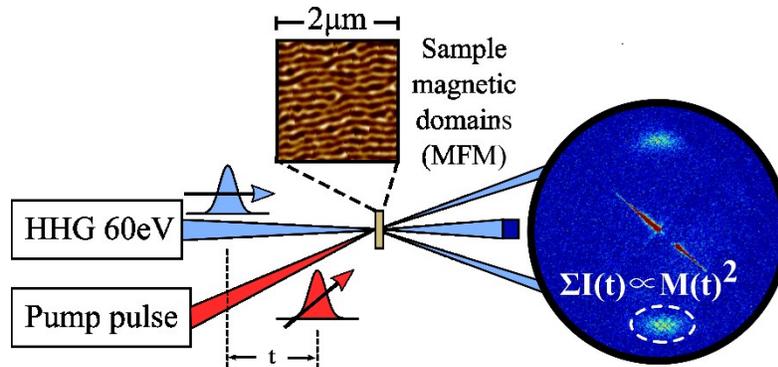


Figure 7-1 Conceptualization of the XRMS technique

The pump photons (red) reach the sample at a time t before the 60 eV photons (blue). The pump photons (400 – 1800nm) affect 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 [32].

Experimental results for the initial 2.5 ps time delays at a variety of pump fluences for the three investigated wavelengths are shown as symbols in Figure 7-2 (a), (b) and (c), respectively. In order to recover the intrinsic 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 Figure 7-2 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 ~ 230 fs. While the curves for pump pulses at 0.4 μm and 0.8 μm show an almost linear recovery (a and b), the curves for pump pulses of 1.8 μm (c) exhibit a more pronounced curvature and a faster recovery.

We have fitted these experimental results with an empirical model (dashed lines) based on convolution of a normalized Gaussian pulse with a bi-exponential decay[32], [134], [135]. The model describing the evolution of the normalized magnetization $M(t)/M_0$ yields the characteristic time scales of the fast magnetization quenching (demagnetization time, τ_1) and the slower partial recovery (recovery time, τ_2). The parameters τ_1 and τ_2 are illustrated in figure 2(e).

$$\frac{M(t)}{M_0} = G(t) \otimes \left[1 - H(t) \left[B \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) + C \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right) \right] \right] \quad (7-1)$$

$H(t)$ is the heavyside function. Although not directly related, the parameter \mathbf{B} primarily determines the maximum quenching of the magnetization, $1-(M/M_0)_{\min}$. Parameter \mathbf{C} represents the asymptotic demagnetization at long pump-probe delays, i.e. the higher \mathbf{C} , the lower is the recovered magnetization (see Figure 7-2(f) where \mathbf{B} and \mathbf{C} are schematically represented).

For comparison reasons, we grouped the measurement data either by the maximum demagnetization (constant \mathbf{B}) or by the constant asymptotic magnetization level (constant \mathbf{C}). Demagnetization dynamics measurements in Figure 7-2(d) show the demagnetization 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, Figure 7-2(e) is grouped for comparison of curves that reach the same value of demagnetization at long pump-probe delays (constant parameter \mathbf{C}). One notes that the 1.8 μm -pumped curve exhibits the highest level of magnetization quenching (parameter \mathbf{B}), followed by the 0.8 μm and then the 0.4 μm . Figure 7-2(f) shows the same curves as Figure 7-2(e), but over the full range of the measured pump-probe delays extending up to 15 ps.

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 pulse fluences, we introduce two alternative gauges for the energy absorbed by the magnetic system. These gauges are independent of experimental conditions and consist in (i) the system recovery time, τ_2 , and (ii) the remaining demagnetization at long pump-probe delays, \mathbf{C} . The maximum magnetization quenching, \mathbf{B} , is then evaluated as a function of these gauges, respectively in Figure 7-3(a), and Figure 7-3(b).

After applying these new gauges for the absorbed energy, the effect of the pump wavelength is summarized in Figure 7-3. In Figure 7-3(a), the dependence of \mathbf{B} over the system recovery time, τ_2 , is approximated with a linear function. In Figure 7-3(b), the maximum demagnetization, \mathbf{B} , is depicted as a function of the remaining demagnetization at long pump-probe delays, \mathbf{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 (\mathbf{B}) increases with increasing pump wavelength.

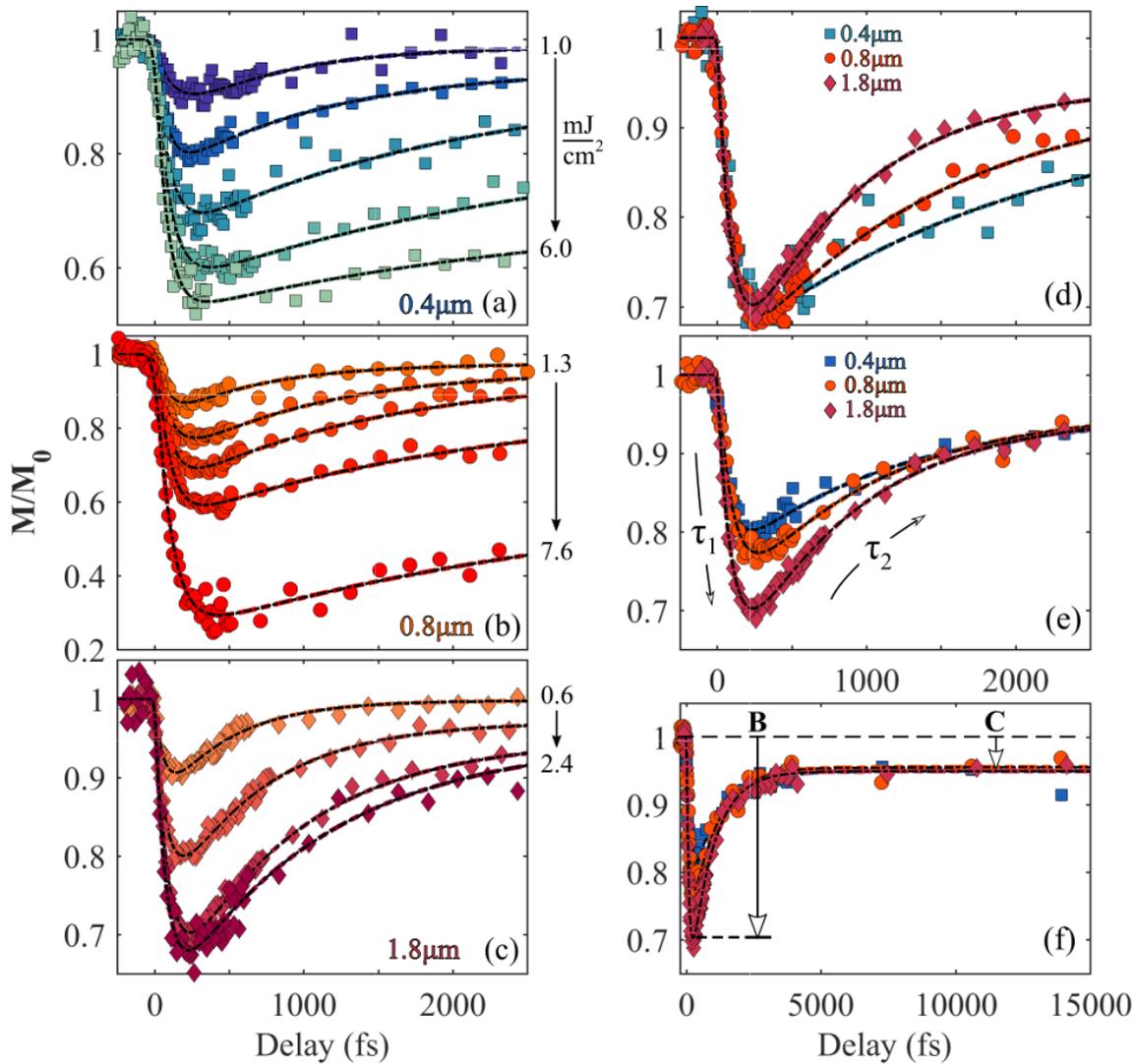


Figure 7-2 Demagnetization curves for the three pump wavelengths (a: 400 nm, b: 800 nm, c: 1800 nm)

(d) Comparison of demagnetization 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 range. The fitting parameters are illustrated in (e) and (f).

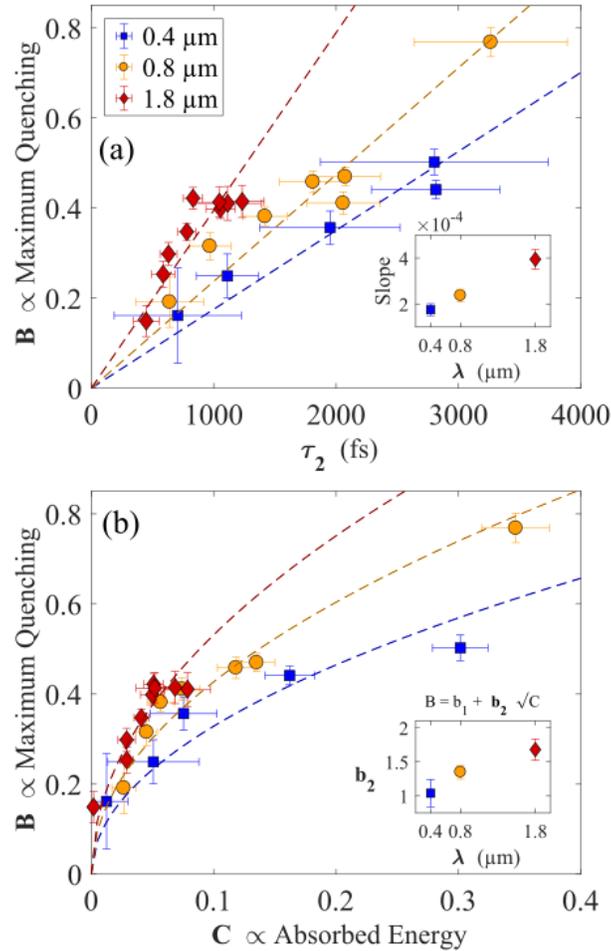


Figure 7-3 Wavelength dependence (400 nm in blue, 800 nm in orange, 1800 nm in red) of the maximum magnetization quenching parameter B and the asymptotic demagnetization parameter C (c.f. Eq 7-1) .

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, τ_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.

Such different scaling behavior of B vs C and B vs τ_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 ≈ 2.5 and 13 ps to be zero, while parameter B is non-zero. 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.

The recovery time, τ_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 τ_2 with

the incident pump fluence has been extensively observed in previous works[31], [32], [173], [174]. An hypothesis to explain this observation is the increasing specific heat of the electron bath with increasing temperature, reducing heat transfer rate to the phonons for high fluences[199], [200]. In our study, τ_2 is also found to increase linearly with the measured fluence for all three wavelengths (see supplementary information – Chapitre 14 Annexe II). Additionally, since the recovery of the magnetization begins long after the pump pulses, it should be unaffected by any wavelength-dependent material effect. Hence, in the context of investigating a wavelength scaling response of the material ultrafast demagnetization, we argue that τ_2 is a more intrinsic gauge of the effective fluence reaching the magnetic 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 τ_2 for the three pump wavelengths (see supplementary information – Chapitre 14 Annexe II) shows that both gauges are independent on the pump-wavelength independent. 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 which is expected to be completely independent of the photon wavelength. The time it takes for the energy to dissipate (τ_2), or equivalently, the asymptotic-like magnetization at long pump-probe delays (parameter C), should only depend on the actual energy absorbed by the system. These assumptions are consistent with the demagnetization measurements of a directly and indirectly excited similar Co/Pt multilayer by Vodungbo *et al.* [198] where no discernable differences in the dynamics of magnetization recovery have been observed, despite the very different nature of the initial excitation.

Explaining these experimental results with a complete model would be extremely challenging as it would require to start from first principles, i.e. dealing with the multi-body 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[201] 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 , respectively. Within the 3T perspective, the individual ESP populations are assumed to be in an internal thermal equilibrium at all times and the laser-induced ultrafast demagnetization proceeds as follows. First, on the time scale of the pulse, electrons are heated by the laser with negligible energy exchange of energy with the spin and phonon populations. In a subsequent second step, excess electronic energy is transferred to the spins, reaching a maximum of demagnetization, typically on the sub-picosecond time scale. Finally, as the three populations evolve toward a global thermal equilibrium, magnetization is partially recovered. Demagnetization on the multi-picoseconds time scale (C , see Figure 7- 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 (see Chapitre 14 - Annexe II for details):

$$\Delta T_{e,max} = \sqrt{T_{e,0}^2 + \frac{2}{\gamma} W} - T_{e,0} \cong \frac{W}{C_e(T_{e,0})} \quad (7-2)$$

where $T_{e,0}$ is the initial electron temperature, and γ 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 λ 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 laser wavelength λ , for the simple reason that most materials are optically dispersive, i.e. that the value of their relative permittivity changes with the laser wavelength.

We computed an effective permittivity of the sample by weighting the contribution from the individual materials with respect to their relative volume in the sample and observed that energy absorption globally scales with λ^2 (see SI for details). 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 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:

$$\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle = \frac{1}{2} \left(\frac{\sigma}{1 + \omega^2 \tau^2} \right) E_0^2 \cong \frac{2N}{\tau} U_p \propto \lambda^2 \quad (7-3)$$

where σ is the static conductivity, $\omega = 2\pi c/\lambda$ is the angular frequency, τ 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 electric field, with e being the elementary electric charge and m the electron mass. The λ^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 experimental observations of a higher level of demagnetization at early times for 1.8 μm wavelength. Note that in the limit where $\omega = 0$, the equation above is equivalent to the static source term $P(t)$ of Beaurepaire's [1].

Further insight was gained by looking at optical data for Al[202], Pt[203], and Co[204], from which we computed the decay constant $\alpha = 2\pi\kappa/\lambda$ as a function of the laser wavelength λ (n and κ are the refractive index and extinction factor, such that $\epsilon_r = (n + i\kappa)^2$). We consider an oxidation layer (Al_2O_3) of 1.5 nm[205]–[207], reducing the effective thickness of the aluminum capping layer to 1.5 nm.

It is noted that the optical data from 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 [208]. The current analysis provides an intuitive picture to explain our experimental results, but should be interpreted with care. Nevertheless, from the results summarized in Figure 7-4, it stands out that optical absorption in the three investigated conductive materials varies significantly over the 0.4-1.8 μm range and favors direct energy deposition in Co/Pt when increasing the wavelength from 0.4 to 1.8 μm .

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 (see SI for details) 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 $\sim 7\%$. To fully assess optical reflections and multiple beam interference in the entire sample, we used the thin-film electromagnetic theory developed by Born and Wolf [209]. 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 μm compared to the 0.4 μm case (thin-film results are labelled TF in Figure 7-4).

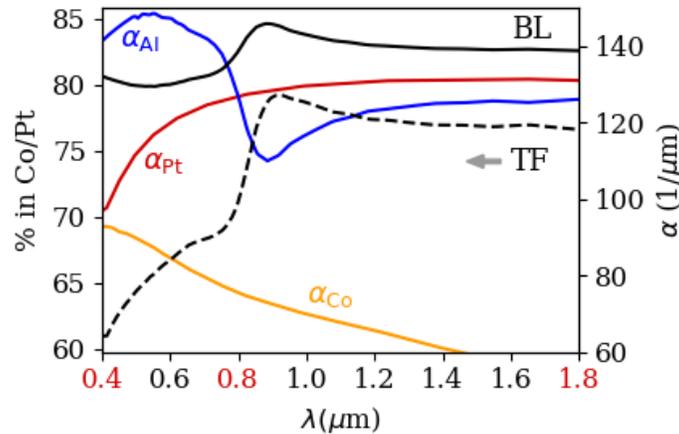


Figure 7-4 Optical absorption data for Al[202], Pt[203] and Co[204] reveal a strong dependence with regards to the laser wavelength.

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.

From this intuitive 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 μm , followed by 0.8 μm , and 0.4 μm . Thus, 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 Figure 7-2(e)). As the system reaches equilibrium, the temperature becomes uniform across the sample and the same level of demagnetization is reached on the multi-picoseconds time scale (**C**, see Figure 7-2(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 increasing pump wavelength, in the studied range. More investigation is 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 electronic, spin, and phonon (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 a near future.

Finally, previous reports have also identified a wavelength dependence on the ultrafast demagnetization of different materials. Of those reports, Bierbrauer *et al.*[179] 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 μm) and 3.10 eV (0.4 μm). Our observations strongly overlap with theirs, however with a different interpretation. Bierbrauer *et al.* 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 Figure 7-2(e)).

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 magnetic 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 μm . 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.

Acknowledgements

The INRS team acknowledges support from NSERC, FRQNT, PRIMA Quebec, and CFI-MSI. V.C. and K.L. acknowledge NSERC for their student fellowship. T.B. acknowledges funding from the EU H2020 research and innovation program under the Marie Skłodowska-Curie grant agreement No 798176. C.V. acknowledges NSERC through the College and Community Innovation Program - Innovation Enhancement Grants (CCIFE 517932-17) and FRQNT through the Programme de recherche pour les chercheurs et les chercheuses de collège (2019-CO-254385). The UPMC team is grateful for financial support received from the CNRS-MOMENTUM program. The authors would like to warmly thank M. Hehn for providing the multilayers used in this study.

8 POST-COMPRESSION DANS UNE FIBRE CREUSE

8.1 Nouvelle génération de sources femtosecondes

Dans la poursuite de sources laser femtosecondes à haute puissance moyenne et haute intensité crête, les oscillateurs fibrés et amplificateurs ytterbium acquièrent de plus en plus de parts dans un marché présentement dominé par la technologie Ti :Saphir [210], [211]. Depuis le développement de l'amplification par dérive de fréquence (CPA) [47], la technologie Ti :Saphir s'était imposée en maître comme source principale d'impulsions femtosecondes. Cette hégémonie est maintenant contestée.

Les cristaux de saphir dopés au titane sont difficiles à faire croître avec les tailles et les formes nécessaires pour permettre l'amplification de hautes puissances moyennes. Ceci est principalement dû à l'important défaut quantique associé à son absorption dans le vert et l'émission dans l'infrarouge qui cause le dépôt par la pompe d'une grande charge thermique dans le cristal[212]–[215].

Les cristaux et verres amorphes avec dopage d'ytterbium sont plus faciles à produire, tolèrent bien les hautes puissances, mais leur largeur de bande d'amplification est beaucoup moins large que le Ti :Saphir [211], [215]–[217]. Conséquemment la durée des impulsions obtenues par un système CPA basé sur l'ytterbium est beaucoup plus longue. Selon la technologie, les impulsions sont typiquement de 200 fs à 2 ps. Ces durées sont insuffisantes pour les applications demandant une grande puissance crête ou pour l'étude de phénomènes dynamiques demandant une meilleure résolution temporelle. Il faut donc trouver une méthode de compression suffisamment efficace pour obtenir une augmentation significative de la puissance crête, c.-à-d. raccourcir la durée des impulsions sans en affecter trop l'énergie.

La méthode que nous utiliserons est la compression d'impulsion par fibre creuse. C'est la méthode qui a été brièvement introduite dans le premier chapitre. Elle utilise l'automodulation de phase pour élargir le spectre des sources lasers pico ou femtoseconde[218]. De notre opinion, il s'agit d'une méthode déjà très efficace, et qui démontre le plus de potentiel de développement à long terme. Déjà il y a 10 ans, la technique de compression par fibre creuse permettait la compression d'énergie de l'ordre de 10 mJ[219], [220] ou d'une puissance moyenne maximale allant jusqu'à 150 W [221] jusqu'à des impulsions de quelques cycles.

Les exemples précédant montrent soit des efficacités de compression très basses ($< 33\%$)[219], [221] ou représente des cas isolés[220]. En général, les guides d'ondes existants ne pouvaient être fabriqués à la fois avec un large cœur et une grande longueur tout en conservant une rectitude de qualité optique. Ceci limitait le développement de la technique vers les plus hautes énergies.

La technique de compression utilisant des fibres creuses flexibles tendues a permis l'utilisation de fibres plus longues avec un grand diamètre de cœur, permettant la compression efficace d'impulsions

énergétiques[222], [223]. Son optimisation dans ALLS a rendu la technique plus accessible et plus efficace pour la compression d'impulsions énergétiques. Elle a aussi ouvert la technique pour la compression d'impulsions infrarouges. *Cardin et al. APL 2015* [41] présente nos résultats pour la compression d'impulsions de 35 fs à 1800 nm avec 11 mJ sous les seuils du deux cycles optiques (< 12 fs) avec une transmission de 45 %. Aujourd'hui, de nouveaux résultats préliminaires montrent que des centaines de Watt peuvent être compressés par cette technique avec des efficacités supérieures à 70 % (non publiés au moment de l'écriture).

Cette technique est donc tout indiquée pour pallier le défaut principal des sources ytterbium et en faire des sources idéales pour une variété d'applications incluant la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Au chapitre suivant, nous montrerons un tel cas qui nous a permis d'étudier la désaimantation au seuil N du terbium par diffraction résonante.

8.2 Automodulation de phase dans une fibre creuse

L'automodulation de phase est un phénomène non linéaire de troisième ordre qui définit l'apparition de nouvelles fréquences s'ajoutant au spectre d'une impulsion lors de son interaction avec la matière. L'effet est dû au fort gradient d'intensité sur les fronts montant et descendant de l'enveloppe de l'onde. Par effet Kerr, l'indice de réfraction instantané d'un matériau non linéaire est $n(\lambda) = n_0 + n_2 I(t)$. La phase non linéaire d'une onde se propageant dans un milieu d'indice n_2 sera alors $\phi_{NL}(t) = -n_2 I(t) \omega_0 L / c$ où L est la longueur d'interaction. La fréquence instantanée de l'onde est donnée par [224], [225]:

$$\omega(t) = \omega_0 + \delta\omega(t) = \omega_0 + \frac{d\phi_{NL}(t)}{dt} = \omega_0 \left(1 - \frac{n_2 L}{c} \frac{dI(t)}{dt} \right) \quad (8-1)$$

Sur le front montant de l'impulsion, le gradient positif provoquera l'apparition de fréquences décalées vers l'infrarouge. Sur le front descendant, le gradient négatif provoquera l'apparition de fréquences décalées vers le bleu. La figure 8-1 schématise le phénomène. Plus le gradient est élevé, c.-à-d. plus l'intensité crête est grande ou plus l'impulsion initiale est courte, plus les nouvelles fréquences seront éloignées de la fréquence de l'onde porteuse. Un spectre plus large correspond à une limite de Fourier plus courte et donc, des impulsions plus courtes lorsque la phase spectrale accumulée par la propagation nonlinéaire est compensée.

Il faut donc une grande longueur d'interaction, ou l'interaction avec un milieu très dense, pour obtenir un effet notable. Dans les fibres creuses, c'est cette première solution qui est utilisée. En propageant l'onde dans un long milieu rempli d'un gaz noble de faible densité, on obtient des taux d'élargissement significatifs, menant à des facteurs de compression de 4 à 10x et même plus pour des fibres creuses très longues [41], [42], [218], [226].

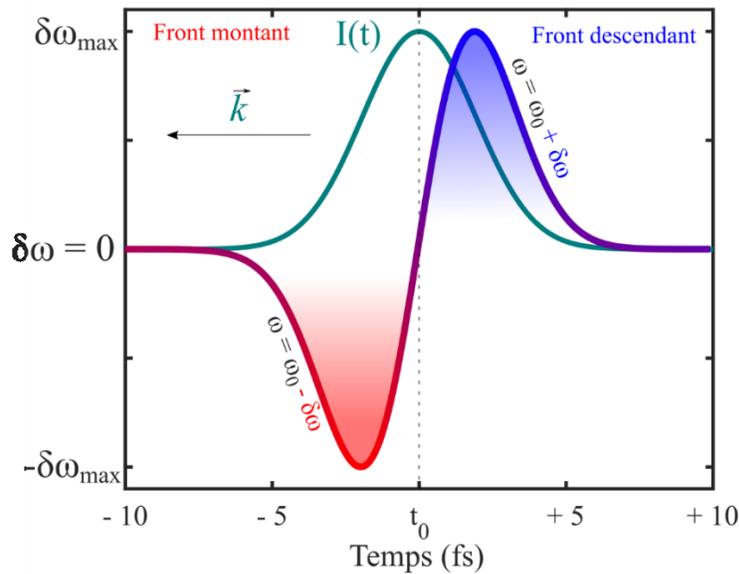


Figure 8-1 Illustration de l'effet de la SPM sur l'élargissement spectral.

La courbe turquoise représente l'impulsion laser gaussienne. L'impulsion se propage vers les temps négatifs. L'opposé du gradient de l'intensité est tracé en rouge et bleu. Lorsque la courbe est positive, les fréquences ajoutées sont supérieures à la fréquence de l'onde porteuse. Lorsque la courbe est négative, les fréquences ajoutées sont inférieures à la fréquence de l'onde porteuse.

Les défis pour la propagation d'un laser haute intensité dans un guide d'onde très long sont nombreux. Ils énumérés ici :

1. Puisque le cœur du guide d'onde est gazeux ($n_{\text{cœur}} < n_{\text{paroi}}$), le guidage de l'onde se fait par réflexion de Fresnel sur les parois internes et non par réflexion totale interne. La transmission du guide d'onde chute donc rapidement s'il n'est pas parfaitement droit et aligné sur l'axe optique[222], [227].
2. Pour un guide d'onde parfaitement droit, l'atténuation augmente exponentiellement en fonction du rapport entre la seconde puissance de la longueur d'onde et la troisième puissance du diamètre du cœur. Un petit cœur avec une grande longueur sont associés à une faible transmission[188], [222].
3. Seulement le mode fondamental pseudo-gaussien du guide d'onde, EH_{11} , peut se transmettre sur une grande distance. Les modes supérieurs s'atténuent rapidement[188].
4. Une intensité trop élevée provoquera l'apparition d'une population d'électrons libres qui suivra le gradient de l'intensité du mode fondamental dans le guide d'onde. Ceci affectera l'indice de réfraction du cœur menant à un transfert d'énergie du mode fondamental vers les modes supérieurs et réduira la transmission globale du guide d'onde[224], [228], [229]. La nouvelle contribution à l'indice de réfraction viendra aussi affecter le processus d'élargissement spectral. Ce facteur peut être contrôlé par l'utilisation d'un gaz avec un potentiel d'ionisation plus élevé.

5. Le couplage dans le guide d'onde est associé à une perte théorique de 2 %[230]. Expérimentalement, la perte réelle est entre 5 et 10 %. Ceci est dû au compromis entre l'injection d'énergie dans les modes supérieurs (angle d'injection trop abrupt et tache focale trop petite) et la diffraction d'une tache focale gaussienne sur l'arrête interne à la face du guide d'onde (angle d'injection trop faible et tache focale trop grande). Le paramètre d'injection idéal est d'obtenir une tache focale correspondant à 64 % (diamètre $1/e^2$) du diamètre du cœur du guide d'onde [230]. Pour des faisceaux multi-mJ requérant des fibres avec des cœurs $> 500 \mu\text{m}$ de diamètre, ceci signifie des longueurs focales de plusieurs mètres. Cette contrainte peut être très taxante pour les laboratoires avec un espace limité.

8.3 Compensation de la phase

Les composantes spectrales obtenues par automodulation de phase ont une relation de phase spectrale s'approchant d'une fonction quadratique négative [231]. Une relation de phase quadratique peut être facilement compensée par des miroirs dispersifs. Ces miroirs sont des multicouches diélectriques conçus pour introduire un délai entre les couleurs réfléchies à sa surface[232]. Ils doivent être spécialement conçus pour la longueur d'onde centrale et la largeur de bande du spectre obtenu après l'automodulation de phase. Plus la largeur de bande est élevée, moins la réflectivité du miroir sera bonne.

Ces miroirs large bande sont disponibles pour la majorité des sources laser ultra-rapides modernes. Ils introduisent une phase spectrale fixe à chaque réflexion, rendant difficile la compensation exacte de la phase acquise par automodulation de phase. Le contrôle fin de la dispersion se fait par l'introduction de plaques de verre dans le faisceau. Selon la longueur d'onde, ces plaques de verre introduisent une dispersion quadratique positive dans le faisceau. Il s'agit alors de bien contrôler l'épaisseur de verre qu'on introduit dans le faisceau. Le problème principal de ces miroirs est qu'ils sont dispendieux.

L'auto-redressement (trad. fr. *self-steepening*) de l'onde est un autre phénomène nonlinéaire qui introduit une dispersion d'ordre trois, asymétrique, dans le spectre de l'impulsion laser. Ce phénomène correspond au ralentissement (c.-à-d. réduction de la vitesse de groupe) de la crête de l'impulsion causé par l'augmentation de l'indice de réfraction due à l'effet Kerr (effet d'ordre trois et ordres supérieurs)[233]. Ce ralentissement cause un redressement du front descendant de l'onde, et un écrasement du front montant. Ces changements au gradient temporel de l'intensité affectent l'automodulation de phase. L'élargissement spectral sera alors plus important vers les courtes longueurs d'onde et plus faible vers les longues longueurs d'onde. Les conséquences de l'auto-escarpement sont donc :

1. Spectre élargi asymétrique (voir figure 9-3)
2. Ordre trois de dispersion à compenser pour atteindre la limite de Fourier pour minimiser la durée de l'impulsion.

Cet ordre trois s'avère difficile à compenser dans la majorité des cas, et donc les impulsions élargies n'atteignent généralement pas leur limite de Fourier. Les miroirs dispersifs commercialement disponibles ne sont pas conçus pour compenser les ordres de dispersion supérieurs à deux.

Pour l'élargissement spectral dans l'infrarouge, la compensation de la phase par propagation dans du verre permet de compenser à la fois l'ordre deux et l'ordre trois dans les bonnes proportions, permettant aux impulsions d'approcher leur limite de Fourier[25], [234]–[236]. *Cardin et al. APL 2015*[41] présente un tel cas. La raison de cette compensation sur deux ordres de dispersion est détaillée dans l'article et les références qu'il contient.

8.4 Résumé français de *Cardin et al. APL 2015* => Compression dans l'infrarouge

Dans *Cardin et al. APL 2015*[41], nous rapportons sur la compression d'impulsions infrarouges à 1800 nm de 11 mJ, 35 fs vers le régime de deux cycles optiques, c.-à-d. moins de 12 fs, avec une efficacité de 45 %. Les impulsions de 11 mJ ont été obtenues par un amplificateur paramétrique de lumière blanche à quatre étages (trois commerciales et une personnalisée, construite dans ALLS). Cette source est détaillée dans *Thire et al. APL 2015*[78].

La compression se fait dans une fibre creuse de 3 m de long avec un cœur de 1 mm de diamètre, remplie d'un gradient d'argon. Le gradient est établi de façon à ce que la densité de gaz soit la plus faible à l'entrée de la fibre, afin de limiter l'ionisation lors du couplage de l'énergie vers le mode fondamental de propagation dans la fibre[237], [238].

La tache focale du faisceau à l'entrée de la fibre est de 750 μm de diamètre à $1/e^2$, soit 75 %, au lieu des 64 % recommandés pour maximiser le couplage[230]. L'expérience montre qu'à ces énergies, l'ionisation causée par une forte intensité a un impact plus grand sur la transmission du système que la perte d'énergie par diffraction à l'entrée de la fibre.

La plus grande tache focale, le gradient de pression, le large cœur et la grande longueur de fibre nous ont permis de compresser par un facteur 4 des énergies à ce jour inaccessibles par la technique dans l'infrarouge.

Nous montrons dans l'article que les facteurs influençant l'élargissement spectral et la propagation dans la fibre évoluent défavorablement avec une augmentation de la longueur d'onde. Les deux paramètres principaux étant l'indice de réfraction nonlinéaire, n_2 , et l'effet des électrons libres sur l'indice de réfraction. L'indice nonlinéaire dans l'argon est 40 % plus faible à 1800 nm qu'à 800 nm[239]. Pour obtenir le même élargissement, il faut donc une intensité 40 % plus élevée. Une intensité 40 % plus élevée signifie plus d'électrons libres. Pour la même quantité d'électrons libre, l'effet sur l'indice de réfraction dû à ces électrons

est 2,25 fois plus important pour un faisceau à 1800 nm qu'à 800 nm[225]. Ceci signifie plus d'échange entre les modes supérieurs et le fondamental, et donc plus de pertes.

Le défi a donc été de conserver une intensité faible, tout en maximisant la pression de gaz. Le seul paramètre pratiquement indépendant du reste, mais qui permet d'améliorer l'élargissement spectral sans effets secondaires est la longueur d'interaction. C'est pourquoi nous avons utilisé une fibre de 3 m. Ceci aurait été impossible sans le développement des fibres creuses flexibles tendues. La longueur affecte bien sûr la transmission du guide d'onde, mais comme le cœur est très large, la différence d'atténuation entre 2 et 3 m de propagation n'est seulement que de quelques pourcents[240]. Le compromis est tout à fait acceptable.

La figure 3 de *Cardin et al APL 2015*[41] montre l'élargissement spectral et la compensation de la dispersion d'ordre 2 et 3, menant à la mesure d'une impulsion de 11,8 fs, c.-à-d. près de la limite de Fourier (11 fs).

8.5 Effet sur la HHG

Au chapitre 2, nous avons déjà introduit le concept de la réduction de la durée d'impulsion qui permet d'étendre l'énergie maximale de photon atteint par les HHG. Elle permet aussi l'obtention d'une efficacité de conversion plus importante. L'argument étant le même que le second argument pour l'extension de l'énergie de coupure. La formation d'une forte population d'électrons libres, préjudiciable pour l'accord de phase, prend un certain temps. Dans une impulsion courte, plus de photons pourront participer efficacement au processus HHG avant que la population d'électrons libres soit suffisante pour réduire l'accord de phase [25], [37].

Nous présentons ici des résultats non publiés montrant l'effet de la durée d'impulsion sur la HHG dans l'argon, le néon et l'hélium. Les figures présentent les spectres harmoniques obtenus en utilisant un faisceau de génération dont le spectre est similaire à celui présenté à la figure 9-2. L'abscisse des figures est en échelle logarithmique. Les longueurs focales et les tailles de cellules de gaz sont indiquées dans la description de chaque figure. L'énergie par impulsion et le nombre de d'impulsions laser intégrées pour chaque spectre sont aussi indiqués sur chaque figure.

Les chiffres dans la légende représentent l'épaisseur de verre (silice fondue) utilisée pour compenser les ordres deux et trois de dispersion acquise par automodulation de phase et auto-rederesement dans la fibre creuse remplie d'argon. Les durées en femtoseconde représentent la largeur FWHM des impulsions telles que mesurées avec un autocorrélateur en seconde harmonique. Pour le facteur de correction, nous supposons un profil gaussien des impulsions. À l'ajout du verre, les impulsions raccourcissent et approchent leur limite de Fourier. Ajouter davantage de verre surcompense les dispersions d'ordre deux et trois et les impulsions commencent à s'allonger dans le domaine temporel.

Les courbes en pointillés noires de chaque figure représentent le spectre harmonique recueilli dans les mêmes conditions, mais en utilisant une impulsion laser non élargie par SPM (spectre rouge dans la figure 9-2). Les intensités spectrales relatives dans chaque figure peuvent être comparées entre elles, mais ne devraient pas être comparées à celles des autres figures.

À l'étude des figure 8-2 à figure 8-4, chaque gaz de génération semble réagir différemment aux impulsions courtes. Nous décrivons ici chaque comportement :

Tableau 8-1 Effet observé des impulsions courtes sur la HHG dans l'argon, le néon et l'hélium.

Argon	<p>À quelques détails près, l'argon réagit aux impulsions courtes comme nous le prévoyions.</p> <p>Les impulsions spectralement élargies, mais dont la dispersion n'est pas compensée, montrent une fréquence de coupure identique à celle obtenue en utilisant les impulsions longues.</p> <p>La fréquence de coupure et l'efficacité de conversion augmentent lorsque la durée des impulsions de génération raccourcit. Leur maximum coïncide avec la compensation maximale mesurée avec l'autocorrélateur.</p> <p>La fréquence de coupure et l'efficacité de conversion atteignent leur maximum à la compensation maximale de la dispersion (durée des impulsions la plus courte) et réduisent si la dispersion est surcompensée (la durée des impulsions réaugmente).</p> <p>La forme du spectre harmonique demeure relativement inchangée en fonction de la durée des impulsions.</p>
Néon	<p>La fréquence de coupure des impulsions dont la dispersion n'est pas compensée ou est surcompensée est identique à celle des impulsions non élargies.</p> <p>La fréquence de coupure augmente avec la compensation, atteint un maximum et est réduite. Le maximum coïncide avec la compensation maximale mesurée avec l'autocorrélateur.</p> <p>Le spectre harmonique ne conserve pas sa forme au fur et à mesure de la compensation. L'efficacité de conversion atteint un maximum avec la compensation de la dispersion, mais ce maximum ne s'atteint pas à la même durée d'impulsions que pour la fréquence de coupure. Séquentiellement :</p> <ul style="list-style-type: none"> - La fréquence de coupure augmente et atteint un maximum. L'efficacité de conversion pour les hautes énergies atteint rapidement un maximum dès le début de la compensation. - La fréquence de coupure stagne et l'efficacité de conversion dans les hautes énergies diminue. L'efficacité dans les basses énergies augmente. - La fréquence de coupure se réduit et l'efficacité de conversion dans les basses énergies augmente de façon importante. - La fréquence de coupure retrouve sa valeur initiale (impulsions longues), l'efficacité de conversion dans les basses énergies atteint son maximum, puis se réduit.
Hélium	<p>La fréquence de coupure semble indépendante de la durée des impulsions.</p> <p>L'efficacité de conversion augmente avec la compensation de la dispersion, le maximum de l'efficacité correspond grossièrement à la compensation optimale mesurée avec l'autocorrélateur.</p>

Les résultats dans le néon semblent être dus aux effets combinés de la fréquence instantanée des impulsions, de l'intensité crête et du taux croissant de l'ionisation durant le passage de l'impulsion. L'explication suivante représente une hypothèse non vérifiée. Résoudre les équations de propagation d'onde en 3D, tel qu'effectué au chapitre 3 pour la génération dans la fenêtre de l'eau, serait nécessaire pour en confirmer le contenu. Cet effort n'est pas présenté ici. Séquentiellement :

Avant la pleine compensation, les basses fréquences atteignent le milieu vierge en premier. Par l'énergie pondéromotrice, U_p , la conversion des basses fréquences mène à des photons X de plus haute énergie. L'absence d'électron libre au front montant de l'impulsion rend l'efficacité de conversion dans les hautes énergies favorable.

L'augmentation de la fréquence de coupure suit la compression de l'impulsion et le maximum est atteint lorsque l'intensité crête est maximale, c.-à-d. pleine compensation de la dispersion. L'ionisation est encore sous la saturation et le pic de l'impulsion est en accord de phase. Les hautes énergies sont encore bien amplifiées jusqu'à la fréquence de coupure.

En surcompensation, les fréquences élevées se présentent au milieu de génération avant les fréquences courtes. Selon la loi d'échelle pour l'efficacité de conversion, ces fréquences élevées sont beaucoup plus efficaces pour la conversion en harmonique, mais l'ordre harmonique qu'elles peuvent atteindre est plus faible. Les basses énergies sont donc générées efficacement. Les fréquences courtes se présentent après la crête de l'impulsion. À ce moment, l'ionisation créée par le front montant et la crête de l'impulsion empêche les fréquences courtes d'être en accord de phase. Les hautes énergies sont donc atténuées, puis éteintes.

La surcompensation augmentant davantage, l'intensité de l'impulsion devient trop faible et l'efficacité de conversion globale chute.

Pour l'hélium, les conclusions basées sur nos observations sont plus incertaines. Bien que l'efficacité globale de génération augmente avec la diminution de la durée d'impulsions, l'indépendance de la fréquence de coupure à la durée des impulsions est inattendue. L'efficacité de génération est aussi atteinte avant la compensation optimale de la dispersion comme mesurée avec l'autocorrélateur.

Deux hypothèses sont présentement considérées.

1. Dans le contexte de l'autoguidage de l'onde et du verrouillage de l'intensité, chapitre 3, la diminution de la durée d'impulsions provoque simplement le grossissement de la section transversale du guide d'onde créé. La fréquence de coupure n'augmente pas, mais l'efficacité de conversion oui. L'effet observé est donc le même que celui présenté à la figure 4-6 (*Cardin et al. J Phys B. 2018 [39]*) qui regarde l'effet de l'intensité sur le spectre harmonique. Une fois l'intensité de verrouillage atteinte, la

fréquence de coupure n'augmente plus. Dans ce contexte, il semble que même l'impulsion longue atteigne déjà l'intensité nécessaire pour établir le guide d'onde.

2. La seconde hypothèse est qu'une limitation de nos appareils de mesures nous empêche de voir l'effet de la durée d'impulsions sur la fréquence de coupure. L'efficacité de diffraction de nos réseaux autour de 500 eV diminue rapidement¹². Combiné à la faible densité spectrale près de la fréquence de coupure, il est possible que cette faible résolution nous empêche d'observer l'augmentation de la fréquence de coupure. Les basses énergies devraient être bloquées et le gain des MCP augmenter pour permettre d'observer plus en détail le comportement du spectre harmonique près de la fréquence de coupure, c.-à-d. à la limite de la résolution de nos réseaux.

Pourquoi l'effet important de la dispersion observé dans le néon n'est pas visible dans l'argon et dans l'hélium? Pourquoi la fréquence de coupure dans l'hélium est-elle indépendante de la durée des impulsions? Nous avons offert une piste de solutions, mais ces questions demeureront ici sans réponses. Il est de notre avis que des investigations supplémentaires sont nécessaires. Bien que les détails et les mécanismes ne soient pas exactement définis, il demeure clair que l'utilisation d'impulsions courtes est bénéfique pour le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé.

¹² Shimadzu Inc. - Laminar-type Replica Diffraction Gratings for Soft X-ray Region - #30-003

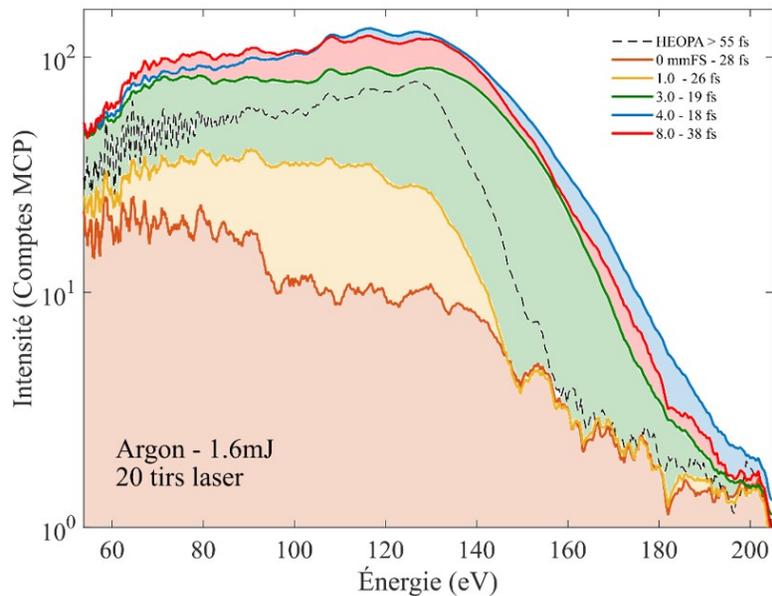


Figure 8-2 Spectres harmonique dans l'argon pour différentes durées d'impulsions de 1.6 mJ.

Chaque spectre représente la moyenne de 100 acquisitions de 200 ms. Les spectres ne sont pas normalisés. La longueur focale était de 75 cm. La zone de génération était une cellule de 2 mm rempli d'un flot continu d'une faible pression d'argon (trop faible pour être correctement mesurée). La pression est la même pour chaque courbe. HEOPA fait référence au faisceau provenant directement de l'OPA haute énergie.

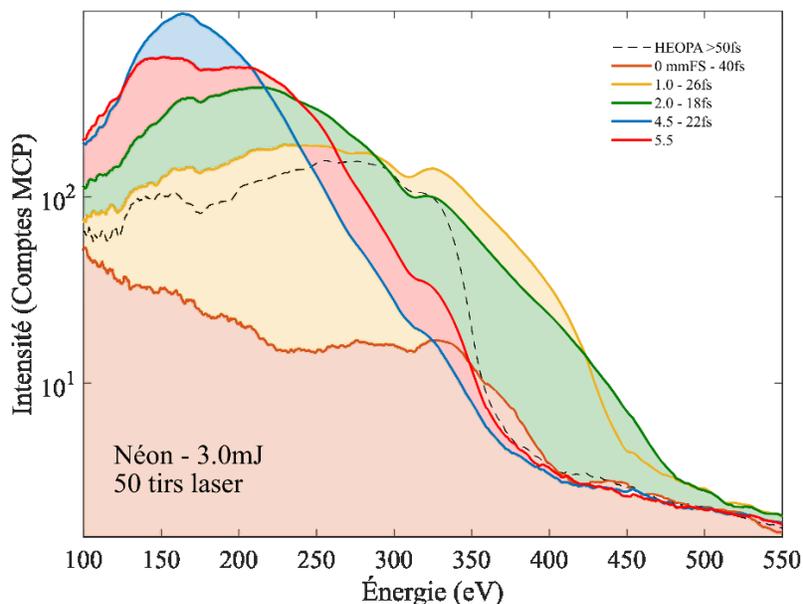


Figure 8-3 Spectres harmonique dans le néon pour différentes durées d'impulsions de 3.0mJ.

Chaque spectre représente la moyenne de 100 acquisitions de 500 ms. Les spectres ne sont pas normalisés. La longueur focale était de 100 cm. La zone de génération était une cellule de 8 mm rempli par une vanne pulsée de 18 bar. La pression est la même pour chaque courbe.

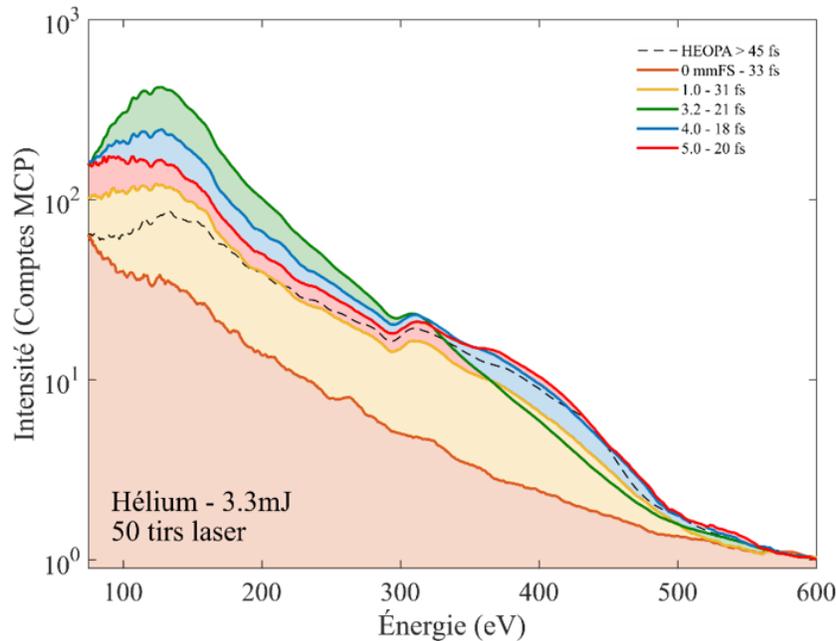


Figure 8-4 Spectres harmonique dans l'hélium pour différentes durées d'impulsions de 3.3mJ.

Chaque spectre représente la moyenne de 100 acquisitions de 500 ms. Les spectres ne sont pas normalisés. La longueur focale était de 100 cm. La zone de génération était une cellule de 4 mm rempli par une vanne pulsée de 27.5 bar. La pression est la même pour chaque courbe. Un filtre coloré RG1000 (1 mm d'épaisseur) est inclus dans l'épaisseur de verre indiquée.

8.6 Applicabilité de la technique de compression avec une fibre creuse flexible développée dans ALLS.

Compte tenu du succès de la technique de compression dans une fibre creuse développée dans ALLS par le Dr. Schmidt et moi, il convient de prendre un moment pour souligner les recherches et les développements subséquents que la technique a rendus possibles.

La recherche faite dans ALLS a permis la conception d'un instrument de compression d'impulsions laser facilement déployable dans la majorité des laboratoires opérant des lasers femtosecondes. L'instrument en question est maintenant commercialisé, à succès, par *few-cycle* Inc., une « spin-off » du groupe de recherche du Prof. Légaré fondée par le Dr. Schmidt. Il s'agit d'un exemple parfait de réussite de la valorisation d'un produit de la recherche en milieu universitaire au Canada.

Inclus dans cette thèse, les travaux présentés dans *Cardin et al. APL 2015*[41] (Chapitre 9) et *Jeong et al. Sci. Report 2018*[42] (Article Supplémentaires III – Chapitre 10) présentent la caractérisation d'impulsions laser compressées en utilisant directement l'instrument en question.

Aussi incluse dans cette thèse, l'expérience présentée dans *Fan et al. Soumis 2019* (Article Supplémentaire IV – Chapitre 10) n'aurait pu être possible sans la fibre creuse flexible telle que développée

dans ALLS. Du même groupe de recherche, *Fan et al. Optica 2016*[226] montrent aussi des résultats records sur la compression d'impulsions dans l'infrarouge moyen à 3.2 μm .

Bien qu'ils ne soient pas inclus dans cette thèse, *Safaei et al. OSA Continuum 2019*[241] et *Haddad et al. Opt. Exp. 2019*[242], sont deux autres articles issus du groupe du Prof. Légaré qui présentent la caractérisation d'impulsions laser compressées dans la fibre creuse flexible. Alors que nous avons montré que la technique permet la compression d'impulsions lasers énergétiques pouvant atteindre jusqu'à 11 mJ, ils montrent plutôt qu'avec le bon milieu non-linéaire, la technique permet aussi la compression d'impulsions de très faible énergie (quelques dizaines de μJ).

Gruson et al. Opt. Exp. 2017 [117] utilisent la fibre creuse flexible pour compresser des impulsions proches infrarouge et les amplifier subséquentement dans un amplificateur optique paramétrique dans le domaine de Fourier (FOPA). Avec ce système, ils atteignent des énergies de 30 mJ par impulsions avec des durées sous les deux cycles optiques, < 12 fs. Ils montrent ainsi une puissance crête de 2.5 TW pour des impulsions laser à 1.8 μm .

Beaulieu et al. PRL 2016 [243] utilisent des impulsions courtes obtenues grâce à l'instrument pour montrer la contribution à la HHG des états électroniques excités dans l'argon.

Il ne s'agit là que de la production en contenu scientifique attribuable au groupe du Prof. Légaré et à ses collaborateurs depuis les quelques dernières années. Dû à la commercialisation de l'instrument par *few-cycle Inc.* de nombreux articles utilisant la technique avec succès ont été publiés mondialement [244]–[248]. Très certainement, de nombreux autres suivront.

9 ARTICLE III - 0.42 TW 2-CYCLE PULSES AT 1.8 μ M VIA HOLLOW-CORE FIBER COMPRESSION

Impulsions de 0,42 TW et 2 cycles à 1.8 μ m par compression dans une fibre creuse

Vincent Cardin ¹, Nicolas Thiré ¹, Samuel Beaulieu ¹, Vincent Wanie¹, François Légaré¹ & Bruno E. Schmidt^{1,2}

¹ Institut National de la Recherche Scientifique, Centre Énergie Matériaux et Télécommunications, 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Qc, J3X1S2, Canada

² Few-cycle Inc., 2890 Rue de Beaurivage, Montreal, Qc, H1L 5W5, Canada

Applied Physics Letters

Reçu 20 août 2015

Publié 2 novembre 2015

DOI : <http://dx.doi.org/10.1063/1.4934861>

Vincent Cardin était responsable de l'écriture du manuscrit.

La mise en place de l'expérience, la prise et le traitement des données ont été conjointement effectués par Vincent Cardin et le Dr. Bruno Schmidt.

Dr. Nicolas Thiré, Samuel Beaulieu et Vincent Wanie ont aidé à la mise en place de l'expérience.

Prof. François Légaré supervisait l'expérience.

9.1 Abstract

By employing pulse compression with a stretched hollow-core fiber, we generated 2-cycle pulses at 1.8 μm (12 fs) carrying 5 mJ of pulse energy at 100 Hz repetition rate. This energy scaling in the mid-infrared spectral range was achieved by lowering the intensity in a loose focusing condition, thus suppressing ionization induced losses. The correspondingly large focus was coupled into a hollow-core fiber of 1 mm inner diameter, operated with a pressure gradient to further reduce detrimental nonlinear effects. The required amount of self-phase modulation for spectral broadening was obtained over 3 meters of propagation distance.

9.2 Main article

Gain narrowing in chirped pulse amplification (CPA) [47] sets limits for the achievable bandwidth of high power ultrafast laser systems operating in the multi-millijoule (mJ) regime. Although this limitation may be overcome with ultra-broadband optical parametric amplifiers (OPAs) [116], [249]–[253] such lasers are not yet readily available commercially. Therefore, post-compression subsequent to multi-cycle laser systems remains the most proven way to generate high energy few-cycle pulses. At the mJ level of pulse energy, filamentation [254]–[257] and hollow-core fiber (HCF) [218] based propagation schemes still remain the most popular ones. Self-guided filamentation offers the advantages of wide spectral broadening and ease of operation. Although harder to implement, guided-mode propagation in a HCF is a much more universal method that produces spatially homogenous beams of high quality. With a proper wave guide, HCF propagation can be realized from the XUV [258] to THz spectral range [259] and at very different energy levels (1 nJ [260] – 10 mJ [219]), respectively. The concept is even applicable at average power levels exceeding 100 W [221].

In this paper, the challenges of few-cycle HCF compression in the mid-infrared range are discussed in the context of upscaling the peak power towards the TW regime. An experimental route to circumvent these challenges is presented where pulses at 1.8 μm wavelength containing up to 11 mJ (100 Hz repetition rate) were coupled into a HCF without damaging the fiber. The maximum output energy after re-compression to 2 cycles (12 fs) was 5 mJ.

The principal challenge of nonlinear pulse compression with HCF is to provide sufficient nonlinearity for maximum self-phase modulation (SPM) while avoiding harmful nonlinear effects like self-focusing, ionization or nonlinear mode coupling [229]. In this manner, a unique measurement of 5 fs, 5 mJ pulses at 800nm wavelength has been reported [220]. When transferring this experiment to longer wavelengths, several quantities need to be reconsidered: the second order nonlinearity (n_2), the free electron contribution to the refractive index (n_e), the critical power for self-focusing (P_{cr}), and the waveguide attenuation (α). Table 9-1 summarizes their respective wavelength dependence.

Tableau 9-1 Wavelength dependencies of critical parameters for the energy scaling of HCF post-compression systems.

n_2	n_e	P_{cr}	α
$\frac{n_2(\lambda_1)}{n_2(\lambda_2)} = \left[\frac{n_0^2(\lambda_1) - 1}{n_0^2(\lambda_2) - 1} \right]^4$	$n_e \propto \sqrt{1 - \frac{\rho_e q_e}{\epsilon_0 m_e} \left(\frac{\lambda}{2\pi c} \right)^2}$	$\propto \frac{\lambda^2}{n_2}$	$\propto \frac{\lambda^2}{A^3}$

From left to right: nonlinear refractive index of the HCF atmosphere, free electron refractive index, critical power for self-focusing and waveguide attenuation. The equation for the nonlinear index is part of the generalized Miller formulae as obtained in ref [261] and shows a monotonic decrease of n_2 with wavelength.

The nonlinear refractive index of noble gases decreases with wavelength[261] (in argon, $n_2(1800 \text{ nm})/n_2(800 \text{ nm}) = 0.59$ [239]). At first sight, a reduced n_2 holds promise to enable higher propagation intensities to reach the same nonlinear phase shift via SPM. Compensating the lower n_2 by increasing the intensity, however, causes an increased ionization rate. The ionization rate remains roughly constant as a function of wavelength in the tunneling regime, which is the case for peak intensities in excess of 10^{14} W/cm^2 . Yet, the contribution of free electrons to the refractive index n_e increases with laser frequency ω ($n_e^2 \propto \frac{\rho_e}{\omega^2}$), with ρ_e being the free electron density. Similarly, increasing n_2 by increasing the gas pressure equally leads to an increased free electron density. This means that gas pressure must be kept low, even though the higher critical power for self-focusing in the mid-infrared could support a much higher pressure before undesirable effects like nonlinear mode coupling come into play [228], [229].

On the other hand, lowering the intensity by using a large fiber aperture A (see table 1) reduces the ionization rate in the nonlinear medium as well as the attenuation α of the fundamental mode, which scales as $\frac{\lambda^2}{A^3}$. The lower intensity needs to be compensated by using a longer propagation length to yield the same spectral broadening without affecting the other parameters. This, however, requires perfectly straight waveguides since the mode spacing becomes smaller for larger mode sizes, which increases the probability of linear mode coupling.

Conventional setups using capillary channels enclosed in stiff glass rods mounted on v-shaped grooves [218], [234], [236], [262], [263] are typically limited in length due to the fabrication processes and handling. Nagy *et al.* [222], [223] demonstrated the use of a flexible HCF, mechanically stretched and thus enabling good straightness even at 3m length. The stretched fiber was enclosed in a rigid metal tube with the fiber ends fixed permanently. In this letter, we report on an improved design which allows one to freely change the fiber length or diameter depending on the given experimental conditions. Furthermore, we demonstrate good mode guiding for waveguides of 1 mm inner diameter which is more than 500 times the wavelength (1.8 μm).

Figure 9-1a illustrates the HCF setup (shaded gray area) together with the high energy optical parametric amplifier (HE-OPA) line at the Advanced Laser Light Source (ALLS, Varennes, Canada). This OPA line is pumped by an 800 nm Ti:Sa laser at 100 Hz repetition rate. The output is divided in 2 parts; 7 mJ are sent to a low-energy compressor (LEC) to pump a TOPAS (Light Conversion) which delivers up to 750 μ J, 50 fs pulses at 1.8 μ m wavelength. The TOPAS output is spatially filtered (SF1) to ensure a clean and defined mode which is preserved in the subsequent amplification process. A clean spatial mode is a necessary requirement for optimum HCF performance. The larger energy fraction of 70 mJ is compressed in a high-energy compressor (HEC) delivering up to 50 mJ to the large aperture BBO crystal (type II, 22x22x2mm). This high energy OPA stage delivers up to 11 mJ pulses with 35 fs duration and is described in more details in Thiré *et al.* [38].

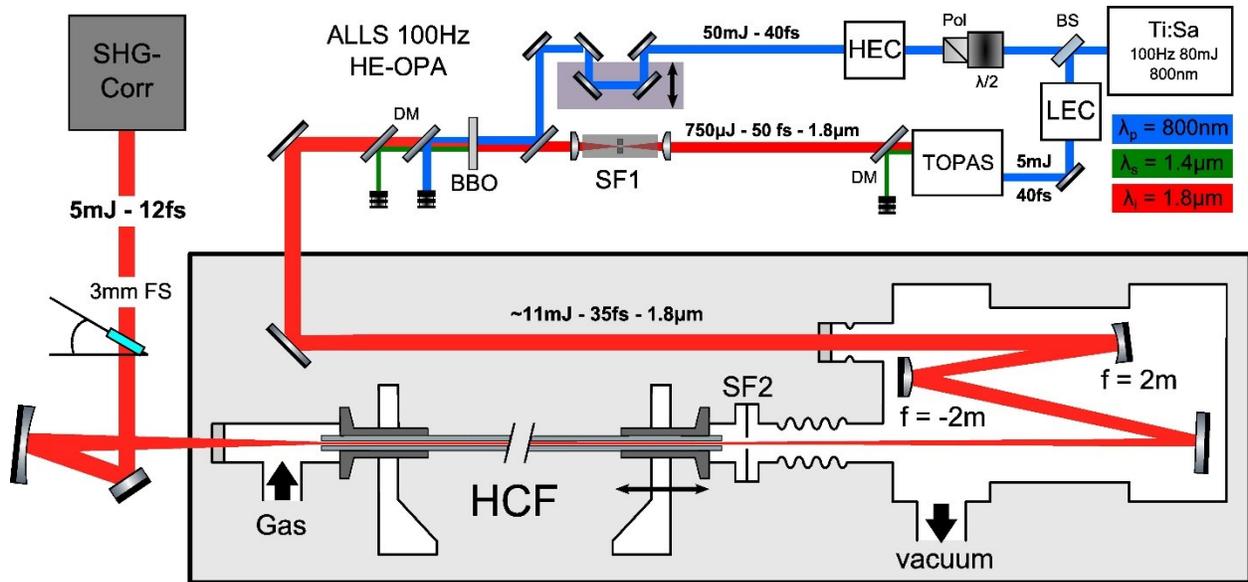


Figure 9-1 Illustration of the experimental setup for the generation of high intensity few-cycle NIR pulses.

The top area depicts the HE-OPA of the Advanced Laser Light Source[38]. The stretched hollow-core fiber length is 3 m with 1mm inner diameter. Depicted telescope effective focal length is 3.8 m with an $1/e^2$ beam waist of 750 μ m diameter. Front vacuum chamber and exit gas inlet chamber are enclosed by 2 mm CaF_2 windows. (DM: various dichroic mirror (as shown); Pol: Polarizer; BS: Beam splitter; LEC/HEC: Low/High Energy grating compressors; TOPAS: commercial OPA; SF: Spatial filter pinhole; SHG-Corr: all-reflective second harmonic auto-correlator).

The HCF setup consists of three elements: the beam coupling telescope, the fiber and the compression stage. Beam coupling is carried out with a reflective telescope. An $f = 2$ m concave mirror placed 105 cm before an $f = -2$ m convex mirror gives an effective focal length of 3.8 m with a $1/e^2$ focal size close to 750 μ m. The focal spot, imaged with a Flea2 CCD (PointGrey) to characterize the spatial mode, is shown in the inset of Figure 9-3a. A spatial filtering pinhole (SF2) with the same diameter as the fiber is installed directly in front of the fiber tip to prevent fiber damage in case of beam drifts.

The fiber itself is a 3 m long, 1 mm inner diameter flexible HCF with a 300 μm thick fused silica cladding surrounded by a polymer layer. The fiber ends are permanently glued into small metal sleeves. These sleeves are clamped to holders (dark gray pieces in Figure 9-1) with three screws. This fast clamping solution allows one to change the propagation condition by using different fiber lengths or diameters, respectively. To straighten the fiber, tension is applied by translating one holder along the optical axis as indicated by the arrow in Figure 9-1. On both sides a two axis tilt mechanism ensures correct alignment of the fiber tip with respect to the optical axis and allows to optimize the mode quality and transmission. The two fiber holders are connected to a KF vacuum tube through which the beam propagates under controlled pressurized conditions. High energy operation is usually achieved by applying pressure on the exit side while pumping continuously at the input. This pressure gradient provides the lowest amount of gas at entrance where the beam is the most intense, thus reducing ionization and self-focusing [238]. Indeed, ionization would hamper the waveguide qualities of the HCF, thus reducing transmission and stability. At maximum input energy of 11 mJ and 2-cycle operation the argon pressure on the beam-input side was 300 mTorr. This value was adjusted to optimize the compression and it is pointed out that further energy scaling seems feasible by using either Ne or He, but Ar was preferred due to its higher nonlinear index.

Furthermore, we adjusted the ratio of focal beam waist ($1/e^2$ of intensity) over the fiber aperture to 0.75 instead of the theoretically required value of 0.64 for optimum mode coupling to the fundamental EH₁₁ mode [188], [230], [264]. We found that this slightly increased focal spot size leads to the best transmission at maximum energy. This empirical observation might be related to the fact that an increased spot size minimizes ionization or other nonlinear losses at the input coupling. The linear coupling losses were verified experimentally by inserting low energy pulses of 100 μJ in a 5 cm short HCF where propagation losses are negligible. The high transmission of 97% in this case confirmed the good beam quality achieved with the spatial filter SF1 prior to the last amplification stage and the mode matched coupling of the setup. For the 3 m long fiber, the highest transmission measured was 80% for a reduced input energy of 750 μJ underlines the excellent guiding properties of the 3 m long HCF. The obtained output energy as a function of input energy is shown in Figure 9-2, with the highest output energy of 5 mJ for an input of 11 mJ. This corresponds to 45% total transmission including vacuum windows, vacuum optics and the spatial filter SF2 in front of the fiber. The spatial beam profile subsequent to the HCF is seen in the second inset of Figure 9-3a. Its $1/e^2$ diameter, after collimation at 2m distance from the fiber output, is 7.5 mm.

To address the question about the origin for the transmission loss we compared the throughput of an Ar filled and an evacuated fiber (40 mTorr residual pressure measured at the entrance side). Virtually no difference is observed by comparing the blue (vacuum) and red (Ar filled) curves of Figure 9-2 at high energy. The fact that the gas filling shows no effect on the transmission indicates an origin upstream of the fiber.

Possible candidates are (i) SPM in the last BBO crystal, (ii) nonlinear effects in the vacuum window or (iii) beam degradation when propagating the high power NIR through ambient air. Regarding the latter, we noticed a ~10% energy loss for propagation over 6-7 m of distance without any sign of self-focusing.

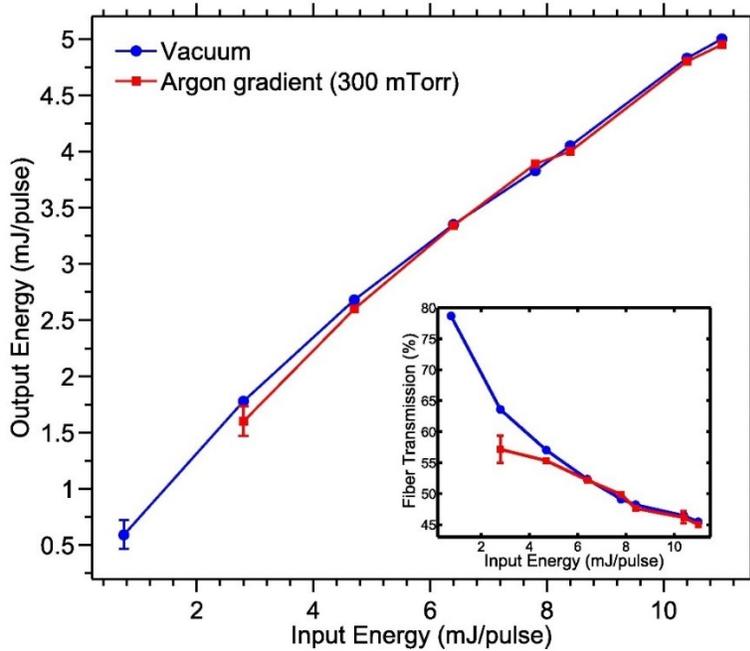


Figure 9-2 Compressed output energy as a function of the fiber input energy for an evacuated (blue circles) and argon-filled (red squares) hollow-core fiber.

A pressure gradient with 300 mTorr at entrance side and 520 Torr at the exit side, respectively, was applied. Inset: Corresponding transmission curve (including all vacuum windows and coupling optics) for the same data points.

Finally, 2-cycle pulse compression at 1.8 μm wavelength subsequent to the HCF was achieved by the bulk compression technique which relies on the interplay of nonlinear propagation in the fiber and linear propagation through fused silica (FS) subsequently [234]–[236]. By placing FS windows of correct thickness (between 2-4 mm) one can compress pulses close to their corresponding transform limit. The characterization of the temporal shape of the pulse was performed with a second harmonic autocorrelator.

Figure 9-3 shows the spectral (Figure 9-3a) and temporal (Figure 9-3b) characterization of the few-cycle pulse. We achieved a spectral width spanning from 1200 nm to 2200 nm associated with a transform limited duration of 9.3 fs. The spectra show the typical shape of a SPM broadened pulse with the noticeable asymmetric shape associated with self-steepening during nonlinear fiber propagation [223], [265], [266]. The temporal shape exhibits a clean profile with a FWHM of (12.3 ± 0.4) fs corresponding to 2 cycles at 1.8 μm wavelength.

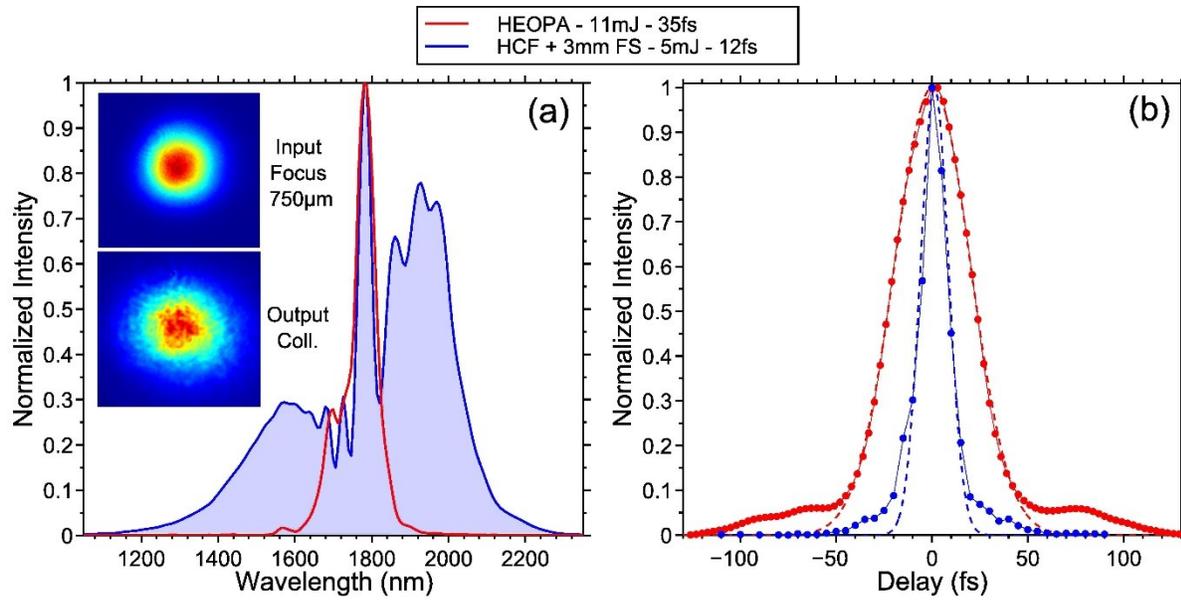


Figure 9-3 Characterization of the fiber input and output pulses.

(a) Spectrum of the multi-cycle input pulse in red compared to the broad spectrum of the few-cycle output pulse in shaded blue. Inset: CCD images of the input pulse focal spot (up) and of the output pulse collimated at 2m after the fiber. (b) Autocorrelation trace of the multi-cycle input pulse in red and of the compressed 2-cycle pulse. Dotted lines denote a Gaussian fit.

In conclusion, improving upon the design of the stretched flexible hollow-core fiber scheme, we demonstrated pulse compression to 2-cycles (12 fs) at 1.8 μm wavelength with an energy of 5 mJ at 100 Hz repetition rate. The clean temporal and spatial profile together with a to date unmatched pulse power of 0.42 TW make it a very promising source for a large variety of strong field driven experiments like generation of high harmonics and high-field THz pulses. Further energy scaling seems feasible when using He or Ne as the nonlinear medium instead of Ar, or by employing circularly polarized pulses [267].

10 DIFFRACTION RÉSONANTE AU SEUIL N DU TERBIUM

10.1 HHG avec ytterbium

Malgré nos efforts, nous n'avons jamais pu observer la diffraction résonante au seuil N du terbium dans ALLS. En utilisant un faisceau de 18 fs, 1800 nm dans l'argon, nous avons obtenu un flux HHG de 8×10^4 photons/tir/eV à 155,5 eV. En prenant en compte les efficacités des éléments présents dans la ligne de rayonnement (réflectivité du miroir multicouche, transmission de l'échantillon, transmission des filtres de zirconium et efficacité totale de diffraction), ce flux devrait correspondre à environ 6 comptes/seconde détectables sur la CCD dans les pics de diffraction. Après quelques minutes d'acquisition, et en regroupant les pixels du détecteur, les pics de diffraction auraient dû être discernables.

L'échec de l'expérience dans ALLS est sûrement attribuable au niveau de bruit de lecture de la caméra et à la dispersion angulaire des pics de diffraction, diluant ces comptes dans le bruit de lecture à chaque pixel. Une sous-estimation de l'angle de diffraction due à l'incertitude liée à la caractérisation faite au synchrotron SOLEIL est peut-être aussi en cause.

En collaboration avec le groupe du professeur Andrius Baltuska de l'Université Technique de Vienne, nous avons pu obtenir un flux de 4×10^6 photons/tir/1 % largeur de bande autour de 155 eV en utilisant aussi une source harmonique. Ce facteur 250 de flux supplémentaire (500Hz à Vienne vs 100Hz dans ALLS) a été suffisant pour l'observation de la diffraction résonante au seuil N du terbium, mais a aussi permis la mesure d'une courbe de désaimantation complète en moins d'une heure.

Les impulsions laser utilisées pour générer les harmoniques dans les laboratoires du Prof. Baltuska proviennent d'un amplificateur régénératif qui utilise des cristaux de fluorure de calcium dopés à l'ytterbium (une version mise à jour de la source présentée dans *Pugzlys et al. Opt. Lett. 2009 [268]*). L'utilisation de l'ytterbium comme amplificateur laser permet l'utilisation de hautes énergies par impulsions combinées à un haut taux de répétition/haute puissance moyenne.

La longueur d'onde des sources ytterbium, 1030 nm, est aussi un compromis parfait pour la génération de photons autour de 160 eV. La plus grande longueur d'onde comparée au Ti:Saphir permet d'étendre la fréquence de coupure par un facteur de 1,65, au sacrifice de l'efficacité globale de conversion¹³. À 160 eV, cette efficacité moindre est facilement compensée par l'extension de la fréquence de coupure puisque l'énergie visée n'est plus avoisinante à la coupure, c.-à-d. où l'efficacité de conversion est généralement très faible.

¹³ Selon la réponse d'un atome unique où l'efficacité de génération évolue en λ^{-6} , l'efficacité de conversion devrait être réduite d'un facteur 4. Avec les bons paramètres d'accord de phase, la réduction d'efficacité est moindre.

La source de Vienne fournit des impulsions de 11 mJ, 220 fs à 1030 nm à au taux de répétition de 500 Hz.¹⁴ Les impulsions sont compressées dans une fibre creuse de 3 m de long remplie d'argon sans différentiel de pression. La dispersion est compensée par une série de miroirs dispersifs jusqu'à 25 fs, 8 mJ (efficacité totale de 72 %). Le développement de la technique décrite au chapitre précédent a été crucial pour la compression de cette source ytterbium, et son utilisation pour la génération efficace d'harmoniques d'ordre élevé. Ce travail est publié dans *Fan et al. Soumis 2020* (voir Section 10.3).

¹⁴ Le taux de répétition de la source peut être augmenté jusqu'à 2 kHz sans impact sur l'énergie par impulsion, mais un taux de répétition trop élevé correspond à une puissance moyenne de pompe trop élevée sur l'échantillon magnétique et une puissance du faisceau fondamental trop élevée sur le premier filtre de zirconium.

10.2 Article supplémentaire III – Direct compression of 170-fs 50- cycle pulses down to 1.5 cycles with 70% transmission

Compression directe d'impulsions de 170 fs, 50 cycles, jusqu'à 1,5 cycles avec 70 % de transmission

Young-Gyun Jeong¹, Riccardo Piccoli¹, Denis Ferachou^{1,2}, Vincent Cardin^{1,2}, Michael Chini³, Steffen Hädrich⁴, Jens Limpert^{5,6}, Roberto Morandotti^{7,8}, François Légaré¹, Bruno E. Schmidt² & Luca Razzari¹

1 Centre Énergie Matériaux Télécommunications, Institut National de la Recherche Scientifique (INRS-EMT), 1650 Boulevard Lionel-Boulet, Varennes, Québec, J3X 1S2, Canada.

2 few-cycle Inc., 2890 Rue de Beaurivage, Montréal, Québec, H1L 5W5, Canada.

3 Department of Physics and CREOL, University of Central Florida, Orlando, Florida, 32816, USA.

4 Active Fiber Systems GmbH, Ernst-Ruska-Ring 11, 07745, Jena, Germany.

5 Institute of Applied Physics, Abbe Center of Photonics, Friedrich-Schiller-University Jena, Albert-Einstein-Str. 15, 07745, Jena, Germany.

6 Fraunhofer Institute for Applied Optics and Precision Engineering, Albert-Einstein-Str. 7, 07745, Jena, Germany.

7 ITMO University, 199034, St. Petersburg, Russia.

8 Institute of Fundamental and Frontier Sciences, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu, 610054, Sichuan, China. Scientific Report

Reçu 8 mai 2018

Publié 7 août 2018

<http://dx.doi.org/10.1038/s41598-018-30198-y>

10.2.1 Mise en contexte et résumé

Afin d'illustrer davantage les capacités de la technique de compression d'une source ytterbium dans une fibre creuse, nous résumons ici le travail de *Jeong et al. Sci Report 2018*[42] accompli dans le laboratoire du Professeur Luca Razzari à l'INRS-EMT.

En utilisant une fibre creuse de 6 m de long, un facteur de compression de 33 a été atteint pour des impulsions lasers de 170 fs, 1 mJ provenant d'un laser Yb :KGW commercialement disponible (Pharos, Light Conversion Inc). La fibre de 6 m a un diamètre interne de 500 µm et était remplie d'une pression statique de 2,2 bar d'argon. L'impulsion spectralement élargie est compressée par une série de miroirs dispersifs jusqu'à 5,1 fs. L'efficacité complète du système, incluant les miroirs dispersifs, est de 70 %.

L'article présente une étude systématique des paramètres d'élargissement spectral, avec une concentration particulière sur l'effet de la longueur de la fibre et l'apparition de phénomènes nonlinéaires parasite à des pressions d'argon trop élevées.

10.2.2 Résumé anglais

We present a straightforward route for extreme pulse compression, which relies on moderately driving self-phase modulation (SPM) over an extended propagation distance. This avoids that other detrimental nonlinear mechanisms take over and deteriorate the SPM process. The long propagation is obtained by means of a hollow-core fiber (HCF), up to 6 m in length. This concept is potentially scalable to TW pulse peak powers at kW average power level. As a proof of concept, we demonstrate 33-fold pulse compression of a 1 mJ, 6 kHz, 170 fs Yb laser down to 5.1 fs (1.5 cycles at 1030 nm), by employing a single HCF and subsequent chirped mirrors with an overall transmission of 70%.

10.2.3 Contribution personnelle

- Développement de la technique de compression dans une fibre très longue
- Assistance ponctuelle à l'installation et à l'opération

10.3 Article supplémentaire IV – Time-resolved magnetic micro-spectroscopy with a bright soft-X-ray high-harmonic source

Micro-spectroscopie magnétique résolue en temps avec une source HHG brillante dans les rayons X .

G. Fan¹, K. Légaré², V. Cardin², X. Xie¹, E Kaksis¹, G Andriukaitis¹, A. Pugžlys¹, B. E. Schmidt³, J.P. Wolf⁴, J. Lüning⁵, Z. Tao^{6*}, A. Baltuška¹, F. Légaré² and T. Balčiūnas^{1,4}

¹Institute of Photonics, TU Wien, Gusshausstrasse 27/387, Vienna, Austria

²Institut National de la Recherche Scientifique, Varennes, Quebec J3X1S2, Canada

³few-cycle, Inc., 2890 Rue de Beauvillage, Montreal, Quebec H1L 5W5, Canada

⁴GAP-Biophotonics, Université de Genève, 1205 Geneva, Switzerland

⁵Université Pierre et Marie Curie, LCPMR, UMR CNRS 7614, 75005 Paris, France

⁶State Key Laboratory of Surface Physics, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433, People's Republic of China.

Soumis le 21 janvier 2020 à Physical Review X

Publié sur arXiv le 31 octobre 2019 comme préimpression.

10.3.1 Mise en contexte et résumé

Au laboratoire du Prof. Baltuska, les impulsions courtes sont focalisées sur un tube de cuivre de quelques millimètres de long contenant un flot continu d'hélium à pression contrôlée. Le faisceau fondamental est séparé du faisceau harmonique par deux filtres de zirconium de 200 nm d'épaisseur.

Le reste du montage expérimental reproduit fidèlement le montage utilisé dans ALLS tel que présenté au chapitre 4. Le miroir multicouche utilisé est optimisé pour une réflexion à 155 eV. Sa réflectivité maximale est de 6 %.

La pompe utilisée provient d'un amplificateur paramétrique maison. Nous utilisons une longueur d'onde de 1,5 μm et des impulsions d'une durée de 80 fs. Outre leur disponibilité, la raison principale pour l'utilisation de cette longueur d'onde de pompe est que la caméra utilisée pour observer la diffraction est aveugle (en absorption simple) aux photons d'une longueur d'onde supérieure à 1100 nm. La gestion de la lumière diffuse et la protection de la caméra dans la chambre d'expérience en sont grandement facilitées.

L'échantillon magnétique est un alliage $\text{Co}_{0.9}\text{Tb}_{0.1}$ de 50 nm d'épaisseur. Plus d'informations sont disponibles dans la section méthode de *Fan et al. Soumis 2019*. La figure 4 montre les résultats de l'expérience de désaimantation effectuée à Vienne. Le transfert de vecteur d'onde mesuré en diffraction résonante correspond parfaitement à la transformée de Fourier de l'image obtenue par microscopie de force magnétique (MFM [170]). La dynamique de désaimantation de l'alliage est différente de celle mesurée pour les multicouches $[\text{Co}_{0.6}/\text{Pt}_{0.8}]_{30}$. Elle est beaucoup plus lente.

La dynamique plus lente au seuil du terbium est attendue. Alors que l'orbital magnétique 3d des métaux de transition correspond à la bande de valence du métal, l'orbitale magnétique 4f des terres rares est écrantée par la bande de valence à caractère 5d. Le couplage entre le bain électronique et le bain de spins dans le modèle à trois températures de *Beaurepaire et al. 1996* est donc moins grand, et la dynamique de désaimantation est plus lente [143].

Contrairement à l'expérience effectuée dans ALLS, nous observons ici un changement transitoire de la taille moyenne des domaines, comme indiqué par le changement lent du transfert de vecteur d'onde, $\Delta k/k$. Ce changement correspond à une vitesse des bordures de domaines d'environ 750 m/s, soit une vitesse beaucoup plus rapide que ce qui a été observé avant dans les multicouches de Co/Pt par Pfau *et al.* Nat. Comm. 2012[31]. Ces différences sont probablement aussi attribuables aux mécanismes différents affectant les niveaux magnétiques 4f des terres rares, en comparaison avec les niveaux 3d des métaux de transitions.

10.3.2 Résumé anglais

We demonstrate the first time-resolved X-ray resonant magnetic scattering (Tr-XRMS) experiment at the N edge of Tb at ~ 150 eV performed on a tabletop high-brightness high-harmonic generation (HHG) source. In contrast to static X-ray imaging applications, such optical-pump X-ray probe studies pose a different set of challenges for the ultrafast driver laser because a high photon flux of resonant X-rays must be attained at a low repetition rate through pulse peak power and laser wavelength optimization. We show that fully phase-matched HHG in He and the highest, to our knowledge, photon flux in the 100-220 eV range can be realized with 1- μm driver pulses from a high-energy kHz-repetition-rate Yb solid-state amplifier after pulse post-compression, clearly surpassing the performance of both shorter-wavelength Ti:Saphir few-cycle pulse technology and longwave parametric converters. Our proof-of-concept Tr-XRMS data clearly resolve the spatio-temporal evolution of magnetic domains in Co/Tb ferrimagnetic alloys with femtosecond temporal and nanometer spatial resolution. The demonstrated method opens up new opportunities for time-resolved micro-spectroscopy with element specificity on various magnetic and electronic orderings in condensed matter systems, which demands high photon flux in the extreme ultraviolet (XUV) and soft X-ray regions.

10.3.3 Contribution personnelle

- Développement de la technique de compression dans une fibre très longue.
- Caractérisation de l'échantillon au synchrotron SOLEIL (France).
- Mise en place et opération du montage de XRMS à la TU Wien.
- Prétraitement des résultats durant l'expérience.

11 CONCLUSION

Le but global de ce travail était de démontrer que les sources harmoniques peuvent être d'excellentes sources de rayons X ultrarapides pour sonder la matière, en parfaite complémentarité avec les sources synchrotrons et FELs traditionnelles. L'objectif initial fixé avait été de mesurer la désaimantation ultra-rapide d'un alliage CoTb au seuil N du Terbium.

Si nous n'y sommes pas arrivés dans ALLS. Nous avons finalement atteint notre but dans les laboratoires du professeur Andrius Baltuska, à l'Université technique de Vienne (TUWien). La réussite de l'expérience à Vienne est grandement due au développement, dans ALLS, d'une méthode efficace de compression d'impulsion infrarouges énergétiques. Cette méthode a permis la compression des impulsions provenant de l'amplificateur laser Yb:CaF₂, à Vienne, le rendant idéal comme faisceau fondamental pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé à haut flux jusqu'à 220eV.

Le message final de mon travail est donc scindé en deux parties. La première faisant état du travail fait dans ALLS, à l'INRS :

1. La démonstration de la génération efficace d'harmoniques dans la fenêtre de l'eau permettant la spectroscopie d'absorption en un seul tir laser au seuil K du carbone, ainsi que la démonstration de la dépendance de la longueur d'onde de pompe pour la désaimantation ultra-rapide au seuil M du cobalt démontrent déjà l'utilité de la HHG comme puissantes sources X à l'échelle du laboratoire.

Le second message final fait état du potentiel futur de ces sources. Ce potentiel est rendu possible grâce au développement de la technique de compression par fibre creuse dans ALLS :

2. La compression efficace d'impulsions courtes par HCF, combinée aux laser ytterbium modernes promet le développement futur de ces sources HHG. Notre étude sur la désaimantation au seuil N du terbium offre un avant-goût du potentiel de ces sources.

Ces projets ne s'arrêtent pas ici. La désaimantation ultra-rapide ayant un potentiel technologique intéressant, sa dépendance à la longueur d'onde de pompe mérite d'être étudiée d'avantage, e.g. dans d'autres systèmes magnétiques ou avec des longueurs d'onde encore plus longues pour évaluer la généralité de notre modèle. La technique de compression d'impulsion par fibre creuse peut encore être améliorée pour permettre la compression de faisceaux laser avec une grande puissance moyenne, améliorant d'avantage le flux harmonique atteignable. Les harmoniques dans la fenêtre de l'eau peuvent être utilisés pour l'imagerie de système biologique in-situ. Ce sont toutes des avenues de recherche dans lesquelles les prochains membres du groupe du professeur Légaré pourront à leur tour laisser leurs traces.

12 BIBLIOGRAPHIE

- [1] A. A. Bunaciu, E. Gabriela Udriștioiu, and H. Y. Aboul-Enein, “X-Ray Diffraction: Instrumentation and Applications,” *Crit. Rev. Anal. Chem.*, vol. 45, no. 4, pp. 289–299, Oct. 2015.
- [2] J. R. Maldonado and M. Peckerar, “X-ray lithography: Some history, current status and future prospects,” *Microelectron. Eng.*, vol. 161, pp. 87–93, Aug. 2016.
- [3] A. Thompson et al., X-ray data booklet. LBNL, 2009.
- [4] L. Billings, “How to Make Molecular Movies: Scientist Thomas Allison Explains,” *Scientific American*, 2017. [Online]. Available: <https://www.scientificamerican.com/article/how-to-make-molecular-movies-scientist-thomas-allison-explains/>.
- [5] Diamond Light Source Ltd, “lightsources.org.” [Online]. Available: <https://lightsources.org/lightsources-of-the-world/>.
- [6] M. Buzzi, M. Först, R. Mankowsky, and A. Cavalleri, “Probing dynamics in quantum materials with femtosecond X-rays,” *Nat. Rev. Mater.*, vol. 3, no. 9, pp. 299–311, Sep. 2018.
- [7] Canadian Light Source, “CLS Quick Facts.” [Online]. Available: https://www.lightsources.ca/index.php/cls_quick_facts.
- [8] S. Mobilio, F. Boscherini, and C. Meneghini, *Synchrotron Radiation*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2015.
- [9] S. Khan, “Femtosing in Storage Rings,” *Proc. 2005 Part. Accel. Conf.*, pp. 590–594, 2005.
- [10] M. Labat et al., “Commissioning of a multi-beamline femtoslicing facility at SOLEIL,” *J. Synchrotron Radiat.*, vol. 25, no. 2, pp. 385–398, 2018.
- [11] A. Zholents and M. Zolotarev, “Femtosecond x-ray pulses of synchrotron radiation,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, no. 6, pp. 912–915, Feb. 1996.
- [12] G. Dattoli, M. Del, M. Labat, P. L., and S. Pagnutti, “Introduction to the Physics of Free Electron Laser and Comparison with Conventional Laser Sources,” in *Free Electron Lasers*, InTech, 2012.
- [13] R. Bonifacio, C. Pellegrini, and L. M. Narducci, “Collective instabilities and high-gain regime in a free electron laser,” *Opt. Commun.*, vol. 50, no. 6, pp. 373–378, Jul. 1984.
- [14] M. R. Bionta et al., “Spectral encoding of x-ray/optical relative delay,” *Opt. Express*, vol. 19, no. 22, p. 21855, 2011.
- [15] M. Harmand et al., “Achieving few-femtosecond time-sorting at hard X-ray free-electron lasers,” *Nat. Photonics*, vol. 7, no. February, pp. 1–4, 2013.
- [16] M. R. Bionta et al., “Spectral encoding method for measuring the relative arrival time between x-ray/optical pulses,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 85, no. 8, 2014.
- [17] S. Schulz et al., “Femtosecond all-optical synchronization of an X-ray free-electron laser,” *Nat. Commun.*, vol. 6, pp. 1–11, 2015.
- [18] T. Brabec and F. Krausz, “Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 72, no. 2, pp. 545–591, Apr. 2000.
- [19] P. Agostini and L. F. DiMauro, “The physics of attosecond light pulses,” *Reports Prog. Phys.*, vol. 67, no. 6, pp. 813–855, Jun. 2004.
- [20] T. Pfeifer, C. Spielmann, and G. Gerber, “Femtosecond x-ray science,” *Reports Prog. Phys.*, vol. 69,

- no. 2, pp. 443–505, Feb. 2006.
- [21] F. Krausz and M. Ivanov, “Attosecond physics,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 81, no. 1, pp. 163–234, Feb. 2009.
- [22] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, J. B. Sykes, J. S. Bell, and M. E. Rose, “Quantum Mechanics, Non-Relativistic Theory: Vol. 3 of Course of Theoretical Physics,” *Phys. Today*, vol. 11, no. 12, pp. 56–59, Dec. 1958.
- [23] A.-T. Le, R. Lucchese, S. Tonzani, T. Morishita, and C. Lin, “Quantitative rescattering theory for high-order harmonic generation from molecules,” *Phys. Rev. A*, vol. 80, no. 1, p. 013401, Jul. 2009.
- [24] A. D. Shiner et al., “Observation of Cooper minimum in krypton using high harmonic spectroscopy,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 45, no. 7, p. 74010, 2012.
- [25] B. E. Schmidt et al., “High harmonic generation with long-wavelength few-cycle laser pulses,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 45, no. 7, p. 074008, Apr. 2012.
- [26] L. Young et al., “Roadmap of ultrafast x-ray atomic and molecular physics Recent citations Roadmap of ultrafast x-ray atomic and molecular physics,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. ROADMAP • OPEN ACCESS Robin Santra*, vol. 9, p. 45, 2018.
- [27] L. Young et al., “Roadmap of ultrafast x-ray atomic and molecular physics,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 51, no. 3, p. 032003, 2018.
- [28] J. P. Hill and D. F. McMorrow, “X-ray Resonant Exchange Scattering: Polarization Dependence and Correlation Function,” *Acta Crystallogr. Sect. A Found. Crystallogr.*, vol. 52, no. 2, pp. 236–244, Mar. 1996.
- [29] S. W. Lovesey and S. P. Collins, *X-ray scattering and absorption by magnetic materials*. 1996.
- [30] B. Vodungbo et al., “Table-top resonant magnetic scattering with extreme ultraviolet light from high-order harmonic generation,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 94, no. 5, p. 54003, 01-Jun-2011.
- [31] B. Pfau et al., “Ultrafast optical demagnetization manipulates nanoscale spin structure in domain walls,” *Nat. Commun.*, vol. 3, no. 1100, p. 1100, Oct. 2012.
- [32] B. Vodungbo et al., “Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network,” *Nat. Commun.*, vol. 3, no. 999, p. 999, Aug. 2012.
- [33] S. Eisebitt et al., “Polarization effects in coherent scattering from magnetic specimen: Implications for x-ray holography, lensless imaging, and correlation spectroscopy,” *Phys. Rev. B*, vol. 68, no. 10, p. 104419, Sep. 2003.
- [34] P. Corkum, “Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 71, no. 13, pp. 1994–1997, 1993.
- [35] A. D. Shiner et al., “Wavelength scaling of high harmonic generation efficiency,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 103, no. 7, p. 73902, 2009.
- [36] M. V. Frolov, N. L. Manakov, W.-H. H. Xiong, L.-Y. Y. Peng, J. Burgdörfer, and A. F. Starace, “Scaling laws for high-order-harmonic generation with midinfrared laser pulses,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 92, no. 2, p. 023409, 2015.
- [37] A. D. Shiner et al., “High harmonic cutoff energy scaling and laser intensity measurement with a 1.8 μm laser source,” *J. Mod. Opt.*, vol. 60, no. 17, pp. 1458–1465, Oct. 2013.
- [38] N. Thiré et al., “10 mJ 5-cycle pulses at 1.8 μm through optical parametric amplification,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 106, no. 9, p. 091110, Mar. 2015.
- [39] V. Cardin et al., “Self-channelled high harmonic generation of water window soft x-rays,” *J. Phys. B*

- At. Mol. Opt. Phys., vol. 51, no. 17, p. 174004, Sep. 2018.
- [40] N. X. Truong et al., “Coherent Tabletop EUV Ptychography of Nanopatterns,” *Sci. Rep.*, vol. 8, no. 1, p. 16693, 2018.
- [41] V. Cardin, N. Thiré, S. Beaulieu, V. Wanie, F. Légaré, and B. E. Schmidt, “0.42 TW 2-cycle pulses at 1.8 μm via hollow-core fiber compression,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 107, no. 18, p. 181101, 2015.
- [42] Y.-G. Jeong et al., “Direct compression of 170-fs 50-cycle pulses down to 1.5 cycles with 70% transmission,” *Sci. Rep.*, vol. 8, no. 1, p. 11794, Dec. 2018.
- [43] A. McPherson et al., “Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 4, no. 4, p. 595, 1987.
- [44] K. Schafer, Z. Wei, and M. Vrakking, “Special issue celebrating 25 years of re-collision physics,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 50, no. 17, p. 170201, 2017.
- [45] J. J. Macklin, J. D. Kmetec, and C. L. Gordon, “High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 70, no. 6, pp. 766–769, Feb. 1993.
- [46] A. L’Huillier and P. Balcou, “High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 70, no. 6, pp. 774–777, 1993.
- [47] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses,” *Opt. Commun.*, vol. 56, no. 3, pp. 219–221, Dec. 1985.
- [48] L. Keldysh, “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave,” *Sov. Phys. JETP*, vol. 20, no. 5, pp. 1307–1314, 1965.
- [49] P. B. Corkum and F. Krausz, “Attosecond science,” *Nat Phys*, vol. 3, pp. 381–387, 2007.
- [50] J.-P. Connerade, *Highly Excited Atoms*. Cambridge: Cambridge University Press, 1998.
- [51] T. Schultz and M. Vrakking, *Attosecond and XUV Physics*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2014.
- [52] M. Möller et al., “Dependence of high-order-harmonic-generation yield on driving-laser ellipticity,” *Phys. Rev. A*, vol. 86, no. 1, p. 011401, Jul. 2012.
- [53] M. Bellini et al., “Temporal Coherence of Ultrashort High-Order Harmonic Pulses,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 81, no. 2, pp. 297–300, Jul. 1998.
- [54] P. Rudawski et al., “A high-flux high-order harmonic source,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 84, no. 7, 2013.
- [55] G. L. Yudin and M. Y. Ivanov, “Nonadiabatic tunnel ionization: Looking inside a laser cycle,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 64, no. 1, p. 4, 2001.
- [56] S. M. Hankin, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, and D. M. Rayner, “Intense-field laser ionization rates in atoms and molecules,” *Phys. Rev. A. At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 64, no. 1, pp. 134051–1340512, 2001.
- [57] T. Popmintchev, M.-C. Chen, P. Arpin, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, “The attosecond nonlinear optics of bright coherent X-ray generation,” *Nat. Photonics*, vol. 4, no. 12, pp. 822–832, Dec. 2010.
- [58] T. Popmintchev et al., “Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard X-ray regions of the spectrum,” *Proc. Natl. Acad. Sci.*, vol. 106, no. 26, pp. 10516–10521, Jun. 2009.
- [59] T. Popmintchev et al., “Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers,” *Science (80-.)*, vol. 336, no. 6086, pp. 1287–1291, Jun. 2012.
- [60] R. Kienberger et al., “Atomic transient recorder,” *Nature*, vol. 427, no. 6977, pp. 817–821, Feb. 2004.

- [61] Z. Chang, “Chirp of the single attosecond pulse generated by a polarization gating,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 71, no. 2, pp. 1–6, 2005.
- [62] G. Sansone et al., “Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses,” *Science (80-.)*, vol. 314, no. 5798, pp. 443–446, Oct. 2006.
- [63] T. J. Hammond, G. G. Brown, K. T. Kim, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, “Attosecond pulses measured from the attosecond lighthouse,” *Nat. Photonics*, vol. 10, no. 3, pp. 171–175, 2016.
- [64] P. M. Paul et al., “Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation,” *Science (80-.)*, vol. 292, no. 5522, pp. 1689–1692, 2001.
- [65] H. G. Muller, “Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions,” *Appl. Phys. B*, vol. 74, no. S1, pp. s17–s21, Jun. 2002.
- [66] S. A. Aseyev, Y. Ni, L. J. Frasinski, H. G. Muller, and M. J. J. Vrakking, “Attosecond Angle-Resolved Photoelectron Spectroscopy,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 91, no. 22, p. 223902, Nov. 2003.
- [67] Y. Mairesse, “Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-rays,” *Science (80-.)*, vol. 302, no. 5650, pp. 1540–1543, Nov. 2003.
- [68] R. López-Martens et al., “Amplitude and Phase Control of Attosecond Light Pulses,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, no. 3, p. 033001, Jan. 2005.
- [69] M. Drescher et al., “X-ray pulses approaching the attosecond frontier,” *Science (80-.)*, vol. 291, no. 5510, pp. 1923–1927, 2001.
- [70] M. Hentschel et al., “Attosecond metrology,” *Nature*, vol. 414, no. 6863, pp. 509–513, Nov. 2001.
- [71] T. Gaumnitz et al., “Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver,” *Opt. Express*, vol. 25, no. 22, p. 27506, Oct. 2017.
- [72] M. C. Chen et al., “Bright, coherent, ultrafast soft x-ray harmonics spanning the water window from a tabletop light source,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 105, no. 17, p. 173901, 2010.
- [73] N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, “Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle infrared pulses,” *Nat. Commun.*, vol. 5, pp. 1–1, Feb. 2014.
- [74] S. L. Cousin, F. Silva, S. Teichmann, M. Hemmer, B. Buades, and J. Biegert, “High-flux table-top soft x-ray source driven by sub-2-cycle, CEP stable, 185- μm 1-kHz pulses for carbon K-edge spectroscopy,” *Opt. Lett.*, vol. 39, no. 18, p. 5383, 2014.
- [75] G. J. Stein et al., “Water-window soft x-ray high-harmonic generation up to the nitrogen K-edge driven by a kHz, 2.1 μm OPCPA source,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 49, no. 15, p. 155601, 2016.
- [76] S. M. Teichmann, F. Silva, S. L. Cousin, M. Hemmer, and J. Biegert, “0.5-keV Soft X-ray attosecond continua,” *Nat. Commun.*, vol. 7, no. May, p. 11493, May 2016.
- [77] D. Popmintchev et al., “Near- and Extended-Edge X-Ray-Absorption Fine-Structure Spectroscopy Using Ultrafast Coherent High-Order Harmonic Supercontinua,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 120, no. 9, pp. 1–6, 2018.
- [78] N. Thiré et al., “10 mJ 5-cycle pulses at 1.8 μm through optical parametric amplification,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 106, p. 091110, 2015.
- [79] G. Vampa et al., “All-Optical Reconstruction of Crystal Band Structure,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 115, no. 19, p. 193603, Nov. 2015.
- [80] R. Cireasa et al., “Probing molecular chirality on a sub-femtosecond timescale,” *Nat. Phys.*, vol. 11, no. 8, pp. 654–658, 2015.

- [81] a. D. Shiner et al., “Probing collective multi-electron dynamics in xenon with high-harmonic spectroscopy,” *Nat. Phys.*, vol. 7, no. 6, pp. 464–467, Mar. 2011.
- [82] P. M. Paul et al., “Observation of a train of attosecond pulse from high harmonic generation,” *Science* (80-.), vol. 292, no. June, pp. 1689–1692, 2001.
- [83] J. Li et al., “53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge,” *Nat. Commun.*, vol. 8, no. 1, p. 186, Dec. 2017.
- [84] M. Chini et al., “Delay control in attosecond pump-probe experiments,” *Opt. Express*, vol. 17, no. 24, p. 21459, Nov. 2009.
- [85] M. Zürich et al., “Direct and simultaneous observation of ultrafast electron and hole dynamics in germanium,” *Nat. Commun.*, vol. 8, p. 15734, Jun. 2017.
- [86] Y. Pertot et al., “Time-resolved x-ray absorption spectroscopy with a water window high-harmonic source,” *Science* (80-.), vol. 355, no. 6322, pp. 264–267, Jan. 2017.
- [87] D. Rupp et al., “Coherent diffractive imaging of single helium nanodroplets with a high harmonic generation source,” *Nat. Commun.*, vol. 8, no. 1, pp. 1–7, 2017.
- [88] J.-F. F. Adam, J.-P. P. Moy, and J. Susini, “Table-top water window transmission x-ray microscopy: Review of the key issues, and conceptual design of an instrument for biology,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 76, no. 9, p. 091301, Sep. 2005.
- [89] S. Fuchs et al., “Optical coherence tomography with nanoscale axial resolution using a laser-driven high-harmonic source,” *Optica*, vol. 4, no. 8, p. 903, 2017.
- [90] J. Rothhardt, M. Krebs, S. Hädrich, S. Demmler, J. Limpert, and A. Tünnermann, “Absorption-limited and phase-matched high harmonic generation in the tight focusing regime,” *New J. Phys.*, vol. 16, p. 033022, 2014.
- [91] C. M. Heyl et al., “Scale-invariant nonlinear optics in gases,” *Optica*, vol. 3, no. 1, p. 75, Jan. 2016.
- [92] J. Bouillet et al., “High-order harmonic generation at a megahertz-level repetition rate directly driven by an ytterbium-doped-fiber chirped-pulse amplification system,” *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 9, p. 1489, May 2009.
- [93] S. Fuchs et al., “Sensitivity calibration of an imaging extreme ultraviolet spectrometer-detector system for determining the efficiency of broadband extreme ultraviolet sources,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 84, no. 2, p. 023101, Feb. 2013.
- [94] S. Hädrich et al., “High harmonic generation by novel fiber amplifier based sources,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 19, p. 20242, Sep. 2010.
- [95] S. Hädrich et al., “Generation of μW level plateau harmonics at high repetition rate.,” *Opt. Express*, vol. 19, no. 20, pp. 19374–83, Sep. 2011.
- [96] C. M. Heyl, J. GÜdde, A. Lhuillier, and U. Höfer, “High-order harmonic generation with uJ laser pulses at high repetition rates,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 45, no. 7, 2012.
- [97] F. Lindner et al., “High-order harmonic generation at a repetition rate of 100 kHz,” *Phys. Rev. A*, vol. 68, no. 1, p. 013814, Jul. 2003.
- [98] A. Vernaleken et al., “Single-pass high-harmonic generation at 208 MHz repetition rate,” *Opt. Lett.*, vol. 36, no. 17, p. 3428, 2011.
- [99] E. Constant et al., “Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 82, no. 8, pp. 1668–1671, 1999.
- [100] C. G. Durfee, A. R. Rundquist, S. Backus, C. Herne, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, “Phase

- Matching of High-Order Harmonics in Hollow Waveguides,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 83, no. 11, pp. 2187–2190, Sep. 1999.
- [101] A. Rundquist et al., “Phase-matched generation of coherent soft x-rays,” *Science* (80-.), vol. 280, no. 5368, pp. 1412–1415, May 1998.
- [102] E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka, M. Obara, and K. Midorikawa, “Generation of highly coherent submicrojoule soft x rays by high-order harmonics,” *Phys. Rev. A*, vol. 66, no. 2, p. 021802, 2002.
- [103] Y. Tamaki, J. Itatani, Y. Nagata, M. Obara, and K. Midorikawa, “Highly efficient, phase-matched high-harmonic generation by a self-guided laser beam,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 82, no. 7, pp. 1422–1425, 1999.
- [104] Y. Tamaki, J. Itatani, M. Obara, and K. Midorikawa, “Optimization of conversion efficiency and spatial quality of high-order harmonic generation,” *Phys. Rev. A*, vol. 62, no. 6, p. 063802, Nov. 2000.
- [105] Y. Tamaki, Y. Nagata, M. Obara, and K. Midorikawa, “Phase-matched high-order-harmonic generation in a gas-filled hollow fiber,” *Phys. Rev. A*, vol. 59, no. 5, pp. 4041–4044, May 1999.
- [106] J.-P. Brichta, M. C. H. Wong, J. B. Bertrand, H.-C. Bandulet, D. M. Rayner, and V. R. Bhardwaj, “Comparison and real-time monitoring of high-order harmonic generation in different sources,” *Phys. Rev. A*, vol. 79, no. 3, p. 033404, 2009.
- [107] R. Klas et al., “Table-top milliwatt-class extreme ultraviolet high harmonic light source,” *Optica*, vol. 3, no. 11, p. 1167, Nov. 2016.
- [108] H. Wang, Y. Xu, S. Ulonska, J. S. Robinson, P. Ranitovic, and R. A. Kaindl, “Bright high-repetition-rate source of narrowband extreme-ultraviolet harmonics beyond 22 eV,” *Nat. Commun.*, vol. 6, no. May, pp. 1–7, Dec. 2015.
- [109] B. E. Schmidt, A. Hage, T. Mans, F. Légaré, and H. J. Wörner, “Highly stable, 54mJ Yb-InnoSlab laser platform at 05kW average power,” *Opt. Express*, vol. 25, no. 15, p. 17549, Jul. 2017.
- [110] S. Demmler et al., “Generation of high photon flux coherent soft x-ray radiation with few-cycle pulses,” *Opt. Lett.*, vol. 38, no. 23, pp. 5051–5054, 2013.
- [111] A. S. Johnson et al., “High-flux soft x-ray harmonic generation from ionization-shaped few-cycle laser pulses,” *Sci. Adv.*, vol. 4, no. 5, p. eaar3761, May 2018.
- [112] E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, “Coherent Water Window X Ray by Phase-Matched High-Order Harmonic Generation in Neutral Media,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 101, no. 25, p. 253901, Dec. 2008.
- [113] M. Krebs et al., “53 W Average Power Energetic Few-Cycle Pulses for High-Field Physics,” in *Advanced Solid State Lasers*, 2014, p. AF4A.5.
- [114] V.-M. Gkortsas, S. Bhardwaj, E. L. Falcão-Filho, K.-H. Hong, A. Gordon, and F. X. Kärtner, “Scaling of high harmonic generation conversion efficiency,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 44, no. 4, p. 045601, Feb. 2011.
- [115] A. Comby, S. Beaulieu, E. Constant, D. Descamps, S. Petit, and Y. Mairesse, “Absolute gas density profiling in high-order harmonic generation,” *Opt. Express*, vol. 26, no. 5, p. 6001, Mar. 2018.
- [116] B. E. Schmidt et al., “Frequency domain optical parametric amplification,” *Nat. Commun.*, vol. 5, no. May, pp. 1–8, May 2014.
- [117] V. Gruson et al., “2.5 TW, two-cycle IR laser pulses via frequency domain optical parametric amplification,” *Opt. Express*, vol. 25, no. 22, p. 27706, Oct. 2017.
- [118] H. T. Kim et al., “Optimization of high-order harmonic brightness in the space and time domains,”

- Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys., vol. 69, no. 3, pp. 1–4, 2004.
- [119] V. Tosa, E. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, “Generation of high-order harmonics in a self-guided beam,” *Phys. Rev. A*, vol. 67, no. 6, p. 063817, Jun. 2003.
- [120] K. Kovacs, V. Tosa, B. Major, E. Balogh, and K. Varju, “High efficiency single attosecond pulse generation with a long wavelength pulse assisted by a weak near infrared pulse,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 21, no. 5, p. 8700207, 2015.
- [121] M. Lewenstein, P. Salières, and A. L’Huillier, “Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation,” *Phys. Rev. A*, vol. 52, no. 6, pp. 4747–4754, Dec. 1995.
- [122] M. L. M. Lalieu, R. Lavrijsen, and B. Koopmans, “Integrating all-optical switching with spintronics,” *Nat. Commun.*, no. 2019, pp. 1–6.
- [123] V. Bakshi, “Understanding EUV Lithography: The technology that enables extension of Moore’s Law,” *SPIE Newsroom*, Jul. 2018.
- [124] V. Bakshi, *EUV lithography*, 2nd Editio. 2018.
- [125] D. F. Gardner et al., “Subwavelength coherent imaging of periodic samples using a 13.5 nm tabletop high-harmonic light source,” *Nat. Photonics*, vol. 11, no. 4, pp. 259–263, 2017.
- [126] E. L. Falcão-Filho et al., “Scaling of high-order harmonic efficiencies with visible wavelength drivers: A route to efficient extreme ultraviolet sources,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 97, no. 6, pp. 1–4, 2010.
- [127] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, “Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, no. 22, pp. 4250–4253, May 1996.
- [128] I. Tudosa et al., “The ultimate speed of magnetic switching in granular recording media,” *Nature*, vol. 428, no. 6985, pp. 831–833, 2004.
- [129] T. H. Gerrits, H. A. M. van den Berg, J. Hohlfeld, L. BÄR, and T. H. Rasing, “Ultrafast precessional magnetization reversal by picosecond magnetic-field pulse shaping,” *Nature*, vol. 418, p. 509, 2002.
- [130] C. La-O-Vorakiat et al., “Ultrafast Demagnetization Measurements Using Extreme Ultraviolet Light: Comparison of Electronic and Magnetic Contributions,” *Phys. Rev. X*, vol. 2, no. 1, p. 011005, Jan. 2012.
- [131] E. Jal et al., “Structural dynamics during laser-induced ultrafast demagnetization,” *Phys. Rev. B*, vol. 95, no. 18, pp. 1–8, 2017.
- [132] F. Dalla Longa, J. T. Kohlhepp, W. J. M. De Jonge, and B. Koopmans, “Influence of photon angular momentum on ultrafast demagnetization in nickel,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 75, no. 22, pp. 1–4, Jun. 2007.
- [133] G. Malinowski et al., “Control of speed and efficiency of ultrafast demagnetization by direct transfer of spin angular momentum,” *Nat. Phys.*, vol. 4, no. 11, pp. 855–858, 2008.
- [134] C. Boeglin et al., “Distinguishing the ultrafast dynamics of spin and orbital moments in solids,” *Nature*, vol. 465, no. 7297, pp. 458–461, May 2010.
- [135] L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot, “Magneto-optics in the ultrafast regime: thermalization of spin populations in ferromagnetic films,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 89, no. 1, p. 017401, Jun. 2002.
- [136] M. Battiato, K. Carva, and P. M. Oppeneer, “Superdiffusive Spin Transport as a Mechanism of Ultrafast Demagnetization,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 105, no. 2, p. 027203, Jul. 2010.
- [137] A. Eschenlohr et al., “Ultrafast spin transport as key to femtosecond demagnetization,” *Nat. Mater.*, vol. 12, no. 4, pp. 332–336, Apr. 2013.

- [138] V. López-Flores et al., “Role of critical spin fluctuations in ultrafast demagnetization of transition-metal rare-earth alloys,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 87, no. 21, p. 214412, Jun. 2013.
- [139] N. Bergeard et al., “Ultrafast angular momentum transfer in multisublattice ferrimagnets,” *Nat. Commun.*, vol. 5, p. 3466, Jan. 2014.
- [140] R. Gort et al., “Early Stages of Ultrafast Spin Dynamics in a 3d Ferromagnet,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 121, no. 8, p. 87206, 2018.
- [141] S. Essert and H. C. Schneider, “Electron-phonon scattering dynamics in ferromagnetic metals and their influence on ultrafast demagnetization processes,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 84, no. 22, pp. 1–11, Dec. 2011.
- [142] G. Rohde et al., “Does the excitation wavelength affect the ultrafast quenching dynamics of the charge-density wave in 1T-TiSe₂?” *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena*, vol. 195, pp. 244–248, Aug. 2014.
- [143] B. Koopmans et al., “Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization,” *Nat. Mater.*, vol. 9, no. 3, pp. 259–65, Mar. 2010.
- [144] M. Fähnle et al., “Review of Ultrafast Demagnetization After Femtosecond Laser Pulses : A Complex Interaction of Light with Quantum Matter,” *Am. J. Mod. Phys.*, vol. 7, no. 2, pp. 68–74, 2018.
- [145] S. Mathias et al., “Probing the timescale of the exchange interaction in a ferromagnetic alloy,” *Proc. Natl. Acad. Sci.*, vol. 109, no. 13, pp. 4792–4797, Mar. 2012.
- [146] Z. Vardeny and J. Tauc, “Picosecond coherence coupling in the pump and probe technique,” *Opt. Commun.*, vol. 39, no. 6, pp. 396–400, Nov. 1981.
- [147] S. Sugano and N. Kojima, *Magneto-optics*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2000.
- [148] P. M. Oppeneer, *Theory of the magneto-optical Kerr effect in ferromagnetic compounds*. Technische Universität Dresden, 1999.
- [149] M. F. Tesch, M. C. Gilbert, H.-C. Mertins, D. E. Bürgler, U. Berges, and C. M. Schneider, “X-ray magneto-optical polarization spectroscopy: an analysis from the visible region to the x-ray regime,” *Appl. Opt.*, vol. 52, no. 18, pp. 4294–310, 2013.
- [150] T. Miyazaki and H. Jin, *The Physics of Ferromagnetism*, vol. 158. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2012.
- [151] M. Mallary, A. Torabi, and M. Benakli, “One terabit per square inch perpendicular recording conceptual design,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 38, no. 4, pp. 1719–1724, 2002.
- [152] J.-Y. Bigot, M. Vomir, and E. Beaurepaire, “Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses,” *Nat. Phys.*, vol. 5, no. 7, pp. 515–520, 2009.
- [153] B. Koopmans, M. Van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. De Jonge, “Ultrafast magneto-optics in nickel: magnetism or optics?” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, no. 4, pp. 844–847, 2000.
- [154] G. P. Zhang, W. Hübner, G. Lefkidis, Y. Bai, and T. F. George, “Paradigm of the time-resolved magneto-optical Kerr effect for femtosecond magnetism,” *Nat. Phys.*, vol. 5, no. 7, pp. 499–502, Jul. 2009.
- [155] K. Carva et al., “Reply: Is the controversy over femtosecond magneto-optics really solved?” *Nat. Phys.*, vol. 7, no. 9, pp. 665–666, Sep. 2011.
- [156] A. Rogalev, F. Wilhelm, N. Jaouen, J. Goulon, and J.-P. Kappler, “X-ray Magnetic Circular Dichroism: Historical Perspective and Recent Highlights,” in *Magnetism: A Synchrotron Radiation*

Approach, Springer Berlin Heidelberg, pp. 71–93.

- [157] A. Kleibert, V. Senz, J. Bansmann, and P. M. Oppeneer, “Thickness dependence and magnetocrystalline anisotropy of the x-ray transverse magneto-optical Kerr effect at the Co2p edges of ultrathin Co films on W(110),” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 72, no. 14, pp. 1–10, 2005.
- [158] M. Hecker, P. M. Oppeneer, S. Valencia, H. C. Mertins, and C. M. Schneider, “Soft X-ray magnetic reflection spectroscopy at the 3p absorption edges of thin Fe films,” *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena*, vol. 144–147, pp. 881–884, 2005.
- [159] P. Grychtol, R. Adam, S. Valencia, S. Cramm, D. E. Bürgler, and C. M. Schneider, “Resonant magnetic reflectivity in the extreme ultraviolet spectral range: Interlayer-coupled Co/Si/Ni/Fe multilayer system,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 82, no. 5, pp. 1–8, 2010.
- [160] C. Alves et al., “Faraday effect using high order harmonics for ultrafast demagnetization applications,” in *2017 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC)*, 2017, pp. 1–1.
- [161] J. Hannon, G. Trammell, M. Blume, and D. Gibbs, “X-ray resonance exchange scattering,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 62, no. 14, pp. 1671–1674, Apr. 1988.
- [162] M. Blume, “Magnetic scattering of x rays (invited),” *J. Appl. Phys.*, vol. 57, no. 8, p. 3615, 1985.
- [163] M. Blume and D. Gibbs, “Polarization dependence of magnetic x-ray scattering,” *Phys. Rev. B*, vol. 37, no. 4, 1988.
- [164] J. B. Kortright and S. K. Kim, “Resonant magneto-optical properties of Fe near its 2p levels: Measurement and applications,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 62, no. 18, pp. 12216–12228, 2000.
- [165] C. Gutt et al., “Single-pulse resonant magnetic scattering using a soft x-ray free-electron laser,” *Phys. Rev. B*, vol. 81, no. 10, p. 100401, Mar. 2010.
- [166] B. Thole, P. Carra, F. Sette, and G. Van Der Laan, “X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 68, no. 12, pp. 1943–1946, 1992.
- [167] P. Carra, B. Thole, M. Altarelli, and X. Wang, “X-ray circular dichroism and local magnetic fields,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 70, no. 5, pp. 3–6, 1993.
- [168] J. Stöhr and H. König, “Determination of spin-and orbital-moment anisotropies in transition metals by angle-dependent X-ray magnetic circular dichroism,” *Phys. Rev. Lett.*, 1995.
- [169] O. Hellwig, G. P. Denbeaux, J. B. Kortright, and E. E. Fullerton, “X-ray studies of aligned magnetic stripe domains in perpendicular multilayers,” *Phys. B Condens. Matter*, vol. 336, no. 1–2, pp. 136–144, 2003.
- [170] U. Hartmann, “MAGNETIC FORCE MICROSCOPY,” *Annu. Rev. Mater. Sci.*, vol. 29, no. 1, pp. 53–87, Aug. 1999.
- [171] R. W. Schoenlein, W. Z. Lin, J. G. Fujimoto, and G. L. Eesley, “Femtosecond studies of nonequilibrium electronic processes in metals,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 58, no. 16, pp. 1680–1683, 1987.
- [172] N. Del Fatti, C. Voisin, M. Achermann, S. Tzortzakis, D. Christofilos, and F. Vallée, “Nonequilibrium electron dynamics in noble metals,” *Phys. Rev. B*, vol. 61, no. 24, pp. 16956–16966, 2000.
- [173] P. Tengdin et al., “Critical behavior within 20 fs drives the out-of-equilibrium laser-induced magnetic phase transition in nickel,” *Sci. Adv.*, vol. 4, no. 3, pp. 1–9, Mar. 2018.
- [174] X. Liu et al., “Dynamics of magnetization, reversal, and ultrafast demagnetization of TbFeCo

- amorphous films,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 23, p. 232501, Jun. 2008.
- [175] N. Moisan et al., “Investigating the role of superdiffusive currents in laser induced demagnetization of ferromagnets with nanoscale magnetic domains,” *Sci. Rep.*, vol. 4, p. 4658, Jan. 2014.
- [176] C. Von Korff Schmising, M. Giovannella, D. Weder, S. Schaffert, J. L. Webb, and S. Eisebitt, “Nonlocal ultrafast demagnetization dynamics of Co/Pt multilayers by optical field enhancement,” *New J. Phys.*, vol. 17, pp. 1–8, 2015.
- [177] T. Wang et al., “Femtosecond Single-Shot Imaging of Nanoscale Ferromagnetic Order in Co/Pd Multilayers Using Resonant X-Ray Holography,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, no. 26, pp. 1–6, Jun. 2012.
- [178] K. Bobowski et al., “Influence of the pump pulse wavelength on the ultrafast demagnetization of Gd(0 0 1) thin films,” *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 29, no. 23, p. 234003, Jun. 2017.
- [179] U. Bierbrauer et al., “Ultrafast magnetization dynamics in Nickel: impact of pump photon energy,” *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 29, no. 24, p. 244002, Jun. 2017.
- [180] S. Pan, O. Hellwig, and A. Barman, “Controlled coexcitation of direct and indirect ultrafast demagnetization in Co/Pd multilayers with large perpendicular magnetic anisotropy,” *Phys. Rev. B*, vol. 98, no. 21, pp. 1–7, Dec. 2018.
- [181] N. W. Ashcroft and N. S. Mermin, “Solid State Physics,” 1st Editio., Brooks Cole, 1976.
- [182] M. P. Marder, *Condensed Matter Physics*. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc., 2010.
- [183] C. Kittel, *Introduction to solid state physics*, 8th Editio. Wiley, 2004.
- [184] P. Drude, “Zur Elektronentheorie der Metalle,” *Ann. Phys.*, vol. 306, no. 3, pp. 566–613, 1900.
- [185] P. Drude, “Zur Elektronentheorie der Metalle; II. Teil. Galvanomagnetische und thermomagnetische Effecte,” *Ann. Phys.*, vol. 308, no. 11, pp. 369–402, 1900.
- [186] P. G. Etchegoin, E. C. Le Ru, and M. Meyer, “An analytic model for the optical properties of gold,” *J. Chem. Phys.*, vol. 125, no. 16, pp. 1–3, 2006.
- [187] A. Sommerfeld, “Zur Elektronentheorie der Metalle auf Grund der Fermischen Statistik,” *Zeitschrift für Phys.*, vol. 47, no. 1–2, pp. 1–32, Jan. 1928.
- [188] E. A. J. Marcatili and R. A. Schmelzter, “Hollow Metallic and Dielectric Waveguides for Long Distance Optical Transmission and Lasers,” *Bell Syst. Tech. J.*, vol. 43, no. 4, pp. 1783–1809, Jul. 1964.
- [189] S. Adachi, *The Handbook on Optical Constants of Metals*. WORLD SCIENTIFIC, 2012.
- [190] C. Vicario et al., “Off-resonant magnetization dynamics phase-locked to an intense phase-stable terahertz transient,” *Nat. Photonics*, vol. 7, no. 9, pp. 720–723, Aug. 2013.
- [191] M. Clerici et al., “Wavelength Scaling of Terahertz Generation by Gas Ionization,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, no. 25, p. 253901, 2013.
- [192] D. Polley, M. Pancaldi, M. Hudl, P. Vavassori, S. Urazhdin, and S. Bonetti, “THz-driven demagnetization with perpendicular magnetic anisotropy: towards ultrafast ballistic switching,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 51, no. 8, p. 084001, Feb. 2018.
- [193] G. P. Zhang, W. Hübner, G. Lefkidis, Y. Bai, and T. F. George, “Paradigm of the time-resolved magneto-optical Kerr effect for femtosecond magnetism,” *Nat. Phys.*, vol. 5, no. 7, pp. 499–502, 2009.
- [194] K. Krieger et al., “Ultrafast demagnetization in bulk versus thin films: An ab initio study,” *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 29, no. 22, pp. 1–12, Jun. 2017.

- [195] W. You 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.*, vol. 121, no. 7, p. 77204, Aug. 2018.
- [196] G. Salvatella, R. Gort, K. Bühlmann, S. Däster, A. Vaterlaus, and Y. Acremann, “Ultrafast demagnetization by hot electrons: Diffusion or super-diffusion?,” *Struct. Dyn.*, vol. 3, no. 5, p. 055101, Sep. 2016.
- [197] N. Bergeard et al., “Hot-Electron-Induced Ultrafast Demagnetization in Co/Pt Multilayers,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 117, no. 14, p. 147203, Sep. 2016.
- [198] B. Vodungbo et al., “Indirect excitation of ultrafast demagnetization,” *Sci. Rep.*, vol. 6, no. 1, p. 18970, May 2016.
- [199] R. H. M. M. Groeneveld, R. Sprik, and A. Lagendijk, “Effect of a nonthermal electron distribution on the electron-phonon energy relaxation process in noble metals,” *Phys. Rev. B*, vol. 45, no. 9, pp. 5079–5082, Mar. 1992.
- [200] V. Halté, J.-Y. Bigot, B. Palpant, M. Broyer, B. Prével, and A. Pérez, “Size dependence of the energy relaxation in silver nanoparticles embedded in dielectric matrices,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 75, no. 24, pp. 3799–3801, Dec. 1999.
- [201] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, “Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel,” *Physical Review Letters*, vol. 76, no. 22, pp. 4250–4253, 1996.
- [202] A. G. Mathewson and H. P. Myers, “Absolute Values of The Optical Constants of Some Pure Metals,” *Phys. Scr.*, vol. 4, no. 6, pp. 291–292, 1971.
- [203] W. S. M. Werner, K. Glantschnig, and C. Ambrosch-Draxl, “Optical constants and inelastic electron-scattering data for 17 elemental metals,” *J. Phys. Chem. Ref. Data*, vol. 38, no. 4, pp. 1013–1092, 2009.
- [204] P. B. Johnson and R. W. Christy, “Optical constants of transition metals,” *Phys. Rev. B*, vol. 9, no. 12, pp. 5056–5070, 1974.
- [205] N. Cabrera and N. F. Mott, “Theory of the oxidation of metals,” *Reports Prog. Phys.*, vol. 12, no. 1, p. 308, Jan. 1949.
- [206] N. Cai, G. Zhou, K. Müller, and D. E. Starr, “Tuning the Limiting Thickness of a Thin Oxide Layer on Al(111) with Oxygen Gas Pressure,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 107, no. 3, p. 035502, Jul. 2011.
- [207] N. Cai, G. Zhou, K. Müller, and 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*, vol. 84, no. 12, p. 125445, Sep. 2011.
- [208] L. Wang, P. Han, Z. Zhang, C. Zhang, and B. Xu, “Effects of thickness on the structural, electronic, and optical properties of MgF₂ thin films: The first-principles study,” *Comput. Mater. Sci.*, vol. 77, pp. 281–285, Sep. 2013.
- [209] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, 7th Ed. New York: Cambridge University Press, 1999.
- [210] F. Ahmed, “For scientific ultrashort-pulse lasers, the sky is not the limit,” *Photonics Spectra*, Feb-2019.
- [211] W. F. Krupke, “Ytterbium solid-state lasers. The first decade,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 6, no. 6, pp. 1287–1296, Nov. 2000.
- [212] F. Canova et al., “Complete characterization of damage threshold in titanium doped sapphire crystals with nanosecond, picosecond, and femtosecond laser pulses,” in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2005*, 2005, vol. 5991, no. 0, p. 599123.

- [213] B. Bussi re et al., “Bulk laser-induced damage threshold of titanium-doped sapphire crystals,” *Appl. Opt.*, vol. 51, no. 32, p. 7826, 2012.
- [214] J. Fischer, A.-C. Heinrich, S. Maier, J. Jungwirth, D. Brida, and A. Leitenstorfer, “615 fs pulses with 17 mJ energy generated by an Yb:thin-disk amplifier at 3 kHz repetition rate,” *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 2, p. 246, 2016.
- [215] H. Burton, C. Debardeleben, W. Amir, and T. A. Planchon, “Temperature dependence of Ti:Sapphire fluorescence spectra for the design of cryogenic cooled Ti:Sapphire CPA laser,” *Opt. Express*, vol. 25, no. 6, p. 6954, 2017.
- [216] R. Paschotta, J. Nilsson, A. C. Tropper, and D. C. Hanna, “Ytterbium-doped fiber amplifiers,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 33, no. 7, pp. 1049–1056, Jul. 1997.
- [217] P. Aballea et al., “Laser performance of diode-pumped Yb:CaF₂ optical ceramics synthesized using an energy-efficient process,” *Optica*, vol. 2, no. 4, p. 288, 2015.
- [218] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, “Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 68, no. 20, p. 2793, 1996.
- [219] C. F. Dutin, A. Dubrouil, S. Petit, E. M vel, E. Constant, and D. Descamps, “Post-compression of high-energy femtosecond pulses using gas ionization,” *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 2, p. 253, Jan. 2010.
- [220] S. Bohman, A. Suda, T. Kanai, S. Yamaguchi, and K. Midorikawa, “Generation of 5.0 fs, 5.0 mJ pulses at 1kHz using hollow-fiber pulse compression,” *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 11, pp. 1887–9, Jun. 2010.
- [221] J. Rothhardt et al., “53 W average power few-cycle fiber laser system generating soft X-rays up to the water window,” *Opt. Lett.*, vol. 39, no. 17, pp. 5224–5227, Sep. 2014.
- [222] T. Nagy, M. Forster, and P. Simon, “Flexible hollow fiber for pulse compressors,” *Appl. Opt.*, vol. 47, no. 18, pp. 3264–8, Jun. 2008.
- [223] T. Nagy, V. Pervak, and P. Simon, “Optimal pulse compression in long hollow fibers,” *Opt. Lett.*, vol. 36, no. 22, pp. 4422–4, Nov. 2011.
- [224] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*. Boston, MA: Academic Press, 1995.
- [225] R. Boyd, *Nonlinear optics*, 3rd Editio. Academic Press, 2008.
- [226] G. Fan et al., “Hollow-core-waveguide compression of multi-millijoule CEP-stable 3.2 μm pulses,” *Optica*, vol. 3, no. 12, p. 1308, 2016.
- [227] M. Miyagi, “Bending losses in hollow and dielectric tube leaky waveguides,” *Appl. Opt.*, vol. 20, no. 7, pp. 1221–1229, 1981.
- [228] G. Fibich and A. L. Gaeta, “Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguides,” *Opt. Lett.*, vol. 25, no. 5, p. 335, Mar. 2000.
- [229] G. Andriukaitis et al., “Hollow-fiber compression of 6 mJ pulses from a continuous-wave diode-pumped single-stage Yb,Na:CaF₂ chirped pulse amplifier,” *Opt. Lett.*, vol. 36, no. 10, p. 1914, May 2011.
- [230] R. Abrams, “Coupling losses in hollow waveguide laser resonators,” *Quantum Electron. IEEE J.*, vol. QE_8, no. 11, pp. 838–843, 1972.
- [231] D. Schimpf, E. Seise, J. Limpert, and A. T nnermann, “Self-phase modulation compensated by positive dispersion in chirped-pulse systems,” *Opt. Express*, vol. 17, no. 7, p. 4997, Mar. 2009.
- [232] R. Szip cs, C. Spielmann, F. Krausz, and K. Ferencz, “Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers,” *Opt. Lett.*, vol. 19, no. 3, p. 201, Feb. 1994.

- [233] J. Kasparian, P. B ejot, and J.-P. Wolf, “Arbitrary-order nonlinear contribution to self-steepening,” *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 16, pp. 2795–2797, 2010.
- [234] B. E. Schmidt et al., “CEP stable 1.6 cycle laser pulses at 1.8 μm ,” *Opt. Express*, vol. 19, no. 7, pp. 6858–6864, 2011.
- [235] P. B ejot, B. E. Schmidt, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and F. Legar e, “Mechanism of hollow-core-fiber infrared-supercontinuum compression with bulk material,” *Phys. Rev. A*, vol. 81, no. 6, p. 63828, 2010.
- [236] B. E. Schmidt et al., “Compression of 1.8 μm laser pulses to sub two optical cycles with bulk material,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 96, no. 12, p. 121109, 2010.
- [237] M. Nurhuda, A. Suda, K. Midorikawa, M. Hatayama, and K. Nagasaka, “Propagation dynamics of femtosecond laser pulses in a hollow fiber filled with argon: constant gas pressure versus differential gas pressure,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 20, no. 9, p. 2002, 2003.
- [238] A. Suda, M. Hatayama, K. Nagasaka, and K. Midorikawa, “Generation of sub-10-fs, 5-mJ-optical pulses using a hollow fiber with a pressure gradient,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 86, no. 11, pp. 1–3, 2005.
- [239] D. Wang, Y. Leng, and Z. Xu, “Measurement of nonlinear refractive index coefficient of inert gases with hollow-core fiber,” *Appl. Phys. B*, vol. 111, no. 3, pp. 447–452, Feb. 2013.
- [240] E. Marcatili and R. Schmeltzer, “Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers(Long distance optical transmission in hollow dielectric and,” *Bell Syst. Tech. J.*, 1964.
- [241] R. Safaei et al., “Low energy pulse compression in hollow core fibers using hydrofluorocarbon molecular gas,” *OSA Contin.*, vol. 2, no. 4, p. 1488, 2019.
- [242] E. Haddad et al., “Molecular gases for pulse compression in hollow core fibers,” *Opt. Express*, vol. 26, no. 19, p. 25426, Sep. 2018.
- [243] S. Beaulieu et al., “Role of excited states in high-order harmonic generation,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 117, no. 20, pp. 1–5, 2016.
- [244] H. Seiler, S. Palato, and P. Kambhampati, “Coherent multi-dimensional spectroscopy at optical frequencies in a single beam with optical readout,” *J. Chem. Phys.*, vol. 147, no. 9, p. 094203, 2017.
- [245] H. Seiler, S. Palato, B. E. Schmidt, and P. Kambhampati, “Simple fiber-based solution for coherent multidimensional spectroscopy in the visible regime,” *Opt. Lett.*, vol. 42, no. 3, p. 643, 2017.
- [246] H. Timmers, M. Sabbar, J. Hellwagner, Y. Kobayashi, D. M. Neumark, and S. R. Leone, “Polarization-assisted amplitude gating as a route to tunable, high-contrast attosecond pulses,” *Optica*, vol. 3, no. 7, p. 707, 2016.
- [247] H. Timmers, Y. Kobayashi, K. F. Chang, M. Reduzzi, D. M. Neumark, and S. R. Leone, “Generating high-contrast, near single-cycle waveforms with third-order dispersion compensation,” *Opt. Lett.*, vol. 42, no. 4, p. 811, 2017.
- [248] P. Wang et al., “26 mJ/100 Hz CEP-stable near-single-cycle 4 μm laser based on OPCPA and hollow-core fiber compression,” *Opt. Lett.*, vol. 43, no. 9, p. 2197, 2018.
- [249] D. Herrmann et al., “Generation of sub-three-cycle, 16 TW light pulses by using noncollinear optical parametric chirped-pulse amplification,” *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 16, pp. 2459–2461, Aug. 2009.
- [250] S. Witte and K. S. E. Eikema, “Ultrafast optical parametric chirped-pulse amplification,” *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 18, no. 1, pp. 296–307, 2012.
- [251] D. Brida et al., “Sub-two-cycle light pulses at 1.6 microm from an optical parametric amplifier,” *Opt.*

- Lett., vol. 33, no. 7, pp. 741–743, Mar. 2008.
- [252] Y. Deng et al., “Carrier-envelope-phase-stable, 1.2 mJ, 1.5 cycle laser pulses at 2.1 μm ,” *Opt. Lett.*, vol. 37, no. 23, pp. 4973–4975, 2012.
- [253] N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, “Sub-two-cycle, carrier-envelope phase-stable, intense optical pulses at 16 μm from a BiB₃O₆ optical parametric chirped-pulse amplifier,” *Optics Letters*, vol. 37, no. 20, p. 4182, Oct-2012.
- [254] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, “Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air,” *Opt. Lett.*, vol. 20, no. 1, pp. 73–75, Jan. 1995.
- [255] S. G. et al, “Self compression of millijoule pulses to 7.8fs duration in a white-light filament,” *Opt. Lett.*, vol. 31, no. 274, p. 274, 2006.
- [256] C. Hauri, A. Guandalini, P. Eckle, W. Kornelis, J. Biegert, and U. Keller, “Generation of intense few-cycle laser pulses through filamentation - parameter dependence,” *Opt. Express*, vol. 13, no. 19, pp. 7541–7547, 2005.
- [257] A. J. Verhoef, A. V. Mitrofanov, E. E. Serebryannikov, D. V. Kartashov, A. M. Zheltikov, and A. Baltuška, “Optical detection of tunneling ionization,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 104, no. 16, p. 163904, Apr. 2010.
- [258] Y. Matsuura, T. Oyama, and M. Miyagi, “Soft-x-ray hollow fiber optics with inner metal coating,” *Appl. Opt.*, vol. 44, no. 29, pp. 6193–6196, 2005.
- [259] X. Jiang, D. Chen, and G. Hu, “Suspended hollow core fiber for terahertz wave guiding,” *Appl. Opt.*, vol. 52, no. 4, pp. 770–4, 2013.
- [260] P. S. J. Russell, “Photonic-crystal fibers,” *J. Light. Technol.*, vol. 24, no. 12, pp. 4729–4749, Dec. 2006.
- [261] W. Ettoumi, Y. Petit, J. Kasparian, and J.-P. Wolf, “Generalized Miller formulae,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 7, pp. 6613–6620, 2010.
- [262] S. Bohman et al., “Generation of 5 fs, 0.5 TW pulses focusable to relativistic intensities at 1 kHz,” *Opt. Express*, vol. 16, no. 14, pp. 10684–9, Jul. 2008.
- [263] M. Nisoli et al., “Compression of high-energy laser pulses below 5 fs,” *Opt. Lett.*, vol. 22, no. 8, pp. 522–4, Apr. 1997.
- [264] J. P. Crenn, “Optical theory of Gaussian beam transmission through a hollow circular dielectric waveguide: errata,” *Appl. Opt.*, vol. 22, no. 10, p. 1426, May 1983.
- [265] D. Anderson and M. Lisak, “Nonlinear asymmetric self-phase modulation and self-steepening of pulses in long optical waveguides,” *Phys. Rev. A*, vol. 27, no. 3, 1983.
- [266] A. Gaeta, “Catastrophic Collapse of Ultrashort Pulses,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 84, pp. 3582–3585, 2000.
- [267] X. Chen et al., “Generation of 4.3 fs, 1 mJ laser pulses via compression of circularly polarized pulses in a gas-filled hollow-core fiber,” *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 10, pp. 1588–1590, 2009.
- [268] A. Pugžlys, G. Andriukaitis, and A. Baltuška, “Multi-mJ, 200-fs, cw-pumped, cryogenically cooled, Yb, Na: CaF₂ amplifier,” *Opt. ...*, vol. 34, no. 13, pp. 2075–2077, 2009.
- [269] O. Kfir et al., “Generation of bright phase-matched circularly-polarized extreme ultraviolet high harmonics,” *Nat. Photonics*, no. December, pp. 1–7, Dec. 2014.
- [270] A. Fleischer, O. Kfir, T. Diskin, P. Sidorenko, and O. Cohen, “Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation,” *Nat. Photonics*, vol. 8, no. 7, pp. 543–549, 2014.
- [271] O. Kfir et al., “Helicity-selective phase-matching and quasi-phase matching of circularly polarized high-order harmonics: towards chiral attosecond pulses,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 49, no. 12, 2016.

13 ANNEXE I — TRAITEMENT DES IMAGES DE XRMS

13.1 Méthodologie d'acquisition d'image :

13.1.1 Séquence d'acquisition

1. Acquisition d'une image — Pompe Active
2. Mouvement de la platine de translation (délai pompe-sonde)
3. Acquisition d'une image — Pompe Active
4. Mouvement de la platine de translation (délai pompe-sonde)
5. Acquisition d'une image — Pompe Active
6. Acquisition d'une image — Pompe Inactive
7. Mouvement de la platine de translation (délai pompe-sonde)

Répéter jusqu'à la fin de la plage de délais spécifiée

8. Acquisition d'une image de fond — Rayons X bloqués — Pompe Active
9. Acquisition d'une image de fond — Rayons X bloqués — Pompe Inactive

Répéter les étapes 1 à 9 au moins 3 fois pour chaque combinaison énergie et longueur d'onde

13.1.2 Diagnostique

Avant la séquence d'acquisition :

- ◇ Mesure de l'énergie par impulsion dans la pompe
- ◇ Maximiser l'ordre 0 de diffraction X à travers l'échantillon
- ◇ Scan vertical et horizontal automatisé de la position de la pompe sur l'échantillon pour optimiser le chevauchement de la pompe et de la sonde

Après la séquence d'acquisition :

(La plupart du temps, quelques exceptions si le laser est exceptionnellement stable, par exemple durant une séance d'acquisition nocturne)

- ◇ Mesure et confirmation de l'énergie par impulsion
- ◇ Vérification de l'ordre 0 de diffraction X à travers l'échantillon
- ◇ Vérification du chevauchement entre la pompe et la sonde
- ◇ Si variation avant/après, jeter la courbe de désaimantation acquise

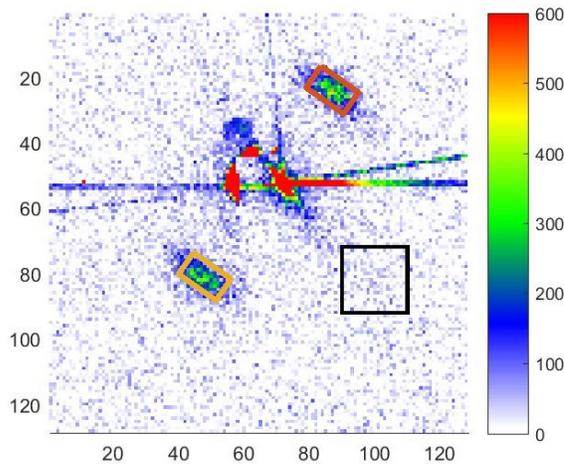
Avant de changer l'énergie ou la longueur d'onde :

- ◇ Mesure de la tache focale sur le capteur CMOS (hors vide)
- ◇ Mesure d'une trace d'autocorrélation SHG près de la fenêtre de la chambre de l'échantillon

13.2 Extraction des points de données formant les courbes de désaimantation :

Soustraction des images de fond

- Fond avec pompe active pour la courbe de données (« Pompe Active »)
- Fond avec pompe inactive pour la courbe de référence (« Pompe Inactive »)

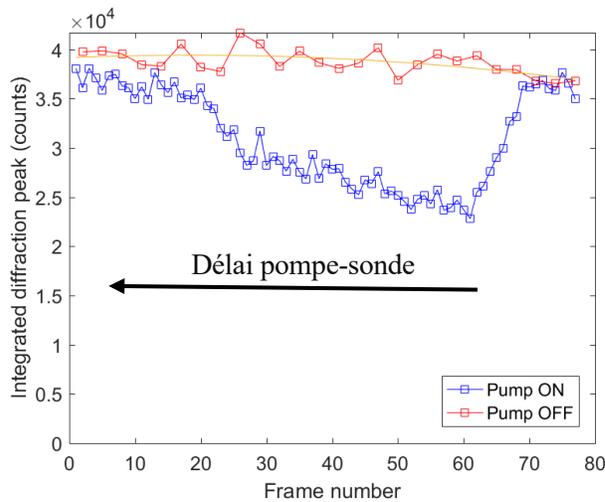


Soustraction de la ligne de base:

Un **cadre carré** est choisi dans l'image, loin des pics de diffraction et de la lumière diffuse. Les comptes dans le carré sont moyennés. La moyenne est soustraite du reste de l'image.

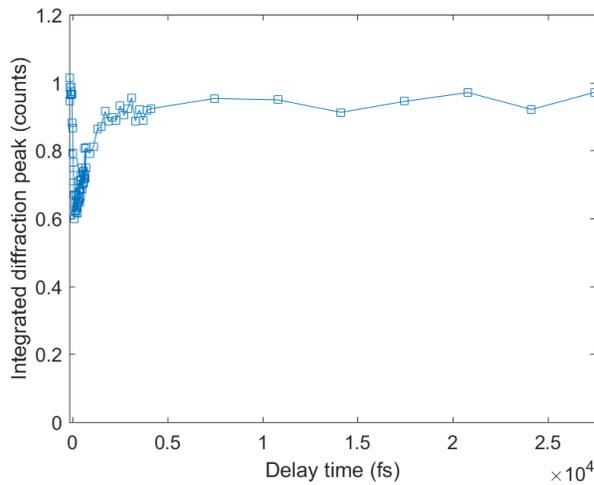
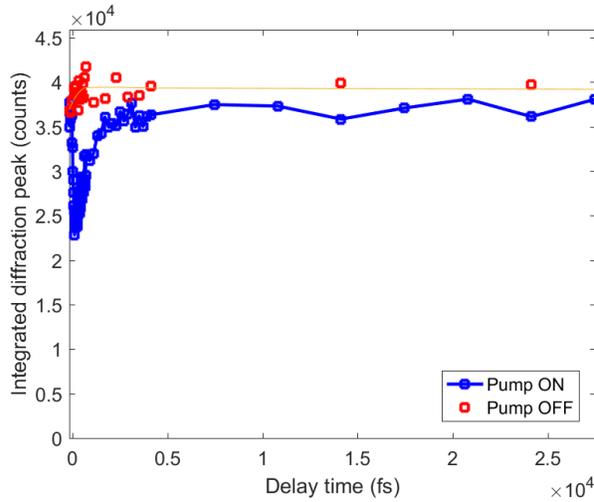
Sur chaque image, un **masque rhomboïde** est appliqué sur chaque pic de diffraction.

- Les mêmes zones sont choisies pour chaque image avec la même longueur d'onde de pompe (la lumière diffuse change selon la longueur d'onde de la pompe).



1^{ère} construction des courbes :

Les comptes dans les masques rhomboïdes sont additionnés, donnant l'intensité dans les pics de diffraction



Normalisation avec la référence :

La courbe de référence (« Pompe Inactive » ou « Pump OFF ») est ajustée avec un polynôme de degré 2. L'ajustement est adapté (« spline ») à la même grille temporelle que la courbe de donnée (« Pompe Active » ou « Pump ON »). La courbe de donnée est divisée par la courbe de référence.

Étape subjective:

Les courbes subjectivement aberrantes sont supprimées. Les critères sont :

- ◇ Référence trop changeante
- ◇ Différence majeures entre la référence et la courbe de donnée aux temps négatifs.
- ◇ Forme de courbe très différente des autres prises dans les mêmes conditions

Les points de données aberrants dans des courbes adéquates sont retirés : points de départ, point de fin, point très éloigné de la courbe générale (c.-à-d. faisceau bloqué, lumières ouvertes dans le lab, sursauts du laser, etc.).

13.3 Analyse de la dynamique temporelle

1. $M(t) \propto \sqrt{I(t)}$
2. Courbe normalisée à sa valeur moyenne aux délais négatifs (sonde avant la pompe)
3. Courbe ajustée avec le modèle de l'équation 5-7

$$te = t - t_0$$

$$M = -1 * \text{heaviside}(te) * (B * (1 - \exp(-te/\tau_1))) * \exp(-te/\tau_2) + C * (1 - \exp(-te/\tau_2))) + A;$$

$$\text{gauss} = N * \text{gaussmf}(te, [\text{sig } t_middle]);$$

$$\text{convolution} = \text{conv}(M, \text{gauss}, 'same');$$

Variables dépendantes :

t0 => Délai initial de la désaimantation

tau1 => Temps caractéristique de la désaimantation

tau2 => Temps caractéristique du recouvrement

A => Valeur de la désaimantation aux délais négatifs

B => Proportionnel à la désaimantation maximale (1 – aimantation minimale)

C => Valeur de la désaimantation asymptotique (1 – aimantation asymptotique)

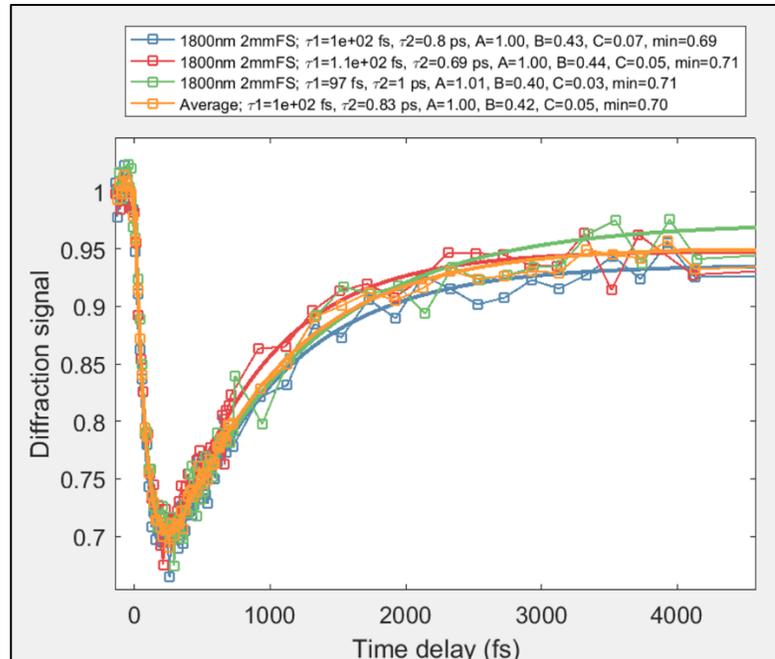
sig => Variance de la gaussienne.

N est pour la normalisation de la convolution avec l'impulsion gaussienne :

$$N = t_step / (\text{sqrt}(2 * 3.14159) * \text{sig});$$

Les mesures d'autocorrélation servent de valeurs initiales au paramètre « **sig** ». La valeur optimisée numériquement ne change pas beaucoup de la valeur initiale.

4. Décalage temporel avec le délai nul, **t0**, optimisé numériquement ($t = t - t_0$).
5. Les courbes d'un même ensemble de données (courbes bleue, verte et rouge) sont interpolées sur une même grille temporelle, puis moyennées (courbe orange).



6. La courbe moyenne est réajustée avec le même modèle. Elles sont renormalisées avec le paramètre **A** pour des fins de présentation seulement. **B**, **C**, **tau1** et **tau2** ne sont pas réévalués une troisième fois.

13.4 Analyse des éléments structuraux

L'analyse de la distribution radiale et azimutale des pics de diffraction a été faite par Katherine Légaré. J'ai inspecté le code. À l'intérieur de notre rapport signal-sur-bruit, aucun changement transitoire n'est observé.

13.5 Analyse de la fluence

Les mesures de la réflectivité et de la transmission des membranes ont été faites sur un ellipsomètre large bande. Les coefficients d'absorption mesurés sont :

400 nm – 47%

800 nm – 30%

1800 nm – 15%

+ Mesures de taches focales

+ Mesures de l'énergie par impulsions

= Estimation de la fluence absorbée

Cependant, l'instrumentation pour la mesure de l'absorption avait de sérieuses limitations :

- ◇ Angle incident non nul
- ◇ Aucune focalisation de la source
- ◇ Intensité minimale trop forte pour l'échantillon, menant à des dommages à long terme
- ◇ Collecteur de lumière trop loin de l'échantillon => Impossible de tout collecter la réflexion non spéculaire

Les coefficients d'absorption mesurés suivent le même comportement que les coefficients simulés avec le logiciel IMD, mais les valeurs absolues diffèrent significativement.

Absorption IMD :

400 nm – 78%

800 nm – 70%

1800 nm – 66%

C'est pour cette raison que nous avons voulu découpler notre analyse de ces valeurs de fluences cruciales, mais incertaines.

14 ANNEXE II – INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR L'ARTICLE *CARDIN ET AL. PRB 2020 (CHAPITRE 7)*

14.1 Experimental details

The experiments were performed on 100 Hz beamline of the Advanced Laser Light Source (located at INRS-ÉMT, Varennes, Canada). The experimental setup is schematized in figure 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, 100Hz, is a net advantage as it allow us to reach higher pump fluence before heating becomes an issue.

The XUV photons were provided by a high harmonic source driven by 13mJ, 800nm, 45fs pulses focused by a 3m focal length mirror on an 8mm neon-filled gas cell. The gas is delivered through a synchronized Parker pulsed valve with a backing pressure of 700mbar. 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 5×10^{-5} torr.

The energy of the magnetically active $M_{2,3}$ -edge of cobalt, 60eV, corresponds closely to the 39th harmonic of the laser driving the process. A first 200nm thick aluminum foil blocks the strong fundamental VIS beam while transmitting >70% of the 60eV photons. The XUV are reimaged on the magnetic sample by a 2m focal multilayer mirror (XUV60BW5 – UltraFast Innovations Inc.) placed at 4m from the generation point. The spot size of the focused 60eV harmonic was measured to be <190 μ m. The high energy used for the generation combined with the long focal length allowed us to reach a flux of 3.4×10^8 photons/sec on target, in the 5nm reflectivity bandwidth of the multilayer mirror.

The magnetic sample consisted of a multilayer of cobalt platinum¹⁵ on a SiN membrane, magnetized out-of-plane in parallel domains of $\approx 75\text{nm}$ 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 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 0th 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 6mJ, 800nm, 45fs pulses is used as the source for the different wavelength pump beams. To provide 400nm, 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 800nm pump beam was the direct beam attenuated to the μJ level, first by the same thin film polarizer attenuator (down to 1mJ) 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 1800nm pump beam was obtained with a white-light OPA (HE-TOPAS, Light Conversion Inc.) providing up to 1mJ of idler. This 1mJ 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 800nm and 1800nm beams were coupled in a $500 \mu\text{m}$ core, 1m25 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 400nm was not coupled to the fiber as its smaller wavelength allowed higher order spatial mode to propagate without significant attenuation through the 1m25 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 400nm beam was focused on the position of the fiber output with a spot size corresponding to the EH11 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 2m silver concave mirror. To monitor the pointing of the pump beam, help with spatial overlap of the probe and pump, and measure the

¹⁵ SiN_{30nm}/Pt_{2nm}/[Co_{0.6nm}Pt_{0.8nm}]₂₀/Al_{3nm} (of which 1.5nm of the Al capping layer are oxidized),

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 1800nm beam, the nonlinear crystal was positioned at the same total optical path length as the magnetic sample. For the 400nm 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.

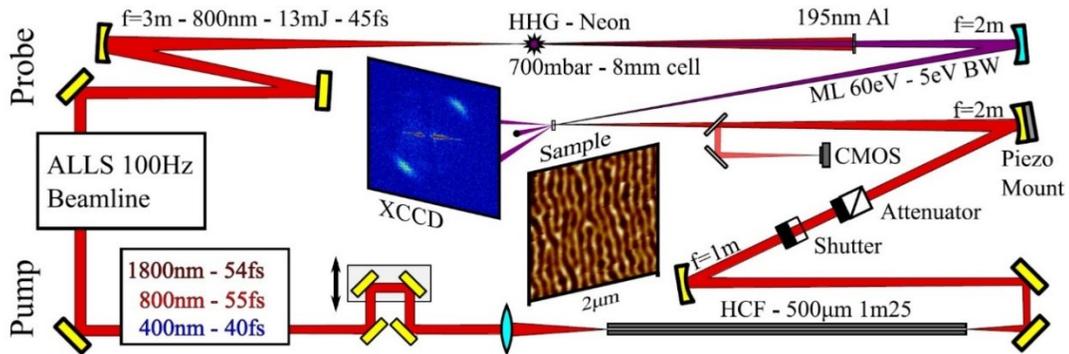


Figure II - 1: Experimental pump-probe line.

The HHG generation point is reimaged 1:1 on the sample by a single concave $r=+4\text{m}$ 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 1800nm pump. The fluence was controlled by neutral density filters for the 400nm 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 74nm .

The XCCD frame of figure I represents a typical measured diffraction image. The domains had been demagnetized at 45° 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 (4.2cm), we can calculate the wave vector transfer of the diffracted peak which is directly related to the domains mean width. It is measured at 83nm. This is comparable to the value measured by MFM, 74nm. 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.

14.2 Results

Each curve of figure 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 1 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.

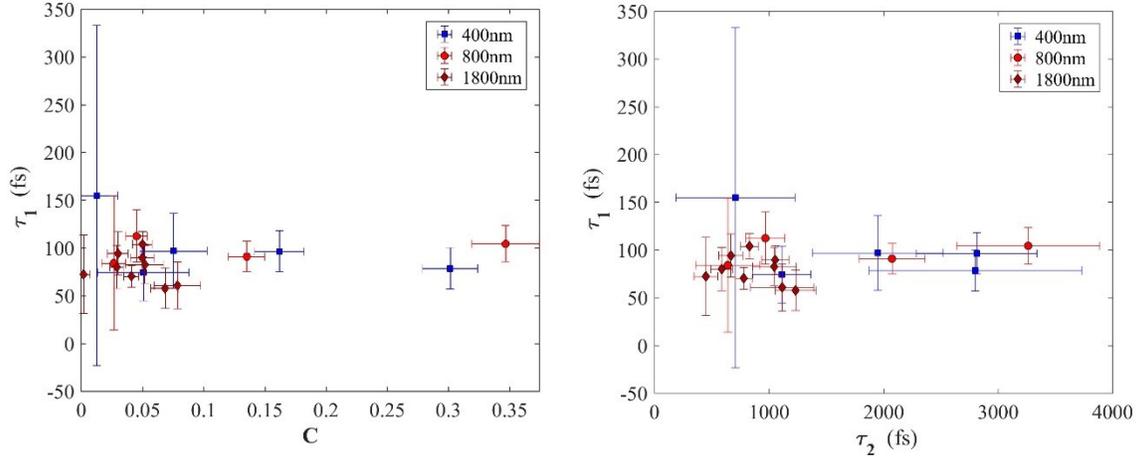


Figure II-2: Invariance of the thermalization time to the different pumping conditions. The average value of the thermalization time is (90 ± 20) fs.

The semi-classical demagnetization model predicts a wavelength-independent relaxation, and thermalization time, i.e. τ_2 and τ_1 . To highlight the former, we trace its dependence to the asymptotic demagnetization, C , in shown figure 2 (c). We observe no discernable wavelength dependence. For the latter, figure 1d indicates that τ_1 is independent of the pump wavelength, which is confirmed by the empirical fitting model (see figure II). Furthermore, it is also shown to be independent of both of the absorbed energy gauges, C and τ_2 .

The independent nature of τ_1 to both our energy gauges is also in good agreement with the findings of Vodungbo et al. 2012 [32] 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 3 presents the wavelength dependence of the maximum demagnetization in regard to the alternative deposited energy gauges introduce in the main letter. Here, figure III shows the interdependence of these alternative energy gauges, C , and τ_2 , with the pump wavelength.

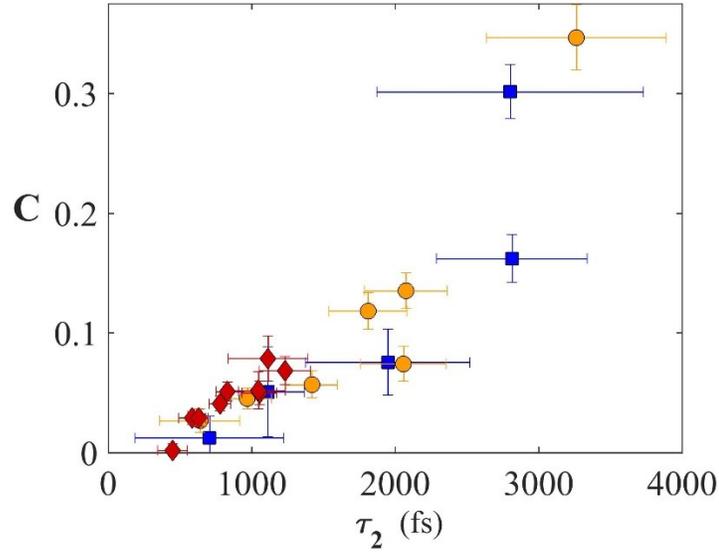


Figure II-3: Interdependence of the alternative energy gauges with the pump wavelength.

The blue squares point represent the fitting parameters for the 0.4μm-pumped curves. The orange circles represents the 0.8μm-pumped curves. Finally, the red diamonds represents the 1.8 μm-pumped curves.

Contrary to figure 3, figure III shows do clear wavelength dependence on the C vs τ_2 curves. This either show that both C and τ_2 are wavelength independent, or at the very least, that they share the same dependence to the pump wavelength. The later case is unlikely, the different behavior of the maximum demagnetization, B, to C, and to τ_2 , still serves to show a global wavelength-dependent magnetization response of the material.

14.3 Maximum electron temperature and scaling with λ^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.

$$C_e(T_e) \frac{d}{dt} T_e = \langle \frac{dW}{dt} \rangle, \quad (1)$$

where $C_e(T_e) = \gamma T_e$ is the electron heat capacity and T_e is the electronic temperature. Using complex notation:

$$\langle \frac{dW}{dt} \rangle = \frac{1}{4} (\mathbf{E} \cdot \mathbf{J}^* + \mathbf{E}^* \cdot \mathbf{J}) = \frac{1}{4} i\omega \epsilon_0 (\epsilon_r^* - \epsilon_r) |\mathbf{E}|^2 = \frac{2\pi}{\lambda} \epsilon_2 I \quad (2)$$

with the relative permittivity $\epsilon_r = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ and where λ and the laser intensity $I = (\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}^*)/2\eta_0$ are both defined in vacuum. Eq. (1) above can then be written in the following form

$$\int_{T_{e,0}}^{T_{e,0}+\Delta T_e} T_e dT_e = \frac{1}{\gamma} \frac{2\pi}{\lambda} \varepsilon_2 \int_{-\infty}^{\infty} I dt \quad (3)$$

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 $W = 2\pi\varepsilon_2 F/\lambda$. After integration of the left-hand side, it is straightforward to show that

$$\Delta T_e = \sqrt{T_{e,0}^2 + \frac{2}{\gamma} W} - T_{e,0} \quad (4)$$

Eq. (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

$$\frac{2\pi}{\lambda} \varepsilon_2 = \eta_0 \frac{\sigma}{1+\omega^2\tau^2} \quad (5)$$

For metals, τ is typically in the tens of femtoseconds range and

$$\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle = \frac{1}{2} \left(\frac{\sigma}{1+\omega^2\tau^2} \right) E_0^2 \propto \lambda^2 \quad , \quad (6)$$

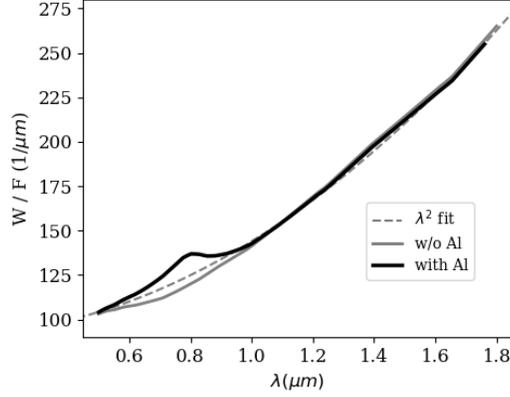
which leads to $\Delta T_e \propto \lambda^2$, in the case of moderate heating ($\Delta T_e \ll T_{e,0}$).

14.4 Optical data for Al, Co, and Pt and effective scaling with λ^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.

$$\varepsilon_{eff} = 1 + \frac{\chi_{Al} l_{Al} + \chi_{Co} l_{Co} + \chi_{Pt} l_{Pt}}{L} \quad (7)$$

with $L = l_{Al} + l_{Co} + l_{Pt}$. Then we could compute the effective transfer of electromagnetic energy to the medium with $W = 2\pi\varepsilon_2 F/\lambda$. The figure below shows that, excepted for a strong resonance in Al around 800nm, W scales effectively as λ^2 .



14.5 Fraction of the energy transferred to Co/Pt with the Beer-Lambert law

The Beer-Lambert law stipulates that light absorption at a rate α (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 α_k and l_k are the absorption coefficient and thickness of the k th layer. The power absorbed in the n th layer is then

$$P_n = \alpha_n A I_0 \exp(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k) f(t) \int_0^{l_n} e^{-\alpha_n z} dz = A I_0 \exp(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k) f(t) (1 - e^{-\alpha_n l_n}) \quad (8)$$

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:

$$P = \sum_{n=1}^N P_n = A I_0 f(t) \sum_{n=1}^N \exp(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k) (1 - e^{-\alpha_n l_n}) \quad (9)$$

If the sample layers are mapped as $\text{Al}_3/[\text{Pt}_{0.8}\text{Co}_{0.6}]_{30}/\text{Pt}_2/\text{SiN}_{30}$, 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

$$\% \text{ in Co/Pt} = 1 - \frac{A I_0 f(t) (1 - e^{-\alpha_1 l_1})}{P} = \frac{\sum_{n=2}^N \exp(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k) (1 - e^{-\alpha_n l_n})}{\sum_{n=1}^N \exp(-\sum_{k=1}^{n-1} \alpha_k l_k) (1 - e^{-\alpha_n l_n})} \quad (10)$$

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.

14.6 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 ($n_{\text{Al}} = \sqrt{\varepsilon_{\text{Al}}}$) 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):

$$m_{a,l} = \begin{bmatrix} \cos \beta & -\frac{i}{p} \sin \beta \\ -ip \sin \beta & \cos \beta \end{bmatrix}$$

with $\beta = 2\pi l \sqrt{\varepsilon_a}/\lambda$, $p = \sqrt{\varepsilon_a/\mu_a}$ and $i = \sqrt{-1}$.