



HAL
open science

Dynamique d'aimantation de nanostructures magnétiques : Etudes par microscopie Kerr magnéto-optique femtoseconde

Abdelghani Laraoui

► **To cite this version:**

Abdelghani Laraoui. Dynamique d'aimantation de nanostructures magnétiques : Etudes par microscopie Kerr magnéto-optique femtoseconde. Matière Condensée [cond-mat]. Université Louis Pasteur - Strasbourg I, 2007. Français. NNT: . tel-00198127

HAL Id: tel-00198127

<https://theses.hal.science/tel-00198127>

Submitted on 16 Dec 2007

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

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

Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg

THESE DE DOCTORAT

Présentée pour l'obtention du titre de

Docteur de L'Université Louis Pasteur (Strasbourg I)

Discipline: Physique de la matière condensée

Par

Abdelghani LARAOUI

Dynamique d'Aimantation de Nanostructures

Magnétiques : Etudes par Microscopie

Kerr Magnéto-Optique Femtoseconde

Soutenue le 02 octobre 2007 devant le Jury composé de :

M.	Eric FREYSZ	Rapporteur externe
M.	Jacques FERRÉ	Rapporteur externe
M.	Wolfgang WEBER	Rapporteur interne
Mme.	Ursula EBELS	Examineur
M.	Jean-Yves BIGOT	Directeur de thèse
M.	Eric BEAUREPAIRE	Invité
Mme.	Valérie HALTÉ	Invité

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au sein du Groupe d'Optique Non-Linéaire et d'Optoélectronique (GONLO) de l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS) en collaboration avec le Groupe d'Etude des Matériaux Métalliques (GEMME) de l'IPCMS et le Laboratoire Ions-Photons de l'Institut d'Électronique du Solide et des Systèmes de Strasbourg (INESS).

Je tiens à remercier tout d'abord les membres de mon jury : Mr. Eric FREYSZ, Mr. Jacques FERRÉ, Mr. Wolfgang WEBER, Mme. Ursula EBELS pour m'avoir fait l'honneur de juger ce travail de thèse.

Je remercie très vivement Jean-Yves BIGOT, mon directeur de thèse, pour m'avoir accueilli et encadré au cours de ces 3 années. Je lui suis reconnaissant pour la confiance qu'il m'a accordée ainsi que pour les nombreux conseils et explications scientifiques qu'il m'a donnés. J'ai énormément appris à ses cotés et ce fut pour moi un honneur et un grand plaisir de travailler avec lui. Enfin, je n'oublierai jamais ses encouragements et son soutien pour surmonter les différents obstacles rencontrés durant la thèse, ses précieuses critiques envers le manuscrit et ses recommandations pour trouver un post-doc. Pour tout cela, merci infiniment.

Je remercie chaleureusement Valérie HALTE pour sa disponibilité à m'aider sur la manip, pour ses précieuses remarques pendant les corrections du manuscrit, et pour sa gentillesse; Je remercie également Eric BEAUREPAIRE pour l'étroite collaboration au niveau scientifique (films ferromagnétiques, mesures magnétiques statiques...), et notamment pour les nombreuses discussions.

Je voudrais remercier toutes les personnes qui m'ont aidé et beaucoup appris durant ces trois années, et tout particulièrement :

- Leandro H. F. ANDRADE pour son aide sur les mesures dynamiques sur les nanoparticules magnétiques et pour son enthousiasme. C'est un grand plaisir de collaborer et discuter avec quelqu'un comme lui pendant son séjour post-doctoral et maintenant depuis le Brésil.

- Michèle ALBRECHT pour son aide dans les différentes étapes de construction du microscope magnéto-optique (l'électronique, les programmes d'acquisition...), et surtout pour sa bonne humeur, sa gentillesse, et sa présence (parfois jusqu'à tard dans la nuit).
- Julien VENUAT pour m'avoir fourni les différents échantillons de plots ferromagnétiques, et surtout pour son enthousiasme ; je remercie également Samy BOUKARI et Victor DA COSTA pour les mesures de microscope à force magnétique.
- Mircea VOMIR « mon collègue de bureau et de recherche » pour les nombreuses discussions que nous avons eues sur nos résultats ou autour des dernières évolutions du « Fentomagnétisme ».
- Daniel ACKER pour la fabrication des pièces mécaniques.
- Olivier CREGUT pour son aide à faire les délicats alignements des cavités laser.
- Dominique MULLER et Yann LE GALL pour la fabrication des nanoparticules par implantation ionique.
- Céline d'ORLÉANS et Marianne AMANN pour leur aide à préparer les échantillons pour la microscopie électronique à transmission.
- Claude ESTOURNES et Alain DERORY pour les mesures magnétiques par SQUID,
- Jeannine DRIVON et Janine JOSEPH pour leur aide dans les tâches administratives et particulièrement pour leur gentillesse.

J'adresse un grand merci à l'ensemble de mes collègues thésards pour leurs encouragements et leur soutien. Tout particulièrement, je tiens à remercier Mohamed-Fahim HAROUN, Nadjib BAADJI, Abdelkrim BENABBAS, Pascal DIDIER, Nader YAACOUB, Nhan LECONG, Terek KHALIL. J'adresse également mes plus vifs remerciements à mes amis : Samir SLIMANI, Lyes MALLA.

De façon plus profonde, je tiens à remercier mes parents qui m'ont toujours soutenu dans mes choix et qui ont tout fait pour que je réussisse mes études. Je les remercie pour l'ensemble de ce qu'ils ont fait pour moi. Je remercie également mes frères et mes sœurs pour leur soutien sans faille et leur totale confiance.

Finalement, j'exprime toute ma gratitude à Abdelahalim KAHOUL pour sa disponibilité à me fournir des papiers administratifs en Algérie, pour ses encouragements de venir continuer mes études ici en France et à Farid KHALFALLAH pour ses encouragements et nos passionnantes discussions sur la science pendant les repas et les pause-café.

Table de matières

Introduction Générale	1
Références bibliographiques de l'introduction générale.....	9
Chapitre I : Aspects théoriques	12
I.1 Description microscopique de la dynamique d'aimantation (Micro-magnétisme)	13
I.1.1. Description quantique d'un système à deux niveaux de spins $\frac{1}{2}$	13
I.1.1.1. Précession d'un spin $\frac{1}{2}$	13
I.1.1.2. Relaxation d'un système à deux niveaux: Equations de Bloch.....	17
I.1.2. Description macroscopique de la dynamique de l'aimantation d'un matériau ferromagnétique.....	21
I.1.2.1. Equation de Landau Lifshitz Gilbert (LLG).....	22
I.1.2.2. Discussion.....	23
I.2. Modèle dynamique de Néel Brown	25
I.2.1. Modèle de Néel.....	26
I.2.2. Modèle de Brown.....	27
I.2.2.1. Dynamique d'aimantation sur la sphère unité.....	28
I.2.2.2. Approximation de la barrière haute : Méthode de Kramer.....	29
I.2.2.3. Discussion.....	33
I.3. Dynamique d'aimantation ultrarapide	34
I.3.1. Dynamique d'électrons induit par laser.....	35
I.3.2. Modèle phénoménologique à deux bains.....	36
I.3.3. Mécanismes microscopiques responsables de la désaimantation ultrarapide ?.....	38
I.3.3.1 Modèle microscopique basé sur l'effet d'interaction spin orbite.....	39
I.3.3.2 Modèle de Stoner.....	40
I.3.3.3. La diffusion électron-magnon.....	40
I.3.4. Modèles macroscopiques pour la relaxation de l'aimantation.....	42
Conclusion	45
Références bibliographiques du chapitre I.....	46

Chapitre II : Dispositifs expérimentaux et échantillons	49
II.1. Techniques de spectroscopie femtoseconde	50
II.1.1. Génération d'impulsions laser femtosecondes.....	50
II.1.1.1 L'oscillateur (Exemple : Ti-saphir).....	50
II.1.1.2. Etape de l'amplification.....	55
II.1.2. Sources laser de l'expérience.....	56
II.1.3. Caractérisation de l'impulsion laser.....	57
II.1.4. Technique de mesure pompe sonde résolue en temps.....	59
II.1.5. Technique pompe sonde Kerr Faraday résolue en temps.....	63
II.1.5.1. L'effet Kerr (Faraday) magnéto-optique statique.....	63
II.1.5.2. L'effet Kerr (Faraday) magnéto-optique dynamique (résolu en temps).....	65
II.1.6. Configuration expérimentale.....	66
II.2. Microscope magnéto-optique confocal résolu en temps	69
II.2.1. Introduction à la microscopie confocale.....	69
II.2.2. Microscope magnéto-optique confocal résolu en temps	71
II.2.2.1. Mesures magnéto-optiques statiques.....	75
II.2.2.2. Mesures magnéto-optiques dynamiques.....	78
II.3. Elaboration et propriétés magnétiques des échantillons	81
II.3.1. Fabrication et étude magnétique statique de plots ferromagnétiques.....	81
II.3.2. Elaboration et étude magnétique de nanoparticules magnétiques.....	83
Conclusion	87
Références bibliographiques du chapitre II.....	88

Chapitre III : Etude spatiale et temporelle de la dynamique d'aimantation de plots et films ferromagnétiques.....**90**

III.1. Dynamique d'aimantation d'un plot ferromagnétique individuel	91
III.1.1. Introduction.....	91
III.1.2. Dynamique d'aimantation d'un plot ferromagnétique individuel.....	91
III.1.3. Dynamique de réflexion d'un plot individuel.....	97
III.1.4. Dynamique spatio-temporelle d'aimantation d'un plot unique.....	98

III.2. Photonique de spins : Contrôle d'aimantation dans des plots et films ferromagnétiques de CoPt par des impulsions laser femtosecondes.....	102
III.2.1. Technique d'imagerie pompe sonde résolue en temps (MOPPI).....	102
III.2.2. Renversement ultrarapide d'aimantation d'un plot individuel de CoPt ₃	103
III.2.3. Inscription magnéto-optique dans des films ferromagnétiques : Ecriture et lecture des domaines magnétiques par des impulsions laser femtosecondes.....	104
III.2.3.1. Ecriture et lecture des domaines magnétique avec un laser polarisé linéairement.....	105
III.2.3.2. Effet du champ magnétique extérieur et de la nature de substrat sur l'inscription magnéto-optique.....	108
III.2.3.3. Inscription magnéto-optique en fonction de la polarisation circulaire du laser.....	113
III.2.4. Etude par microscopie à force magnétique et magnéto-optique : Visualisation de la désaimantation spatiale induite par laser dans des plots et films de CoPt.....	114
Conclusion.....	118
Références bibliographiques du chapitre III.....	120
Chapitre IV : Dynamique d'aimantation des nanoparticules magnétiques.....	122
IV.1. Montage expérimental.....	123
IV.1.1. L'accès expérimental de la trajectoire d'aimantation.....	123
IV.2. Dynamique ultrarapide d'aimantation de nanoparticules ferro magnétiques.....	125
IV.2.1. Le rôle de l'anisotropie magnétique.....	128
IV.2.1. Influence de l'intensité du laser sur l'amplitude de la précession.....	129
IV.3. Dynamique ultrarapide de nanoparticules superparamagnétiques..	131
IV.3.1. Introduction.....	131
IV.3.2. Dynamique de la transmission (des électrons).....	133
IV.3.3. Dynamique ultrarapide d'aimantation.....	135
IV.3.4. Comparaison entre les trajectoires de l'aimantation dans les particules ferro et super-paramagnétiques.....	137

IV.4. Effet de réduction de taille sur l'amortissement de l'aimantation	139
Conclusion	141
Références bibliographiques du chapitre IV.....	142
Conclusion générale et perspectives	144
Références bibliographiques de la conclusion générale.....	149
Liste des publications et communications	150

Introduction générale

La demande sans cesse grandissante pour obtenir une densité de stockage d'informations plus élevée et un temps d'accès aux données (écriture/lecture) plus rapide dans l'industrie des ordinateurs est à l'origine d'un développement considérable d'études sur la dynamique d'aimantation au cours de ces dernières années [1, 2]. Dans les supports magnétiques utilisés actuellement dans l'industrie, l'information numérique est enregistrée sous forme d'une petite région aimantée, un « bit », dont l'orientation des spins correspond aux valeurs « 1 » ou « 0 ». A moyen terme des densités de l'ordre de 1 Térabits/inch² pourront être atteintes en utilisant des nanoparticules (ou nano-plots) ferromagnétiques adressés individuellement [3], chaque particule de quelque dizaines de nanomètres représentant un bit magnétique. Cependant, l'augmentation de la densité de stockage va bientôt rencontrer une limite fondamentale imposée par le superparamagnétisme [4], qui se produit pour des particules de petites dimensions. Lorsque le volume V de la particule diminue, l'énergie d'activation thermique $k_B T$ devient comparable à l'énergie d'anisotropie KV conduisant à des fluctuations de l'aimantation, et par conséquent à une perte de l'information.

Afin d'écrire un bit magnétique, une impulsion de champ magnétique peut être appliquée pour renverser l'aimantation. Une question fondamentale qui se pose alors est la suivante : comment peut-on renverser l'aimantation d'un matériau de manière efficace et quelle est l'échelle de temps concernée ?

L'utilisation des impulsions de champ magnétique peut conduire à un renversement d'aimantation de l'état 1 à l'état 0 (ou l'inverse) via une précession du vecteur de l'aimantation autour le champ effectif H_{eff} . Avec cette méthode, l'orientation de l'aimantation est renversée (sans changement du module de l'aimantation) dans la gamme de fréquences de quelques Gigahertz [5, 6, 7] c'est-à-dire. avec des temps d'accès de quelques nanosecondes ($1 \text{ ns} = 10^{-9} \text{ s}$). Ce mode de commutation utilisé aujourd'hui sur les supports d'écriture (et de lecture) a atteint une limite fondamentale d'une demi-période de précession de quelques centaines de picosecondes [8].

Une alternative à l'utilisation d'impulsions de champ magnétique est l'utilisation d'impulsions laser. En effet, il est possible d'induire une modification de la direction et du module de l'aimantation et de l'observer en employant une technique stroboscopique optique pompe sonde. Dans cette configuration, une impulsion laser (la pompe) perturbe l'état initial

de l'aimantation. Après un retard donné, une autre impulsion laser (la sonde) est utilisée pour détecter la réponse transitoire de l'aimantation [9].

L'utilisation des impulsions laser femtoseconde (photons) pour contrôler l'aimantation des matériaux ferromagnétiques a ouvert un nouveau champ de recherche intéressant que nous appellerons photonique de spins (Spin-photonics) par la suite. La photonique de spins présente plusieurs avantages:

- La résolution temporelle est donnée par la durée des impulsions laser (quelques dizaines de femtosecondes). Cela permet d'étudier des processus physiques extrêmement rapides se situant dans la gamme de 100 GHz à quelques THz.
- La résolution spatiale est donnée par la dimension de la tache de focalisation du faisceau laser (~ 300 nm en configuration confocale et < 100 nm en géométrie de champ proche optique). Cela offre la possibilité d'étudier des nanostructures magnétiques individuelles.

En ce qui concerne la résolution temporelle, le premier travail réalisé sur la dynamique d'aimantation d'un film de Ni après une irradiation par laser a été reporté par Agranat et al [10]. En utilisant des impulsions laser de durées variables (entre 5 -20 ps et 40 ns), ils ont conclu que la désaimantation se produit à une échelle de temps de l'ordre de la nanoseconde (le temps de relaxation spin réseau varie de 1 à 40 ns). Quelques années plus tard, Vaterlaus et al [11, 12] ont réalisé des mesures pompe sonde résolues en temps basées sur la technique de photoémission résolue en spin. Ils ont utilisé des impulsions pompe intenses d'une durée de 30 ns pour exciter un échantillon de gadolinium (Gd), et des impulsions sonde de faible intensité d'une durée de 30 ps pour mesurer la variation induite par la pompe via une analyse de polarisation de spin. Une désaimantation de 80 % a été obtenue avec un temps de relaxation de spin de l'ordre de 100 ± 80 ps. Des expériences similaires sur un film de Fer (Fe) ont permis de limiter ce temps de relaxation entre 30 ps et 20 ps. Cet ordre de grandeur était en bon accord avec les estimations théoriques de Hübner [13], fondées sur l'interaction spin-orbite, donnant un temps de désaimantation de l'ordre d'une centaine de picosecondes.

En 1996, un résultat surprenant a été trouvé dans le groupe de J-Y BIGOT à Strasbourg [14]. En utilisant la technique pompe sonde magnéto-optique résolue en temps (MOKE) avec des impulsions laser ultra-brèves d'une durée de 60 fs. Les auteurs ont trouvé que l'aimantation d'un film de Nickel d'épaisseur de 20 nm atteint une valeur minimum en environ 1 ps après l'absorption de l'impulsion laser. Cette diminution ultrarapide est de

l'ordre de 45% pour les intensités de pompe les plus élevées (figure 1). Notons que malgré la durée d'impulsions pompe de 60 fs, l'expérience n'a pas permis de donner une limite inférieure à la désaimantation en raison principalement d'un faible rapport signal/bruit. Dans le même travail, un modèle à trois bains (électrons, spins et réseau) a été employé pour décrire l'échange de température entre les électrons, les spins et les phonons (réseau). La désaimantation ultrarapide a été interprétée comme étant due à une rapide élévation de la température des électrons et des spins, les deux bains n'étant pas nécessairement en équilibre thermique.

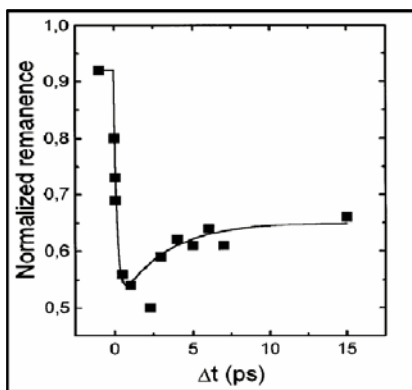


Figure 1: Signal Kerr longitudinal normalisé résolu en temps d'un film de nickel d'épaisseur de 20 nm, en utilisant des impulsions laser de durée 60 fs [14]

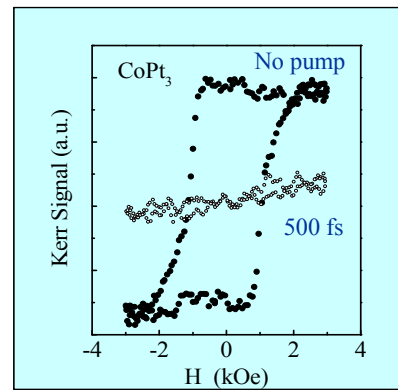


Figure 2: Cycles d'hystérèse d'un film de CoPt_3 sans pompe et à un retard de 500 fs : Transition de la phase ferromagnétique à la phase paramagnétique après absorption des impulsions pompe du laser [17].

Ce travail a ouvert une nouvelle voie dans le domaine du magnétisme « Femto-magnétisme » qui a suscité d'autres recherches réalisées par différents groupes. Un autre résultat important a été obtenu en mesurant la réponse magnéto-optique dynamique d'un échantillon de Ni (en massif) par la technique de génération de seconde harmonique résolue en temps (M-SHG) [15]. Les auteurs ont observé une désaimantation quasi-instantanée pendant l'absorption de l'impulsion laser (150 fs) pour différentes densités de laser. Dans ce travail, les auteurs ont montré que la réponse magnétique induite par laser est plus rapide que la thermalisation des électrons (280 fs). Ils ont attribué cette réponse ultrarapide à la différence de durées de vie pour les électrons excités minoritaires et majoritaires. De plus, ils ont montré que la loi classique de Bloch $M(t) = M(T_e(t))$ (valable dans le régime statique), peut s'appliquer pour des temps assez longs ($t \gg 280$ fs). Pour des temps plus courts ($\Delta t < 300$ fs), des déviations ont été observées en raison de la distribution hors-équilibre initiale des

électrons. Durant la même année, la photoémission à deux photons résolue en spin et en temps (SP- 2PPE) d'un film de nickel (6 Å et 12 Å d'épaisseur) a été étudiée [16]. L'observation principale était que la réponse transitoire de l'aimantation évolue selon deux échelles : initialement, une désaimantation rapide est obtenue en 100 fs et plus tard, une relaxation exponentielle de l'aimantation est observée avec un temps de 500 ps. Le premier signal est interprété de façon microscopique par les processus de diffusion d'électrons dépendant du spin (excitations de Stoner) et la relaxation tardive par les interactions spin réseau (magnon-phonon).

En 1998, nous avons montré à Strasbourg [17] qu'un film de CoPt_3 peut passer d'une phase ferromagnétique à la phase paramagnétique en utilisant des impulsions laser intenses (voir la figure 2). Des résultats similaires ont été rapportés par Conrad et al [18, 19] dans le cas de films de Ni, mais à une échelle de temps plus courte (~ 40 fs). De plus, la désaimantation se produit en même temps que la thermalisation des électrons.

Différentes expériences [20, 21, 22, 23] ont établi une forte dépendance de la dynamique des signaux magnéto-optiques avec les composantes mesurées de la polarisation (ellipticité et rotation), indiquant qu'aux temps ultra-courts (< 200 fs) la dynamique d'aimantation est difficile à interpréter. Une expérience déterminante du groupe de Strasbourg effectuée sur un film de CoPt_3 [23] a permis de conclure que la désaimantation induite par le laser se produit pendant la thermalisation des électrons (~ 60 fs dans le cas de CoPt_3 excité avec une faible puissance laser). De plus, cette expérience a montré qu'il est possible de distinguer entre la dynamique des charges et des spins dans le signal magnéto-optique en séparant la dynamique des éléments diagonaux et non diagonaux du tenseur diélectrique (figure 3).

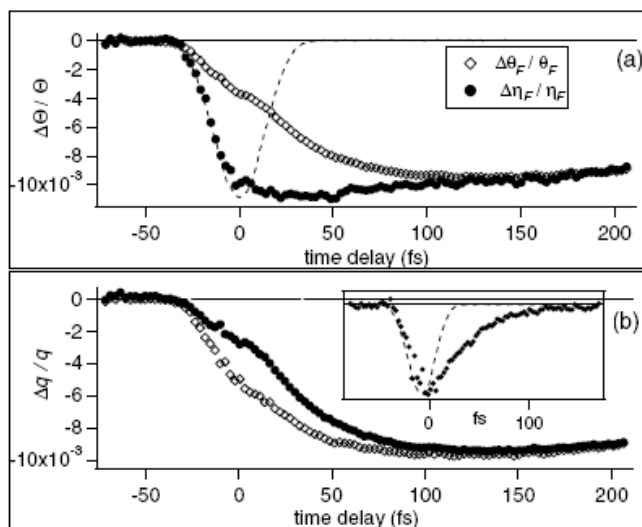


Figure 3 : En haut : signaux Faraday résolus en temps, rotation (losanges) et ellipticité (points). Les tirets représentent l'auto-corrélation des impulsions pompe et sonde. En bas : variations relative des parties réelles (losange) et imaginaires (points) du vecteur de Voigt Q. Les dynamiques sont identiques au delà de 150 fs. Leur différence illustre la relaxation des spins non thermalisés [23].

D'autres techniques ont également été employées. La spectroscopie TéraHertz a permis d'observer l'émission de photons associée à la variation ultra-rapide du champ magnétique [24]. La spectroscopie de photoémission résolue en temps a permis d'étudier la dynamique des spins minoritaires et majoritaires dans les bandes 3d pendant le temps de thermalisation [25] mettant ainsi en exergue la modification du couplage d'échange. Enfin, très récemment, la spectroscopie des rayons X femtosecondes a permis d'étudier séparément la dynamique du moment orbital et du moment magnétique [26].

D'un point de vue théorique, différentes approches ont été utilisées pour expliquer l'origine de la désaimantation ultrarapide basées : sur l'effet du couplage spin-orbite [27, 28], sur les excitations de Stoner [29] ou encore sur les mécanismes d'interaction électron-magnon [30]. Un autre modèle a été proposé très récemment dans lequel la désaimantation ultra-rapide est expliquée par la diffusion des spins (spin flip) sur des centres d'impuretés ou avec des phonons selon le mécanisme d'Elliot Yafet [31, 32].

La désaimantation induite par le laser est très efficace pour étudier la dynamique de précession de l'aimantation autour du champ magnétique effectif. C'est l'analogue temporel de la résonance ferromagnétique observée dans le domaine des fréquences, qui est induite habituellement par un champ magnétique radiofréquence [5, 6]. L'utilisation de la méthode optique a été reportée par Ju et al [33] pour étudier la rotation cohérente de l'aimantation induite par les interactions d'échange ferromagnétique-antiferromagnétique entre des couches NiFe/NiO et par van Kampen et al [34] pour sonder les ondes de spins dans un film de nickel et de permalloy. La réorientation du vecteur d'aimantation a été observée à Strasbourg en mesurant les trois composantes de l'aimantation (polaire, longitudinale et transverse) [35]. Ce travail a montré que la précession est fortement influencée par le changement dynamique du champ effectif via une dépendance temporelle de l'anisotropie (soit magnéto-cristalline, soit de forme) [34, 36, 37]. Une étude détaillée effectuée dans notre groupe a permis de mettre en évidence l'importance de l'anisotropie magnéto-cristalline sur la précession de l'aimantation [37], en faisant des mesures sur deux types d'échantillons l'un avec une anisotropie perpendiculaire (Co/Saphir), l'autre avec une anisotropie dans le plan (Co/MgO). Un changement de la phase et de la période de précession a été observé ainsi que des battements entre ondes de spins. Ces résultats ont été modélisés par un modèle dynamique à deux bains couplés aux équations de Bloch dans lesquelles l'amplitude du vecteur aimantation n'est pas constante mais dépend de la température selon une loi de Curie-Weiss.

C'est seulement très récemment que le groupe de Th. Rasing a montré une dynamique cohérente de l'aimantation dans des orthoferrites supérieure à 400 GHz [38, 39]. Cette

dynamique a été induite via l'effet photomagnétique. Néanmoins, ces échelles de temps ont un ordre de magnitude plus petite que la durée des impulsions laser, lequel peut être utilisé dans les medias d'écriture comme une alternative idéale.

Dans ce travail de thèse nous nous sommes intéressés à la dynamique d'aimantation de nanostructures magnétiques excitées par des impulsions laser femtosecondes ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ sec}$), deux principaux objectifs ont été poursuivis :

- ✓ Etudier le caractère gyroscopique de la dynamique d'aimantation de nanoparticules monodomains de Cobalt lorsqu'elles sont dans un régime superparamagnétique. Il est bien connu que le superparamagnétisme de nanoparticules à température T résulte de l'activation thermique de leur aimantation lorsqu'elles possèdent une énergie d'anisotropie inférieure à $k_B T$. Les fluctuations d'aimantation associées à ce processus se produisent à une échelle de temps τ , au delà de laquelle l'aimantation moyenne mesurée est nulle. Ces concepts sont parfaitement résumés dans le modèle de Néel qui stipule un comportement de τ selon une loi d'Arrhénius [4] : $\tau = \tau_0 \exp(KV/k_B T)$. La validité de cette loi a été démontrée de manière non ambiguë dans une expérience de renversement d'aimantation effectuée sur une nanoparticule unique mono-domaine [40]. Par ailleurs, le mécanisme responsable des fluctuations a été étudié d'un point de vue théorique par Néel [4] et Brown [41], en tentant de relier le paramètre τ_0 aux constantes microscopiques du système comme l'amortissement η de l'aimantation, le facteur gyromagnétique γ , l'aimantation à saturation M_S ainsi que les quantités V , T et K . Le caractère gyroscopique précédant les fluctuations superparamagnétiques n'a jusqu'à présent pas été observé en temps réel en raison de l'échelle de temps très brève associée à τ_0 . De plus, la grande dispersion de résultats concernant ce paramètre ($\tau_0 \sim 10^{-12} - 10^{-9} \text{ sec}$) laisse envisager qu'une description pertinente du mouvement gyroscopique repose davantage sur des quantités telles que la fréquence du mouvement de précession et son temps d'amortissement. Cela nécessite d'étudier la dynamique des nanoparticules avec une nouvelle technique dont la résolution temporelle soit suffisante pour mettre en évidence directement le mouvement gyroscopique de l'aimantation. La technique pompe sonde résolue en temps ($\sim 120 \text{ fs}$) est la plus appropriée pour réaliser cette étude.

- ✓ Valider un protocole expérimental visant à montrer l'intérêt de la photonique de spins pour étudier la précession et le renversement d'aimantation dans des nanostructures magnétiques de dimensions latérales submicroniques. Il s'agissait de mettre au point un microscope Kerr magnéto-optique confocal permettant de réaliser des expériences résolues en temps à l'échelle d'une centaine de femtosecondes et avec une résolution spatiale de ~ 300 nm. Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à la dynamique d'aimantation d'un plot ferromagnétique individuel pour mettre en évidence l'effet des différents paramètres (la taille et la forme des plots, l'intensité du laser...) sur la relaxation du module et l'orientation de l'aimantation. Dans un deuxième temps, nous avons exploré la variation spatio-temporelle de l'aimantation de films ferromagnétiques, modifiée par un spot laser de diamètre submicronique. L'intérêt est que l'utilisation des impulsions laser femtosecondes donne la possibilité de manipuler l'aimantation dans la gamme de quelques centaines GigaHertz et donc de donner des informations utiles pour réaliser des nanostructures opérant éventuellement à de telles fréquences.

L'organisation générale du manuscrit est la suivante :

Dans le premier chapitre, nous rappelons les éléments théoriques nécessaires au contexte de notre travail expérimental. Au début, nous décrivons le formalisme permettant de décrire la dynamique d'aimantation d'un point de vue microscopique (système à deux niveaux de spins $\pm 1/2$ décrit dans l'approche de la matrice densité) et d'un point de vue macroscopique (macrospin décrit dans l'approche de Landau-Lifshitz). Ensuite, nous nous intéressons aux modèles dynamiques de Néel et Brown permettant de décrire les fluctuations d'aimantation induites thermiquement (super-paramagnétisme) dans des nanoparticules ferromagnétiques monodomaines. Enfin, nous décrivons les différents modèles microscopiques et macroscopiques qui ont été proposés pour expliquer la désaimantation ultrarapide et la relaxation d'aimantation induite par des impulsions laser.

Le deuxième chapitre introduit les techniques de mesures pompe-sonde qui ont été mises en œuvre pour étudier la dynamique d'aimantation de plots ferromagnétiques individuels et de nanoparticules magnétiques. Dans un premier temps, nous y décrivons les sources laser utilisées, ainsi que les processus physiques qui nous permettent d'accéder à la dynamique d'aimantation. Puis, nous détaillons le microscope magnéto-optique confocal qui permet d'obtenir une résolution spatiale de l'ordre de 300 nm et une résolution temporelle de

150 fs. Enfin, nous décrivons les conditions et les techniques de fabrication des échantillons (implantation ionique, lithographie électronique) ainsi que leurs caractéristiques magnétiques.

Le troisième chapitre est divisé en deux grandes parties. Dans la première, nous présentons les résultats concernant la dynamique d'aimantation dans des plots ferromagnétiques individuels de CoPt_3 et de Permalloy ($\text{Ni}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}$). Nous étudions l'influence de la densité d'excitation du laser de pompe sur le temps de relaxation spin-réseau et sur la période de la précession d'aimantation. Enfin, nous utilisons le mode d'imagerie du microscope pour étudier la relaxation spatio-temporelle de l'aimantation d'un plot unique. Dans la deuxième partie, nous présentons une technique originale d'imagerie différentielle permettant d'étudier le renversement de l'aimantation d'un plot individuel de CoPt_3 . Cette technique est également utilisée à la fois pour l'écriture et pour la lecture de domaines magnétiques submicroniques dans des films ferromagnétiques de CoPt (alliages et multicouches). Nous discutons l'effet des différents paramètres (intensité du laser, amplitude du champ magnétique appliqué et la nature des substrats sur lesquels sont déposés les films ferromagnétiques) sur le renversement d'aimantation. Pour comprendre les mécanismes de la désaimantation spatiale induite par laser sur les films, nous avons réalisé des mesures complémentaires avec le microscope à force magnétique (MFM) sur deux types de films : Alliage de CoPt_3 déposé sur saphir, et multicouches de CoPt déposées sur verre.

Enfin dans le quatrième chapitre, nous présentons les résultats concernant la dynamique d'aimantation de nanoparticules magnétiques implantées par bombardement ionique soit dans des matrices d' Al_2O_3 (diamètre < 4 nm, superparamagnétiques à 300 K) soit de SiO_2 (diamètre ~ 10 nm, ferromagnétiques à 300 K). Nous effectuons des expériences pompe-sonde magnéto-optiques permettant de visualiser la trajectoire d'aimantation dans les trois directions de l'espace (longitudinale, polaire et transverse). Pour les nanoparticules de diamètre $D \leq 4$ nm, nous montrons le caractère gyroscopique de la trajectoire de l'aimantation précédant les fluctuations superparamagnétiques [4]. Enfin, nous présentons des résultats expérimentaux concernant l'influence de la taille des particules sur l'amortissement de la précession d'aimantation.

Références bibliographiques de l'introduction générale

- [1] B. Hillebrands and K. Ounadjela (Eds.). Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures **I**. Topics in Applied Physics **83**. Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2002).
- [2] B. Hillebrands and K. Ounadjela (Eds.). Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures **II**. Topics in Applied Physics **87**. Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2003).
- [3] D. Weller, A. Moser, L. Folks, M. E. Best, W. Lee, M. F. Toney, M. Schwickert, J.-U. Thiele, and M. F. Doerner. IEEE Trans. Magn. **36**, 10 (2000).
- [4] L. Néel. Ann. Geophys. **5**, 99 (1949).
- [5] Y. Acremann, C. H. Back, M. Buess, O. Portmann, A. Vaterlaus, D. Pescia, and H. Melchior. Science **290**, 492 (2000).
- [6] T. Gerrits, H. van der Berg, J. Hohlfeld, L. Bar, and Th. Rasing. Nature **418**, 509 (2002).
- [7] T. Devolder, K. Ito, J. A. Katine, P. Crozat, J.-V. Kim, and C. Chappert. Appl. Phys. Lett. **88**, 152502 (2006).
- [8] I. Tudosa, C. Stamm, A. B. Kashuba, F. King, H. C. Siegmann, J. Stöhr, G. Ju, B. Lu, and D. Weller. Nature **428**, 831 (2004).
- [9] J.-Y. Bigot. C. R. Acad. Sci., Ser IV: Phys., Astrophys. **2**, 1483 (2001).
- [10] M. Agranat, S. Ashikov, A. Granovskii, and G. Rukman. Sov. Phys. JETP **59**, 804 (1984).
- [11] A. Vaterlaus, T. Beutler, and F. Meier. Phys. Rev. Lett. **67**, 3314 (1991).
- [12] A. Vaterlaus, T. Beutler, D. Guarisco, M. Lutz, and F. Meier. Phys. Rev. B. **46**, 5280 (1992).
- [13] W. Hübner and K.H. Bennemann. Phys. Rev. B. **53**, 3422 (1996).
- [14] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. Lett. **76**, 4250 (1996).
- [15] J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, and K.H. Bennemann. Phys. Rev. Lett. **78**, 4861(1997).
- [16] A. Scholl, L. Baumgarten, R. Jacquemin, and W. Eberhardt. Phys. Rev. Lett. **79**, 5146 (1997).
- [17] E. Beaurepaire, M. Maret, V. Halté, J. C. Merle, A. Daunois and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. B **58**, 12134 (1998).
- [18] U. Conrad, J. Gütde, V. Jähnke, and E. Matthias. Appl. Phys. B **68**, 511 (1999).
- [19] J. Gütde, U. Conrad, V. Jähnke, J. Hohlfeld, and E. Matthias. Phys. Rev. B **59**, R6608

- (1999).
- [20] B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge. Phys. Rev. Lett. **85**, 844 (2000).
- [21] B. Koopmans, M. van Kampen, and W. J. M. de Jonge. J. Phys. : Condens. Matt. **15**, S723 (2003).
- [22] H. Regensburger, R. Vollmer, and J. Kirschner. Phys. Rev. B **61**, 14716 (2000).
- [23] L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. Lett. **89**, 017401 (2002).
- [24] E. Beaurepaire, G. M. Turner, S. M. Harrel, M. C. Beard, J.-Y. Bigot, and C. A. Schmuttenmaer. Appl. Phys. Lett. **84**, 3465 (2004).
- [25] M. Cinchetti, M. Sanchez Albaned, D. Hoffmann, T. Roth, J.-P. Wüstenberg, M. Krauß, O. Andreyev, H. C. Schneider, M. Bauer, and M. Aeschlimann. Phys. Rev. Lett. **97**, 177201 (2006)
- [26] C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, R. Mitzner, T. Quast, K. Holldack, S. Khan, C. Lupulescu, E. F. Aziz, M. Wietstruk, H. A. Dürr, W. Eberhardt. Nature Materials **6**, 740 (2007).
- [27] G.P. Zhang and W. Hübner. Phys. Rev. Lett. **85**, 3025 (2000).
- [28] W. Hübner and G.P. Zhang. Phys. Rev. B **58**, R5920 (1998).
- [29] B. Koopmans. « Laser-induced magnetization dynamics » in Topics of Applied Physics: Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures **II**, edited by B. Hillebrands and K. Ounadjela. (Springer, New York) PP 253-320 (2003).
- [30] V.P. Zhukov, E.V. Chulkov, and P.M. Echenique. Phys. Rev. Lett. **93**, 096401 (2004).
- [31] B. Koopmans, J.J.M. Ruigrok, F. Dalla Longa, and W.J.M. de Jonge. Phys. Rev. Lett. **95**, 267207 (2005).
- [32] B. Koopmans, H.H.J.E. Kicken, M. van Kampen and W.J.M. de Jonge. J. Magn. Magn. Mat. **286**, 271 (2005).
- [33] G. Ju, A. V. Nurmikko, R. F. C. Farrow, R. F. Marks, M. J. Carey, and B. A. Gurney. Phys. Rev. Lett. **82**, 3705 (1999).
- [34] M. van Kampen, C. Jozsa, J.T. Kohlhepp, P. LeClair, L. Lagae, W.J.M. de Jonge and B. Koopmans. Phys. Rev. Lett. **88**, 227201 (2002).
- [35] M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. Lett. **94**, 237601 (2005).
- [36] F. Hansteen, A. Kimel, A. Kirilyuk, and Th. Rasing. Phys. Rev. Lett. **95**, 047401 (2005).
- [37] J.-Y. Bigot, M. Vomir, L. H. F. Andrade, and E. Beaurepaire. Chem. Phys. **318**, 137 (2005).

- [38] A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P.A. Usachev, R.V. Pisarev, A.M. Balbashov, and Th. Rasing. Nature **435**, 655 (2005).
- [39] A.V. Kimel, A. Kirilyuk, and Th. Rasing, R.V. Pisarev. J. Magn. Soc. Japan **29**, 523-528. (2005).
- [40] C. Thirion, W. Wernsdorfer, and D. Maily. Nature Materials **2**, 524-527 (2003).
- [41] W. F. Brown. J. Appl. Phys. **34**, 1319 (1963).

Chapitre I : Aspects théoriques

Dans ce premier chapitre, nous rappelons les éléments théoriques sous-jacents à la dynamique de spins et qui permettront d'éclairer nos résultats expérimentaux. Au début, nous décrivons le formalisme théorique de la dynamique d'aimantation d'un point de vue microscopique (système de spin $1/2$ à deux niveaux) et d'un point de vue macroscopique (macro-spin). Ensuite, nous nous intéresserons au modèle dynamique de Néel-Brown pour étudier l'activation thermique de l'aimantation dans des nanoparticules ferromagnétiques mono-domaines. En particulier, nous reprendrons le calcul du temps de relaxation de l'aimantation dans l'approximation de la barrière d'anisotropie haute. Enfin, nous passerons en revue les différents modèles microscopiques qui ont été proposés par d'autres groupes de recherche pour expliquer la désaimantation ultrarapide induite par des impulsions laser, reposant notamment : sur l'effet d'interaction spin orbite, sur les excitations de Stoner et sur la diffusion électron-magnon. Nous reprendrons également le modèle développé dans notre groupe pour expliquer la relaxation du module et l'orientation de l'aimantation qui repose sur les équations de la chaleur de deux bains thermiques (électrons et réseau) couplées aux équations de Bloch.

1.1. Description microscopique de la dynamique d'aimantation (Micro-magnétisme)

Dans cette partie, nous rappelons quelques approches théoriques sur la dynamique d'aimantation qui est définie par une équation générale du mouvement. Au début, nous commençons par la description basée sur la mécanique quantique pour expliquer la précession d'un système de spins 1/2, et les phénomènes de relaxation transverse et longitudinal des valeurs moyennes du moment magnétique du spin qui est introduit de façon phénoménologique dans l'approche de Bloch. Après, nous rappelons les équations de Landau Lifshitz et Gilbert appropriées pour étudier la dynamique d'un macro-spin et qui sont bien adaptées pour décrire la dynamique des systèmes ferromagnétiques. Enfin, nous discuterons la validité des deux descriptions de Landau Lifshitz Gilbert et de Bloch Bloembergen dans des conditions extrêmes où la variation de module d'aimantation en fonction du temps doit être prise en compte.

1.1.1. Description quantique d'un système à deux niveaux de spins 1/2

1.1.1.1. Précession d'un spin 1/2

En mécanique quantique, le moment magnétique intrinsèque \mathbf{m} est associé à un moment de spin \mathbf{S} (1/2), et sa valeur moyenne $\langle \mathbf{m} \rangle$ est donnée par la relation [1] :

$$\langle \mathbf{m} \rangle = \gamma \langle \mathbf{S} \rangle \quad (\text{I.1.1})$$

γ est le rapport gyromagnétique, qui est donné par : $\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar} < 0$, μ_B étant le magnéton de

Bohr et g le facteur de Landé ($g = 2.0032$ pour un électron libre).

\mathbf{S} est l'opérateur de spin défini par :

$$\mathbf{S} = \frac{\hbar}{2} (\sigma_x \mathbf{e}_x + \sigma_y \mathbf{e}_y + \sigma_z \mathbf{e}_z) \quad (\text{I.1.2})$$

σ_i ($i = 1, 2, 3$) étant les matrices de Pauli.

Considérons que le spin est placé dans un champ magnétique externe statique \mathbf{H}_0 dirigé selon l'axe Oz. De plus, on applique un champ magnétique dépendant du temps \mathbf{H}_1 perpendiculaire à \mathbf{H}_0 . Dans le repère (x, y, z) le champ effectif est :

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = H_x(t)\mathbf{e}_x + H_y(t)\mathbf{e}_y + H_0\mathbf{e}_z. \quad (\text{I.1.3})$$

Dans le formalisme quantique, l'énergie d'interaction classique de Zeeman $U = -\mu_0 \mathbf{m} \cdot \mathbf{H}_{\text{eff}}$ est remplacé par l'opérateur de l'hamiltonien $H = -\mu_0 \gamma \mathbf{S} \cdot \mathbf{H}_{\text{eff}}$. $\mu_0 c$ est la perméabilité magnétique du vide.

Les deux états de spins $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont les états propres de \mathbf{S}_z , observable du spin dans la direction de quantification (figure I.1.1):

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_z |+\rangle &= \frac{\hbar}{2} |+\rangle & |+\rangle &= \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \\ \mathbf{S}_z |-\rangle &= -\frac{\hbar}{2} |-\rangle & |-\rangle &= \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad ; \quad (I.1.4)$$

L'hamiltonien du système devient :

$$\begin{aligned} H &= \omega_0 \mathbf{S}_z + \gamma_0 H_x(t) \mathbf{S}_x + \gamma_0 H_y(t) \mathbf{S}_y, \text{ avec } \gamma_0 = -\gamma \mu_0 \text{ et } \omega_0 = \gamma_0 H_0 \\ H &= H_0 + H_1 \end{aligned} \quad (I.1.5)$$

On définit le vecteur pseudo-spin (valeur moyenne du moment de spin) comme :

$$\langle \mathbf{S} \rangle = \langle \mathbf{S}_x \rangle \mathbf{e}_x + \langle \mathbf{S}_y \rangle \mathbf{e}_y + \langle \mathbf{S}_z \rangle \mathbf{e}_z \quad (I.1.6)$$

Dans le formalisme de la matrice densité, les valeurs moyennes des trois composantes de $\langle \mathbf{S} \rangle$ sont définies par :

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{S}_x \rangle &= \text{Tr}(\rho(t) \mathbf{S}_x) \\ \langle \mathbf{S}_y \rangle &= \text{Tr}(\rho(t) \mathbf{S}_y) \\ \langle \mathbf{S}_z \rangle &= \text{Tr}(\rho(t) \mathbf{S}_z) \end{aligned} \quad (I.1.7)$$

$\rho(t)$ étant la matrice densité 2×2 , dont les éléments diagonaux et non diagonaux dans la base $\{|+\rangle, |-\rangle\}$ s'écrivent : $\rho_{++} = \langle + | \rho | + \rangle$; $\rho_{+-} = \langle + | \rho | - \rangle$; $\rho_{-+} = \langle - | \rho | + \rangle$; $\rho_{--} = \langle - | \rho | - \rangle$

Les valeurs moyennes deviennent :

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{S}_x(t) \rangle &= \hbar/2 (\rho_{+-}(t) + \rho_{-+}(t)) \\ \langle \mathbf{S}_y(t) \rangle &= i\hbar/2 (\rho_{+-}(t) - \rho_{-+}(t)) \\ \langle \mathbf{S}_z(t) \rangle &= \hbar/2 (\rho_{++}(t) - \rho_{--}(t)) \end{aligned} \quad (I.1.8)$$

L'évolution temporelle de ces valeurs moyennes est donnée par l'équation de Liouville :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho(t) = [H_0 + H_1(t), \rho] \quad (I.1.9)$$

Les éléments de matrices obéissent alors aux équations couplées:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho_{+-}(t) + \rho_{-+}(t)) &= -i\omega_0 (\rho_{+-} - \rho_{-+}) - \gamma_0 H_y (\rho_{++} - \rho_{--}) \\ \frac{\partial}{\partial t} (\rho_{+-}(t) - \rho_{-+}(t)) &= -i\omega_0 (\rho_{+-} + \rho_{-+}) - i\gamma_0 H_x (\rho_{++} - \rho_{--}) \\ \frac{\partial}{\partial t} (\rho_{++}(t) - \rho_{--}(t)) &= i\gamma_0 H_x (\rho_{+-} + \rho_{-+}) - \gamma_0 H_y (\rho_{+-} + \rho_{-+}) \end{aligned} \quad (I.1.10)$$

En définissant le champ effectif comme [2] :

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = H_x \mathbf{e}_x + H_y \mathbf{e}_y + (H_z)_{\text{eff}} \mathbf{e}_z ; (H_z)_{\text{eff}} = H_0 \quad (\text{I.1.11})$$

On obtient l'évolution des valeurs moyennes:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \langle \mathbf{S}_x \rangle &= \gamma_0 [H_y \langle \mathbf{S}_z \rangle - (H_z)_{\text{eff}} \langle \mathbf{S}_y \rangle] \\ \frac{\partial}{\partial t} \langle \mathbf{S}_y \rangle &= \gamma_0 [(H_z)_{\text{eff}} \langle \mathbf{S}_x \rangle - H_x \langle \mathbf{S}_z \rangle] \\ \frac{\partial}{\partial t} \langle \mathbf{S}_z \rangle &= \gamma_0 [H_x \langle \mathbf{S}_y \rangle - H_y \langle \mathbf{S}_x \rangle] \end{aligned} \quad (\text{I.1.12})$$

Ou encore, sous forme vectorielle:

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle \mathbf{S} \rangle = \gamma_0 \langle \mathbf{S} \rangle \times \mathbf{H}_{\text{eff}} = \langle \mathbf{S} \rangle \times \Omega \quad (\text{I.1.13})$$

$\Omega = \gamma_0 \mathbf{H}_{\text{eff}}$ étant la fréquence de précession angulaire. Dans le cas simple où le moment magnétique est placé dans le champ statique $\mathbf{H}_{\text{eff}} = H_0 \mathbf{e}_z$, sa direction pointant en dehors de l'axe Oz, il va précesser autour de l'axe (Oz) à une fréquence angulaire ω_0 appelée également fréquence de Larmor (figure I.1.1). Sa valeur pour un électron libre est de 28 GHz pour un champ de 1 Tesla. Dans le cas général, le champ \mathbf{H}_{eff} dépend du temps, et par conséquent $\Omega(t)$ également.

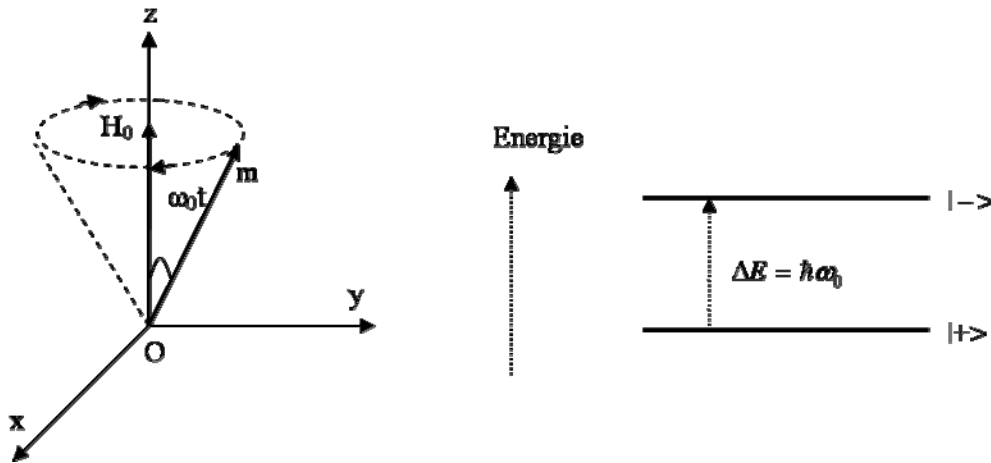


Figure I.1.1 : Précession du moment magnétique autour du champ H_0 (à gauche). Transition résonante avec absorption à l'énergie $\hbar\omega_0$ (à droite).

Dans le cas simple où le champ \mathbf{H}_1 est un champ radiofréquence ayant une fréquence ω voisine de ω_0 :

$$\mathbf{H}_1 = H_1 (\cos(\omega t) \mathbf{e}_x + \sin(\omega t) \mathbf{e}_y) \quad (\text{I.1.14})$$

En se plaçant dans un nouveau repère $(Ox'y'z)$ tournant autour l'axe Oz avec une vitesse angulaire ω représentée par le vecteur $\boldsymbol{\omega} = \omega \mathbf{e}_z$, le champ \mathbf{H}_1 est stationnaire et aligné selon l'axe x' et l'axe de rotation est confondu avec la direction du champ H_0 . L'équation de l'évolution du moment magnétique devient:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle \mathbf{m}' \rangle &= \frac{\partial}{\partial t} \langle \mathbf{m}' \rangle + (\langle \mathbf{m}' \rangle \times \omega \mathbf{e}_z) \\ &= \gamma_0 \langle \mathbf{m}' \rangle \times (\mathbf{H}_1 \mathbf{e}_{x'} + (\mathbf{H}_0 + \omega) \mathbf{e}_z) = \gamma_0 \langle \mathbf{m}' \rangle \times \mathbf{H}'_{\text{eff}} \end{aligned} \quad (\text{I.1.15})$$

$$\text{Avec } \mathbf{H}'_{\text{eff}} = \frac{1}{\gamma_0} ((\omega_0 - \omega) \mathbf{e}_z) + \mathbf{H}_1 \mathbf{e}_{x'} \quad (\text{I.1.16})$$

Le mouvement relatif du moment magnétique \mathbf{m}' est une précession autour du champ effectif \mathbf{H}'_{eff} qui est statique par rapport au référentiel tournant. Pour obtenir un mouvement absolu pour \mathbf{m} , il suffit de composer cette précession autour \mathbf{H}'_{eff} avec une rotation autour l'axe Oz à une vitesse angulaire ω (figure I.1.2).

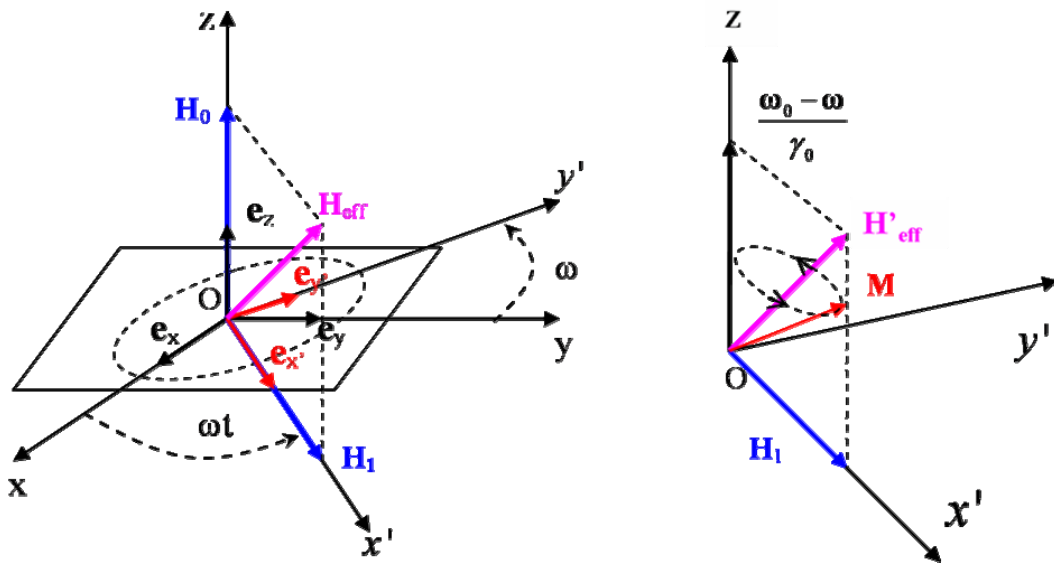


Figure I.1.2 : Présentation des différents repères $(Oxyz, \text{ et } Ox'y'z)$ en présence du champ radio fréquence H_1 (à gauche). Précession du moment magnétique \mathbf{m} autour du champ \mathbf{H}'_{eff} dans le nouveau repère $(Ox'y'z)$ (à droite).

I.1.1.2. Relaxation d'un système à deux niveaux: Equations de Bloch

Les équations (I.1.12) sont incomplètes puisqu'elles ne tiennent pas compte des mécanismes de relaxation du moment magnétique. En réalité, il existe des phénomènes d'amortissement associés au couplage entre les spins avec l'environnement (les électrons, les phonons, les impuretés ...). Cet amortissement permet à l'aimantation d'atteindre l'équilibre en minimisant l'énergie du système. Expérimentalement cette relaxation est responsable de l'élargissement de la raie d'absorption autour de la fréquence de résonance dans le cas de la résonance magnétique (soit nucléaire, paramagnétique ou ferromagnétique).

Intuitivement on peut appréhender les phénomènes de relaxation, en supposant qu'initialement on a un ensemble de systèmes à deux niveaux qui sont tous dans l'état fondamental (l'équilibre), avec $\langle \mathbf{m}_x \rangle = \langle \mathbf{m}_y \rangle = 0$, et $\langle \mathbf{m}_z \rangle = m_0$ (tous les moments magnétiques sont alignés selon le champ H_0). A $t = 0$, on provoque un changement de l'orientation de spin en appliquant un champ radiofréquence transverse ($\omega \sim \omega_0$) (dans le plan Oxy). Le moment \mathbf{m} (résultante des systèmes à 2 niveaux) se met à précesser autour du champ effectif total ($H_0 + H_1$). Lorsque l'on coupe le champ radiofréquence, le moment va retourner à l'équilibre (état fondamental) dans un temps caractéristique T_1 , appelé temps de relaxation longitudinal. T_1 caractérise donc la relaxation d'orientation du moment \mathbf{m} (de l'ensemble des spins $\frac{1}{2}$) vers la direction initiale de quantification. On lui associe une perte d'énergie puisque le système est retombé dans un état d'énergie inférieur. Indépendamment de ce processus, l'orientation du moment magnétique peut rester identique mais chacun des spins tournant dans le plan xy avec une phase différente. Le temps caractéristique pendant lequel les spins sont complètement déphasés les uns par rapport aux autres est le temps de relaxation transverse T_2 . Il correspond à la relaxation des composantes $\langle \mathbf{m}_x \rangle$ et $\langle \mathbf{m}_y \rangle$. On peut écrire l'évolution des composantes du moment magnétique comme [3]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle \mathbf{m}_{x,y} \rangle}{\partial t} &= \gamma_0 (\langle \mathbf{m} \rangle \times \mathbf{H}_{eff})_{x,y} - \frac{\langle \mathbf{m}_{x,y} \rangle}{T_2} \\ \frac{\partial \langle \mathbf{m}_z \rangle}{\partial t} &= \gamma_0 (\langle \mathbf{m} \rangle \times \mathbf{H}_{eff})_z - \frac{\langle \mathbf{m}_0 - \mathbf{m}_z \rangle}{T_1} \end{aligned} \quad (\text{I.1.17})$$

Ces équations différentielles couplées sont les équations de Bloch. F. Bloch a proposé ces équations dans le cas d'un système paramagnétique. Il a supposé que l'interaction des moments magnétiques avec leur entourage est responsable de la relaxation longitudinale de l'aimantation. Le temps T_1 correspond en particulier à l'interaction spin-réseau ou à

l'interaction spin/impureté ou spin/défaut. L'interaction entre les moments magnétiques eux mêmes est responsable de leur déphasage et est associée à la relaxation transverse. Le temps T_2 est donc associé aux interactions spin-spin.

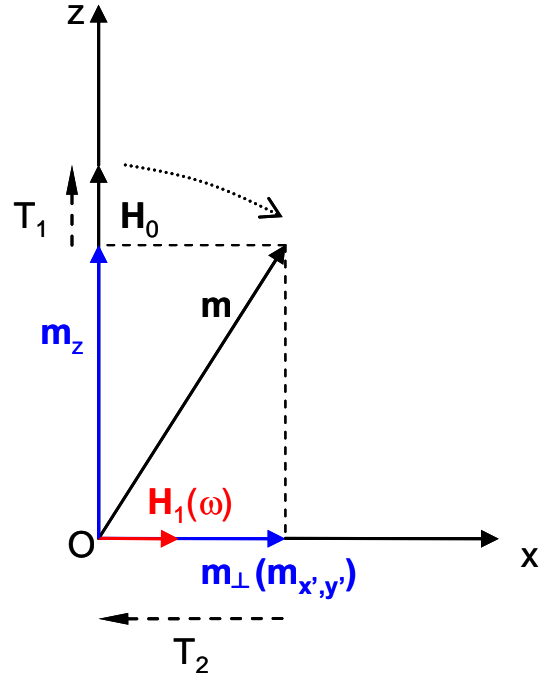


Figure I.1.3 : Schéma représentatif de la relaxation ferromagnétique : premièrement, le moment magnétique \mathbf{m} est excité de façon résonante avec un champ radio-fréquence H_1 hors de son état d'équilibre ($\parallel H_0$). Il précesse à la fréquence de Larmor autour de H_0 et acquiert une composante transverse $M_{\perp} \neq 0$ et sa composante longitudinale diminue : $m_z < m$. Si on supprime le champ H_1 , le moment relaxe vers l'état d'équilibre avec un temps de relaxation T_1 . Auparavant les spins constituant le moment magnétique peuvent se déphaser les uns par rapport aux autres dans le plan xy pendant un temps caractéristique T_2 associé à la relaxation des composantes transverse m_x et m_y de \mathbf{m} .

En présence du champ magnétique effectif donné par l'équation (I.1.16) (le cas d'un champ radiofréquence). L'équation d'évolution de \mathbf{m} dans le repère $(Ox'y'z)$ est :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle m_{x'} \rangle}{\partial t} &= \Delta\omega \cdot \langle m_{y'} \rangle - \frac{\langle m_{x'} \rangle}{T_2} \\ \frac{\partial \langle m_{y'} \rangle}{\partial t} &= -[\Delta\omega \cdot \langle m_{x'} \rangle - \omega_1 \cdot \langle m_z \rangle] - \frac{\langle m_{y'} \rangle}{T_2} \\ \frac{\partial \langle m_z \rangle}{\partial t} &= \omega_1 \cdot \langle m_{y'} \rangle - \frac{\langle m_z - m_0 \rangle}{T_1} \end{aligned} \quad (\text{I.1.18})$$

Avec $\Delta\omega = \omega_0 - \omega$, $\omega_1 = \gamma_0 H_1$.

L'état stationnaire est caractérisé par

$$\frac{\partial \langle m_{x'} \rangle}{\partial t} = \frac{\partial \langle m_{y'} \rangle}{\partial t} = \frac{\partial \langle m_z \rangle}{\partial t} = 0 \quad (\text{I.1.19})$$

Généralement, $|\mathbf{H}_1| \ll |\mathbf{H}_0|$ et donc $\omega_1 \ll \omega_0$. Dans le cas où $|\mathbf{H}_1|$ est suffisamment petit, $\langle m_{x'} \rangle$ et $\langle m_{y'} \rangle$ le sont aussi et l'équation (I.1.18) devient

$$\frac{\partial \langle m_z \rangle}{\partial t} = 0 \quad \Rightarrow \langle m_z \rangle = \langle m_0 \rangle + \omega_1 \cdot \langle m_{y'} \rangle \cdot T_1$$

Soit $\langle m_{\perp} \rangle = \langle m_{x'} \rangle \mathbf{e}_{x'} + \langle m_{y'} \rangle \mathbf{e}_{y'}$. Avec la condition $\langle m_z \rangle \approx \langle m_0 \rangle$ on obtient :

$$\frac{\partial \langle m_{\perp} \rangle}{\partial t} = -\langle m_{\perp} \rangle \left(\frac{1}{T_2} - i\Delta\omega \right) - i \langle m_0 \rangle \omega_1 \quad (\text{I.1.20})$$

En définissant τ par $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{T_2} - i\Delta\omega$. La solution générale de cette équation est de la forme :

$$\langle m_{\perp} \rangle = -C \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - i \langle m_0 \rangle \omega_1 \cdot \tau \quad (\text{I.1.21})$$

C étant une constante.

Au bout d'un temps suffisamment long, le terme transitoire exponentiel s'atténue et les solutions stationnaires au premier ordre sont de la forme :

$$\begin{aligned} \langle m_{x'} \rangle &\approx \langle m_0 \rangle \frac{\omega_1 \Delta\omega T_2^2}{1 + (\Delta\omega T_2)^2} \\ \langle m_{y'} \rangle &\approx \langle m_0 \rangle \frac{-\omega_1 T_2}{1 + (\Delta\omega T_2)^2} \\ \langle m_z \rangle &\approx \langle m_0 \rangle \left[1 - \frac{\omega_1^2 T_1 T_2}{1 + (\Delta\omega T_2)^2} \right] \end{aligned} \quad (\text{I.1.22})$$

La variation de $\langle m_{x'} \rangle$ en fonction de $\Delta\omega$ a l'allure d'une dispersion alors que celle de $\langle m_z \rangle$ a l'allure d'une absorption selon une Lorentzienne de largeur $\delta\omega = \frac{2}{T_2}$ [4] (voir figure I.1.4).

Ces solutions sont obtenues dans le cas le plus simple où le champ magnétique radiofréquence est homogène, de plus il n'y a pas d'interactions dans le système. Dans le cas des matériaux ferromagnétiques, les spins sont fortement couplés entre eux, conduisant à des modifications de l'élargissement de la raie de l'absorption.

Jusqu'ici nous avons admis implicitement que le champ magnétique était toujours parfaitement homogène. Dans les champs créés expérimentalement, ce n'est en général pas le cas et il existe toujours des petites inhomogénéités spatiales. Nous avons vu au paragraphe

précédent, que dans le cas d'un champ homogène, le spectre correspondant au signal de m_y ,

était une Lorentzienne de largeur à mi-hauteur : $\delta\omega_{\text{hom}} = \frac{2}{T_2}$.

En présence d'un champ inhomogène (on prendra une inhomogénéité ΔH_0) la largeur à mi-hauteur de la Lorentzienne aura une contribution supplémentaire due à cette inhomogénéité. Le champ variant entre $H_0 - \Delta H_0/2$ et $H_0 + \Delta H_0/2$, la pulsation de Larmor des moments magnétiques variera entre $\gamma_0(H_0 - \Delta H_0/2)$ et $\gamma_0(H_0 + \Delta H_0/2)$ d'où une contribution à la largeur de raie donnée par : $\delta\omega_{\text{inhom}} = \gamma_0 \cdot \Delta H_0$

La largeur totale de la raie spectrale observée vaudra donc :

$$\delta\omega = \delta\omega_{\text{hom}} + \delta\omega_{\text{inhom}} = \frac{2}{T_2} + \gamma_0 \cdot \Delta H_0 \quad (\text{I.1.23})$$

Nous pouvons définir le temps de relaxation transverse mesuré T_2^* par $\delta\omega = \frac{2}{T_2^*}$. Il tient compte de la relaxation transverse naturelle et des inhomogénéités du champ magnétique. Nous aurons finalement la relation :

$$\frac{1}{T_2^*} = \frac{1}{T_2} + \gamma_0 \cdot \Delta H_0 / 2 \quad (\text{I.1.24})$$

Il est clair que $T_2^* \leq T_2$ et que m_y disparaîtra plus rapidement que dans le cas d'un champ homogène.

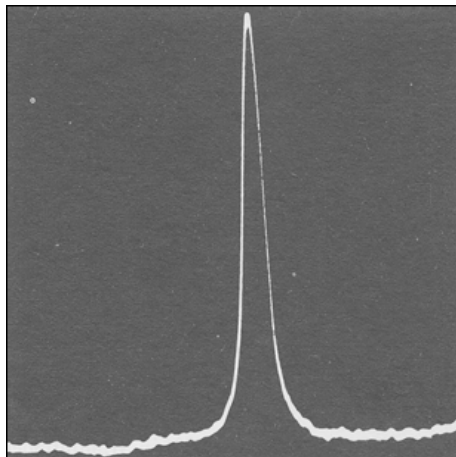


Figure I.1.4 : Spectre d'absorption expérimental obtenu par RMN des noyaux d'hydrogène dans de l'eau [5].

I.1.2. Description macroscopique de la dynamique d'aimantation d'un matériau ferromagnétique

Nous commençons par considérer la dynamique d'aimantation à l'échelle microscopique c'est-à-dire à des échelles caractéristiques plus petites que la longueur d'une paroi de domaine magnétique (le cas d'un mono-domaine). Dans ce cas, l'aimantation est considérée uniforme sur tout le domaine et sa norme est constante: $|\mathbf{M}| = \text{const.}$ Expérimentalement, c'est toujours la dynamique d'un ensemble de spins qui est mesurée. Si ces spins précessent de façon incohérente avec différentes fréquences (ou phases), le signal mesuré est nul. Cependant, il est possible d'induire une précession cohérente d'un grand nombre de spins \mathbf{S}_i dans la région étudiée du matériau ferromagnétique. Dans ce cas, les spins sont considérés comme un moment individuel nommé macrospin, et le vecteur d'aimantation \mathbf{M} est la somme de tous les moments magnétiques du spin \mathbf{m}_i divisé par le volume V de la région étudiée : $\mathbf{M} = (\sum \mathbf{m}_i) / V$.

L'équation de mouvement du vecteur d'aimantation \mathbf{M} est de la forme :

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle \mathbf{M} \rangle = \gamma_0 \langle \mathbf{M} \rangle \times \mathbf{H}_{\text{eff}} \quad (\text{I.1.25})$$

$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H}_{\text{app}} + \mathbf{H}_{\text{échange}} + \mathbf{H}_{\text{anis}} + \mathbf{H}_{\text{dem}}$ étant le champ effectif présent dans le système ferromagnétique. Il contient plusieurs contributions :

- Le champ appliqué \mathbf{H}_0 qui, par couplage dipolaire avec le moment magnétique induit un terme d'énergie de Zeeman: $E_{\text{zeeman}} = -\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_0$.

- Le champ $\mathbf{H}_{\text{échange}}$ est associé aux interactions d'échange responsables d'un couplage entre les spins dans un matériau ferromagnétique. Il est donné par [5] :

$$\mathbf{H}_{\text{échange}} = (2A / |\mathbf{M}|^2) \cdot \nabla^2 \mathbf{M} \quad (A \text{ est une constante})$$

- Le champ \mathbf{H}_{anis} est le champ d'anisotropie magnéto-cristalline. Il est à l'origine d'orientations préférentielles de l'aimantation dans l'espace (axes faciles). Il est donné par :

$$\mathbf{H}_{\text{anis}} = (-1 / |\mathbf{M}|) \nabla E_{\text{anis}}(\mathbf{M})$$

E_{anis} est l'énergie d'anisotropie magnétique, qui bien entendu dépend de la structure cristalline du matériau.

- le champ \mathbf{H}_{dem} est associé à l'anisotropie magnétique de forme, laquelle est reliée aux interactions dipolaires de longues portées. Ce terme dépend de la forme de l'échantillon ainsi que des conditions aux limites: $\mathbf{H}_{\text{dem}} = -[N] \cdot \mathbf{M}$

$[\mathbf{N}] = \sum N_{ij}$ est le tenseur démagnétisant ($i, j = x, y, z$). Pour un film mince $\mathbf{N} = (0, 0, 1)$, la direction z étant la normale au plan du film.

Il existe d'autres sources d'anisotropie comme la magnétostriction qui correspond à l'application d'une contrainte mécanique dans une direction donnée et qui favorise l'orientation de l'aimantation dans cette direction.

1.1.2.1. Equation de Landau Lifshitz Gilbert (LLG)

Dans le cas du mono-domaine avec une norme d'aimantation constante, Landau et Lifshitz ont proposé une équation de la dynamique d'aimantation [6] incluant une relaxation orientationnelle du vecteur aimantation. Cette équation est largement utilisée aujourd'hui dans les simulations micro-magnétiques (Voir par exemple la référence [7]). Ils ont modélisé le terme d'amortissement dans l'équation du mouvement d'aimantation (I.1.25) par un couple proportionnel à $\mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}})$. Ce couple crée une force perpendiculaire au plan de déplacement de l'aimantation \mathbf{M} (plan de $\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}$), forçant l'aimantation à s'aligner selon la direction du champ \mathbf{H}_{eff} . Ainsi, l'équation de Landau Lifshitz est donnée par :

$$\frac{d}{dt} \mathbf{M}(t) = \gamma'_0 (\mathbf{M}(t) \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) - \frac{\lambda}{M_S^2} (\mathbf{M}(t) \times (\mathbf{M}(t) \times \mathbf{H}_{\text{eff}})) \quad (\text{I.1.26})$$

λ est un paramètre de dissipation (une constante) et M_S est l'aimantation de saturation.

Le terme d'amortissement dans l'équation de Landau-Lifshitz est introduit mathématiquement satisfaisant le besoin d'une dissipation de l'aimantation vers l'état de basse énergie.

Une autre description phénoménologique de la relaxation a été introduite par Gilbert [8]. Gilbert a remplacé le champ \mathbf{H} avec un champ effectif en incluant un terme de dissipation de type ohmique :

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H} - \alpha \frac{1}{\gamma_0 M_S} \frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} \quad (\text{I.1.27})$$

où α est un paramètre sans dimension.

Cette dissipation a la même forme que celle de Rayleigh où la fonction de dissipation associée est une combinaison des vitesses généralisées carrées [7] (dans le formalisme de Lagrangien).

Insérant la forme du champ effectif (équation I.1.27) dans l'équation du mouvement de l'aimantation I.1.25 on obtient l'équation générale de Gilbert:

$$\frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} = \gamma_0 (\mathbf{M}(t) \times \mathbf{H}) - \frac{\alpha}{M_S} \left[\mathbf{M}(t) \times \frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} \right] \quad (\text{I.1.28})$$

On peut écrire aussi l'équation de Gilbert sous la forme:

$$\frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} = \gamma_0 \mathbf{M}(t) \times \left[\mathbf{H}_{\text{eff}} - \eta \left(\frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} \right) \right] \quad (\text{I.1.29})$$

La constante η est le paramètre phénoménologique de damping de Gilbert.

Les deux formalismes de Landau Lifshitz et de Gilbert sont équivalents par la substitution :

$$g' \rightarrow \frac{\gamma_0}{1 + (\gamma_0^2 \eta^2 M_S^2)}, \quad h' \rightarrow \frac{\lambda}{M_S^2} = \frac{\gamma_0^2 \eta}{1 + (\gamma_0^2 \eta^2 M_S^2)}$$

qui transforme l'équation (I.1.29) en l'équation:

$$\frac{d}{dt} \mathbf{M}(t) = g' (\mathbf{M}(t) \times \mathbf{H}) - h' (\mathbf{M}(t) \times (\mathbf{M}(t) \times \mathbf{H})) \quad (\text{I.1.30})$$

Cette équation a la même forme que l'équation de Landau Lifshitz (I.1.26), sauf que les deux paramètres g' et h' dépendent de la quantité $\gamma_0 \eta M_S$. Dans des films ferromagnétiques l'amortissement (α) est généralement petit, l'équation de Landau Lifshitz (LL) est suffisante pour étudier la dynamique d'aimantation. Par exemple l'amortissement est de l'ordre de 0.008 pour le Permalloy [9], 0.0023 pour le fer [10]; donc, $\alpha^2 = (\gamma_0 \eta M_S)^2 \sim 0$ et par conséquent $g' \approx \gamma_0$ et $h' = \frac{\lambda}{M_S^2} = \gamma_0 \eta^2$. Dans le cas plus général où le damping est assez élevé (le cas des nanoparticules magnétiques (voir chapitre IV)), l'équation de Gilbert est le mieux adaptée que celle de Landau Lifshitz pour des raisons pratiques [11].

I.1.2.2. Discussion

Il est important de noter que les deux modèles que nous venons de voir (Landau Lifshitz, Gilbert) correspondent à une relaxation exponentielle à laquelle on pourrait associer un seul temps de relaxation τ en assurant la conservation de la norme de l'aimantation pendant le mouvement ($d|\mathbf{M}|^2/dt=0$). Cette hypothèse est purement phénoménologique et vient des observations expérimentales où l'élargissement des raies d'absorption de résonance ferromagnétique (RFM) est lorentzienne. Les valeurs mesurées expérimentalement risquent d'être affectées par des effets de décohérences spatiales (inhomogénéités du champ magnétique, du substrat...) qui résulteront en une relaxation différente pour les différentes composantes de l'aimantation ($M_Z, M_{X,Y}$). Par conséquent, on ne peut pas considérer en général que la norme de l'aimantation est conservée. Pour tenir compte des effets de moyennage, une description plus générale, a été proposée par N. Bloembergen [12],

s'inspirant du formalisme de Bloch qui décrit la relaxation de l'aimantation par deux types de relaxations : longitudinal (T_1) et transverse (T_2) (voir la paragraphe I.1.1.2.).

La contrainte de conservation de la norme impose une relation entre les temps de relaxation transverse et longitudinal, qui s'écrit, dans la limite des petits angles de précession [13] : $T_1 = 2T_2 = T$.

Donc, un seul paramètre T est suffisant pour décrire la relaxation de l'aimantation d'un système parfaitement homogène. Dans le cas d'un système peu dissipatif, les trois paramètres α de Gilbert, λ de Landau Lifshitz (LL) et T de Bloch Bloembergen (BB) sont reliés par la relation [14] :

$$\alpha = \frac{\lambda}{M_s} = \frac{T}{\omega} ; \quad (\text{I.1.31})$$

ω étant la fréquence de précession autour le champ effectif.

La non conservation de la norme implique qu'il y a une différence entre les temps de relaxation ($T_2 \ll T_1$) traduisant le fait que les effets de décohérence induisent une relaxation transverse apparente plus rapide que la relaxation longitudinale.

Par ailleurs, les équations de LLG, ne peuvent pas rendre compte de certains processus intervenant dans la relaxation ferromagnétique. Elles sont mises en défaut pour les grands angles de précession pour lesquels l'amortissement lui même dépend de la fréquence de précession. L'interprétation des mesures expérimentales de la résonance ferromagnétique devient plus difficile pour déterminer les deux temps de relaxations T_1 et T_2 dans la description de Bloch Bloembergen (BB). De plus, la non conservation du module de l'aimantation met en cause la validité de l'équation de Landau Lifshitz Gilbert (LLG) dans les expériences de résonance ferromagnétique induite optiquement par des impulsions laser femtosecondes (dans notre cas par exemple). Dans ce cas, les équations de BB sont les plus appropriée avec ces conditions. Par conséquent, une équation plus générale est nécessaire pour expliquer les phénomènes de relaxation dans des matériaux ferromagnétiques pour différentes conditions.

Une équation plus générale nommée équation de Fokker Planck (FP) (voir la prochaine section) a été utilisée par Brown pour calculer le temps de relaxation d'aimantation d'une nanoparticule magnétique [15]. L'utilisation de cette équation permet d'étudier la dynamique d'aimantation pour n'importe quelle configuration du champ magnétique appliqué, anisotropie magnétique... Si les conditions extérieures changent assez lentement (température,...) l'équation de Fokker- Planck conduit à l'équation de LLB pour le modèle

classique où le champ du processus stochastique de Langevin décrit les interactions entre les spins et un réservoir de phonons [16].

Pour des températures élevées, D. A. Garanin a dérivé une équation générale de la dynamique d'aimantation dans les matériaux ferromagnétiques [17, 18]. Cette équation est donnée par les équations de Landau-Lifshitz-Bloch (LLB), décrivant les deux relaxations longitudinale et transverse de l'aimantation. En commençant par un formalisme de la matrice de densité (une description quantique) d'un système de spins quantiques en interaction avec un réservoir de phonons, il a interpolé l'équation de Landau Lifshitz à basses températures et l'équation de Bloch à hautes températures.

1.2. Modèle dynamique de Néel Brown

Ce modèle décrit la dynamique d'aimantation d'un système magnétique de petites dimensions caractérisé par une barrière d'énergie due à l'anisotropie qui peut être franchie par activation thermique. Cette dynamique est décrite à l'aide d'un temps caractéristique des fluctuations d'aimantation appelé temps de relaxation τ . Ce modèle est largement utilisé aujourd'hui dans le magnétisme, particulièrement pour décrire la dynamique de renversement d'aimantation d'une collection de particules. Dans ce paragraphe, nous reprenons les études effectuées par Brown [15] en nous restreignant au cas où la barrière d'énergie d'anisotropie KV est très grande devant l'énergie thermique $k_B T$.

Approximation des orientations discrètes

Avant de reprendre le traitement sophistiqué de Brown, basé sur les équations de Langevin et de Fokker Planck (FP), nous allons décrire brièvement l'approximation des orientations discrètes pour calculer le temps de relaxation d'une petite sphère magnétique. En général nous supposons que la hauteur de la barrière d'anisotropie est grande devant l'énergie thermique $k_B T$ de sorte que l'aimantation est tout le temps dirigée selon l'une des directions (θ_i, ϕ_i) de facile aimantation (basse énergie) et le système passe très peu de temps au voisinage du sommet de la barrière, θ_i et ϕ_i étant les angles polaires de la sphère associée à une direction particulière indicée par i . Ainsi dans l'orientation i il y a une probabilité ν_{ij} par unité de temps pour qu'un saut se produise vers l'orientation j . Considérons un grand nombre de particules d'orientations différentes $n = \sum_i n_i$ qui n'interagissent pas. Le nombre de particule n_i d'orientation i évolue dans le temps selon l'équation

$$dn_i / dt = \sum_{i \neq j} (v_{ji} n_j - v_{ij} n_i) \quad (I.2.1)$$

Dans le cas où seules deux orientations sont possibles (1 pour l'orientation positive, et 2 pour l'orientation négative), on a :

$$dn_1 / dt = -dn_2 / dt = v_{21} n_2 - v_{12} n_1 \quad (I.2.2)$$

En remplaçant n_2 par $n - n_1$ l'équation d'évolution pour n_1 devient :

$$d(n_2 - n_1) / dt = -(v_{21} + v_{12})(n_2 - n_1) + (v_{12} - v_{21})n \quad (I.2.3)$$

Si l'on admet que les probabilités de transitions v_{12} et v_{21} sont indépendantes du temps, l'évolution temporelle de l'équation (I.2.3) est de la forme $\exp(-t/\tau)$, τ étant le temps de relaxation $\tau = (v_{21} + v_{12})^{-1}$. Lorsque le système évolue à une température T , la distribution des probabilités de transition suit une loi de Boltzmann :

$$v_{ij} = c_{ij} \exp(-V(U_m - U_i)/k_B T), \quad (i = 1, j = 2 \text{ ou } i = 2, j = 1) \quad (I.2.4)$$

La probabilité v_{ij} dépend de la température T , de la constante d'anisotropie K , et du champ appliqué H . c_{ij} a la dimension d'une fréquence qui comme on va le voir dans la description de Néel est liée à la fréquence de précession de l'aimantation.

1.2.1. Modèle de Néel

En 1949, Néel a calculé pour la première fois le temps de relaxation d'aimantation de poudres ferromagnétiques constituées de grains magnétiques fins [19]. Il a supposé que chaque grain est une particule monodomaine avec une aimantation uniforme, possédant une anisotropie uniaxiale. Une barrière d'énergie d'anisotropie de hauteur KV (K est la constante d'anisotropie magnétique d'une particule et V son volume) s'oppose au retournement de l'aimantation de la particule. L'énergie thermique $k_B T$ est supposée être suffisamment faible devant la barrière KV ($k_B T \leq KV$). Ceci correspond à l'approximation des orientations discrètes dans laquelle les spins sont préférentiellement alignés selon l'un des axes de facile aimantation et passent peu de temps dans les configurations intermédiaires. Dans ce modèle, les spins de chaque particule sont couplés rigidement et le seul couple qui s'exerce dans le système est dû aux vibrations thermiques (réseau) de la particule via le couplage magnétoélastique. Ce couple perturbateur fait précesser l'aimantation de la particule. Les équations fondamentales de la mécanique appliquées au vecteur d'aimantation sur lequel s'exerce ce couple s'apparente à celle d'un système gyromagnétique qui a permis à Néel de déduire l'expression suivante pour le temps moyen de passage d'une direction à l'autre de l'aimantation :

$$\frac{1}{\tau_N} = \frac{1}{\tau_0} \exp\left(-\frac{KV}{k_B T}\right); \quad (I.2.5)$$

Le préfacteur τ_0 est appelé le temps de relaxation de Néel qui en a donné une expression basée sur une description mécanique faisant intervenir la magnétostriction :

$$\tau_0 = \frac{M_s}{6K\gamma_0 |\lambda_s|} \sqrt{\frac{\pi k_B T}{2GV}};$$

γ_0 est le facteur gyromagnétique, λ_s est la constante de magnétostriction longitudinale, et G est le module de Young. Utilisant les paramètres typiques des métaux de transitions, Néel a donné une estimation de τ_0 qui est de l'ordre de 10^{-9} s.

I.2.2. Modèle de Brown

Quelques années plus tard, Brown a adopté une autre démarche qui ne suppose pas, comme c'est le cas dans l'approche de Néel, des orientations discrètes où l'aimantation est toujours dirigée selon l'un des axes de facile aimantation. Brown a étudié de façon plus rigoureuse et générale la densité de probabilité d'orientation de l'aimantation, directions des moments magnétiques évoluant avec le temps selon l'équation de Gilbert [15, 20, 21, 22, 23]. Pour prendre en compte l'agitation thermique, il a ajouté un terme de champ fluctuant $\mathbf{h}(t)$ dans la partie dissipative de l'équation de Gilbert ($-\eta d\mathbf{M}/dt$). L'équation du mouvement stochastique de l'aimantation prend alors la forme d'une équation de Langevin:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma_0 \mathbf{M} \times \left[\mathbf{H}_{\text{eff}} - \eta \left(\frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) + \mathbf{h}(t) \right] \quad (I.2.6)$$

Concernant la statistique des composantes $\mathbf{h}_i(t)$ du champ fluctuant, Brown a considéré que le processus est stationnaire et Gaussien, les composantes $h_i(t)$ et $h_j(t+\tau)$ étant corrélées seulement pour un intervalle de temps τ plus petit que le temps nécessaire à un changement important de l'aimantation. Autrement dit, les corrélations sont quasi-instantanées :

$$\langle h_i(t) \rangle = 0 \quad \text{et} \quad \langle h_i(t) h_j(t+\tau) \rangle = \mu \delta_{ij} \delta(t). \quad (I.2.7)$$

Pour résoudre l'équation du mouvement (I.2.6) Brown s'est inspiré de la méthode de Wang et Uhlenbeck [24] pour dériver une équation générale de type Fokker Planck pour l'évolution de la densité de probabilité d'orientations $W(\theta, \phi, t)$. Dans un premier temps, Brown a introduit l'agitation thermique de façon intuitive pour obtenir l'équation de Fokker Planck.

I.2.2.1. Dynamique d'aimantation sur la sphère unité

Les orientations des moments magnétiques du système de particules magnétiques sont assimilées à un courant de points représentatifs se déplaçant sur une sphère unité avec une densité $W(\mathbf{r},t)$ et un courant de densité $\mathbf{J}(\mathbf{r},t)$. $\mathbf{r} = \mathbf{M}/M_s$ est l'orientation d'un moment magnétique (M_s est l'aimantation à saturation). Comme le nombre de ces points est conservé, Nous avons l'équation de continuité :

$$\frac{\partial W}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{J} = 0 \quad (\text{I.2.8})$$

Pour prendre en compte la force thermique aléatoire qui disperse les points représentatifs autour des points d'orientations plus stables Brown a introduit un terme de diffusion de la forme $-k'\nabla_r W$ ($k' > 0$ étant une constante à une température donnée) dans l'équation de la densité de courant \mathbf{J} .

$$\mathbf{J} = W \frac{d\mathbf{r}}{dt} - k' \nabla W \quad (\text{I.2.9})$$

L'évolution temporelle de \mathbf{r} ($=\mathbf{M}/M_s$) est donnée par l'équation dynamique générale de Landau Lifshitz Gilbert (I.1.30).

Si on considère un potentiel U de la forme $-\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{eff}}$, donc $\mathbf{H}_{\text{eff}} = -\frac{1}{\mu_0 M_s} \frac{\partial U}{\partial \mathbf{r}}$ et l'équation

LLG devient :

$$\frac{d\mathbf{r}}{dt} = \frac{g'}{\mu_0} \mathbf{r} \times \left(-\frac{\partial U}{\partial \mathbf{r}} \right) - \frac{h'}{\mu_0} \mathbf{r} \times \left(\mathbf{r} \times \left(-\frac{\partial U}{\partial \mathbf{r}} \right) \right) \quad (\text{I.2.10})$$

Si on substitue $d\mathbf{r}/dt$ dans l'équation du courant \mathbf{J} , l'équation ((I.2.9) devient :

$$\mathbf{J}(\mathbf{r},t) = \left(\frac{g'}{\mu_0} \mathbf{r} \times \left(-\frac{\partial U}{\partial \mathbf{r}} \right) - \frac{h'}{\mu_0} \mathbf{r} \times \left(\mathbf{r} \times \left(-\frac{\partial U}{\partial \mathbf{r}} \right) \right) \right) W - k' \frac{\partial W}{\partial \mathbf{r}} \quad (\text{I.2.11})$$

On obtient ainsi les deux composantes J_θ et J_φ en coordonnées sphériques (θ, φ) :

$$\begin{aligned} J_\theta &= - \left[\frac{1}{\mu_0} \left(h' \frac{\partial U}{\partial \theta} - \frac{g'}{\sin \theta} \frac{\partial U}{\partial \varphi} \right) W + k' \frac{\partial W}{\partial \theta} \right] \\ J_\varphi &= - \left[\frac{1}{\mu_0} \left(g' \frac{\partial U}{\partial \theta} + \frac{h'}{\sin \theta} \frac{\partial U}{\partial \varphi} \right) W + \frac{k'}{\sin \theta} \frac{\partial W}{\partial \varphi} \right] \end{aligned} \quad (\text{I.2.12})$$

En utilisant ces deux composantes dans l'équation de continuité (I.2.8) on obtient une équation dont la forme générale est celle de Fokker Planck :

$$\begin{aligned} \frac{\partial W}{\partial t} = \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left[\sin \theta \left[\frac{1}{\mu_0} \left(h' \frac{\partial U}{\partial \theta} - \frac{g'}{\sin \theta} \frac{\partial U}{\partial \varphi} \right) W + k' \frac{\partial W}{\partial \theta} \right] \right] + \\ \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} \left[\frac{1}{\mu_0} \left(g' \frac{\partial U}{\partial \theta} + \frac{h'}{\sin \theta} \frac{\partial U}{\partial \varphi} \right) W + \frac{k'}{\sin \theta} \frac{\partial W}{\partial \varphi} \right] \end{aligned} \quad (I.2.13)$$

La constante k' est évaluée à l'équilibre thermique en considérant que la distribution d'orientations $W(\theta, \varphi, t)$ est stationnaire ($\partial W / \partial t = 0$) et que la distribution initiale (à $t = 0$) est de type Maxwell- Boltzmann :

$$W_0(\theta, \varphi) = A \exp(-\beta U(\theta, \varphi)), \text{ où } \beta = V / k_B T \text{ (A est une constante)} \quad (I.2.14)$$

En imposant ces conditions dans l'équation (I.2.13) la constante k' vaut h' / β . La solution générale de l'équation de Fokker Planck est de la forme :

$$W = W_0 + \sum_{n=1}^{\infty} A_n F_n(\theta, \varphi) \exp(-p_n t) \quad (I.2.15)$$

$F_n(\theta, \varphi)$ et p_n ($p_1 < p_2 < \dots < p_n < \dots$) sont respectivement, les vecteurs et valeurs propres de l'équation (I.2.13), A_n sont des coefficients qui dépendent des conditions initiales.

Dans le cas d'une anisotropie uniaxiale, Brown a dérivé une formule approximative du temps de relaxation pour les différentes valeurs de la barrière d'énergie $\Delta U = E$ ($E \ll k_B T, \gg k_B T, \sim k_B T$) en supposant que le potentiel U ainsi que la densité de probabilité W sont indépendants de l'angle φ (symétrie axiale). Pour chaque cas, il a utilisé des méthodes mathématiques basées soit sur la théorie de la perturbation (dans le cas $E \ll k_B T, \sim k_B T$), soit sur la méthode de Kramer (dans le cas $E \gg k_B T$).

1.2.2.2. Approximation de la barrière haute : Méthode de Kramer

Afin de calculer le temps de relaxation dans cette approximation, nous considérons le cas d'une particule ferromagnétique mono-domaine. On suppose que cette particule a une anisotropie magnétique uniaxiale et un moment magnétique μ ($=M/V$) dirigé avec un angle θ selon l'axe de facile aimantation (oZ). En présence d'un champ magnétique appliqué selon l'axe (oZ), le potentiel par unité de volume V est de la forme [25]:

$$U(\theta) = K \sin^2(\theta) - \mu_0 M_s H \cos(\theta) \quad (I.2.16)$$

$K > 0$ est la constante d'anisotropie, μ_0 est la perméabilité magnétique, M_s est l'aimantation à saturation et H est le champ appliqué. On définit un champ critique par $H_c = 2K / \mu_0 M_s$ Si $|H|$

$< H_c$, le potentiel $U(\theta)$ de la particule possède deux minima $U_1 = -\mu_0 M_s H$ pour $\theta = 0$ et $U_2 = \mu_0 M_s H$ pour $\theta = \pi$ et un maximum U_m pour $\cos(\theta_m) = -H/H_c$ (figure 1.2.1).

Dans ce cas U et W dépendent seulement de θ et les deux composantes du courant \mathbf{J} deviennent :

$$J_\theta = -\left[\frac{1}{\mu_0} \left(h' \frac{\partial U}{\partial \theta} \right) W + k' \frac{\partial W}{\partial \theta} \right], \quad J_\phi = -\frac{1}{\mu_0} \left(g' \frac{\partial U}{\partial \phi} \right) W \quad (I.2.17)$$

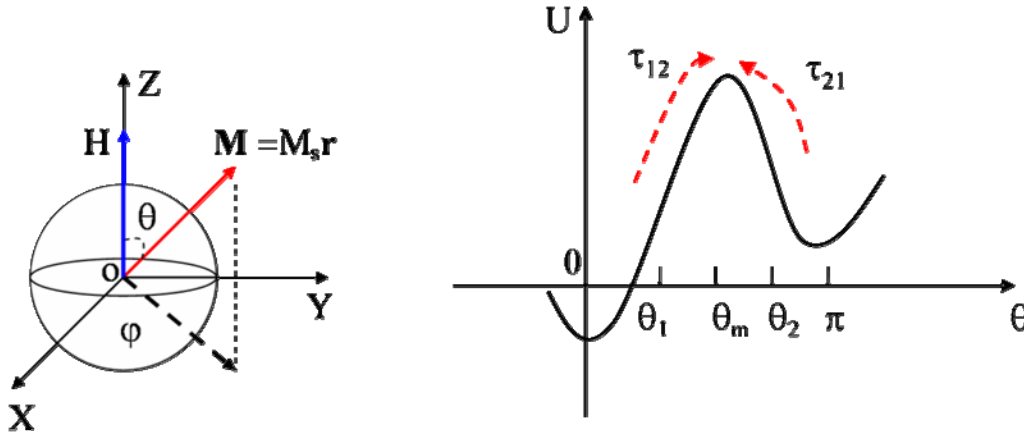


Figure I.2.1. à gauche : un schéma de la particule magnétique dans le système d'axes OXYZ. θ et ϕ sont les coordonnées sphériques du vecteur d'aimantation $\mathbf{M} = M_s \mathbf{r}$. A droite : la variation du potentiel de la particule donné par l'équation (I.2.16) en fonction de l'angle θ .

Le seul effet des propriétés gyromagnétiques dans le système est la contribution J_ϕ , généralement ce terme est négligé dans les calculs de Brown.

L'approximation de la barrière haute correspond à :

$$\beta(U_m - U_i) \gg 1 \quad (i = 1, 2); \quad \beta = V/k_B T \quad (I.2.18)$$

Selon la méthode de Kramer [15], l'équilibre thermique est atteint dans les deux régions $0 \leq \theta \leq \theta_1$ et $\theta_2 \leq \theta \leq \pi$ ($\theta_1 \leq \theta_m \leq \theta_2$) séparément (voir figure 1.2.1) et il n'y a qu'une faible probabilité pour trouver les orientations de moments magnétiques en dehors des axes faciles (près du maximum de potentiel).

Le choix de θ_i ($i = 1, 2$) est dicté par :

$$\exp(-\beta U_m) \ll \exp(-\beta U(\theta_i)) \ll \exp(-\beta U_i) \quad (I.2.19)$$

Une situation qui satisfait l'approximation de la barrière haute. $\int W d\Omega$ correspond au nombre total n de particules où $d\Omega (= \sin\theta d\theta d\phi)$ est un élément d'angle solide.

Dans la région (0, θ_1):

La densité de probabilité est $W(\theta) = W_1 \exp(-\beta(U(\theta) - U_1))$; $W_1 = W(0)$ (I.2.20)

Le nombre de particule n_1 dans cette région est :

$$n_1 = \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\theta_1} W(\theta) \sin \theta d\theta = 2\pi W_1 \exp(\beta U_1) I_1 \quad (I.2.21)$$

avec $I_1 = \int_0^{\theta_1} \sin \theta \exp(-\beta U(\theta)) d\theta$

Dans la région (θ_2, π):

La densité de probabilité est $W(\theta) = W_2 \exp(-\beta(U(\theta) - U_2))$; $W_2 = W(\pi)$ (I.2.22)

Le nombre de particule n_2 dans cette région est :

$$n_2 = \int_0^{2\pi} d\varphi \int_{\theta_2}^{\pi} W(\theta) \sin \theta d\theta = 2\pi W_2 \exp(\beta U_2) I_2 \quad (I.2.23)$$

avec $I_2 = \int_{\theta_2}^{\pi} \sin \theta \exp(-\beta U(\theta)) d\theta$

Selon les conditions (I.2.19), les facteurs des exponentiels dans les deux intégrales I_1 et I_2 décroissent rapidement avec la distance par rapport aux minima de U à 0 et π . Avec ces conditions, on peut remplacer dans les deux intégrales I_1 et I_2 le potentiel $U(\theta)$ par des séries de Taylor autour des angles 0 et π . Au second ordre par rapport à θ , on a :

$$I_1 = \int_{-\infty}^{+\infty} \theta \exp(-\beta U_1 - \beta U''(0)/2 \theta^2) d\theta = \exp(-\beta U_1) / \beta U''(0) \quad (I.2.24)$$

$$I_2 = \int_{-\infty}^{+\infty} \theta \exp(-\beta U_2 - \beta U''(\pi)/2 \theta^2) d\theta = \exp(-\beta U_2) / \beta U''(\pi)$$

Dans la région (θ_1, θ_2):

La probabilité $W(\theta)$ est très faible mais suffisante pour maintenir un petit courant $\mathbf{J}(\theta)$ de points représentatifs des états les plus peuplés vers les états les moins peuplés. Brown a considéré que ce courant peut être approximé par une densité de courant de divergence petite.

Donc, le courant total dans le plan (x, z) est : $I = J_\theta \sin \theta \int_0^{2\pi} d\varphi = J_\theta 2\pi \sin \theta$ (J_θ est indépendant

de θ). En introduisant la valeur J_θ et la valeur de $k' (= h' / \beta)$ dans l'équation de Fokker Planck (I.2.13):

$$\frac{\partial W}{\partial \theta} + \frac{1}{\beta} \frac{\partial U}{\partial \theta} W = -\frac{I \beta \mu_0}{2\pi \sin \theta} \quad (I.2.25)$$

En multipliant cette équation par $\exp(\beta U(\theta))$ et en intégrant de θ_1 à θ_2 :

$$W_2 \exp(\beta U(\theta_2)) - W_1 \exp(\beta U(\theta_1)) = -\frac{I\beta\mu_0}{2\pi\lambda} I_m \quad (I.2.26)$$

avec $I_m = \int_{\theta_2}^{\theta_1} \exp(\beta U(\theta)) d\theta / \sin \theta$

Dans l'intégrale I_m , nous développons $U(\theta)$ en série de Taylor au 2^{ième} ordre en θ_m ; nous remplaçons $\sin\theta$ par $\sin\theta_m$ et intégrons de $-\infty$ à $+\infty$:

$$I_m = \frac{\exp(\beta U_m)}{\sin \theta_m} \sqrt{\frac{2\pi}{-\beta U''(\theta_m)}} \quad (I.2.27)$$

Nous utilisons les équations (I.2.20), (I.2.21), (I.2.22) et (I.2.23) pour reformuler l'équation (I.2.25):

$$\frac{1}{2\pi} \left(\frac{n_2}{I_2} - \frac{n_1}{I_1} \right) = -\frac{I\beta\mu_0 I_m}{2\pi\lambda} \Rightarrow I = -\frac{\lambda}{\beta\mu_0 I_m} \left(\frac{n_2}{I_2} - \frac{n_1}{I_1} \right);$$
 Cette équation relie les deux régions

(0, θ_1) et (θ_2 , π), mais pratiquement tous les points représentatifs de ces régions sont concentrés autour de 0 et π , donc :

$$I = -\frac{dn_1}{dt} = \frac{dn_2}{dt} = -\frac{\lambda}{\beta\mu_0 I_m} \left(\frac{n_2}{I_2} - \frac{n_1}{I_1} \right) \quad (I.2.28)$$

Cette équation a la même forme que (I.2.2) dans l'approximation des orientations discrètes.

On obtient :

$$I = v_{21}n_2 - v_{12}n_1 \text{ avec } v_{ij} = \frac{\lambda}{\beta\mu_0 I_m I_i} \text{ (i = 1, j = 2 ou i = 2, j = 1)}$$

En remplaçant les valeurs de I_1 , I_2 et I_m à partir des équations (I.2.24) et (I.2.27), nous obtenons :

$$v_{ij} = c_{ij} \exp(-\beta(U_m - U_i))$$

$$c_{12} = \frac{\lambda U'''(0) \sin \theta_m}{\mu_0} \sqrt{-\frac{\beta U''(\theta_m)}{2\pi}}, \quad c_{21} = \frac{\lambda U'''(\pi) \sin \theta_m}{\mu_0} \sqrt{-\frac{\beta U''(\theta_m)}{2\pi}} \quad (I.2.29)$$

Le temps de relaxation est donné par :

$$\frac{1}{\tau} = (v_{12} + v_{21}) \quad (I.2.30)$$

Le calcul des valeurs de $U''(0)$, $U''(\pi)$ et $U''(\theta_m)$ à partir de la forme de potentiel $U(\theta)$ de l'équation (I.2.16) et la substitution de ces quantités dans l'équation (I.2.30), avec $h = H/H_c$,

nous donne l'expression finale pour le temps de relaxation :

$$\frac{1}{\tau} = 2h' M_s H_c \sqrt{\frac{\mu_0 \beta M_s H_c}{2\pi}} (1-h^2) \left[(1+h) \exp(-\beta K (1-h)^2) + (1-h) \exp(\beta K (1+h)^2) \right] \quad (I.2.31)$$

$$h' = \frac{\gamma_0^2 \eta}{1 + (\gamma_0^2 \eta^2 M_s^2)}, \text{ (terme de dissipation dans l'équation générale LLG), } \beta = V / k_B T$$

Dans le cas plus simple où le champ magnétique est nul ($H = 0$), la formule (I.2.31) devient :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} \exp\left(-\frac{KV}{k_B T}\right), \text{ avec } \frac{1}{\tau_0} = \frac{2M_s \eta}{(M_s \eta)^2 + \gamma_0^{-2}} \sqrt{\frac{\mu_0 V M_s H_c^3}{2\pi k_B T}} \quad (I.2.32)$$

Ainsi, en utilisant la méthode de Kramer, Brown a dérivé la même forme pour le temps de relaxation calculé par Néel, la seule différence étant l'expression du préfacteur τ_0 . La validité de cette loi a été démontrée de manière non ambiguë dans une expérience de renversement d'aimantation effectuée sur une nanoparticule individuelle de cobalt [26].

I.2.2.3. Discussion

En utilisant la théorie du processus stochastique de Langevin et les équations de Fokker Planck, Brown a dérivé une forme générale pour le temps de relaxation d'aimantation de particules monodomains dans les différentes approximations des barrières d'énergie. Son approche constitue une formulation générale du problème, il permet de calculer le temps de relaxation pour n'importe quelle forme d'énergie d'anisotropie. Dans le cas d'une anisotropie cubique, l'équation différentielle de Fokker Planck (FP) a été résolu numériquement par Aharoni [27, 28]. Récemment, ce modèle a été généralisé par Coeffey et al. pour calculer le temps de relaxation en présence d'un champ magnétique appliqué à une direction quelconque par rapport aux axes de faciles aimantation [29, 30].

Par ailleurs, le modèle de Brown ne traite pas l'effet des interactions dipolaires responsables de l'augmentation de la barrière d'énergie dans des nanoparticules de cobalt [31] et de nickel [32] et des déviations du modèle ont été observées. Dormann et al [33] ont testé plusieurs modèles pour interpréter les données expérimentales mesurées par la spectroscopie Mössbauer sur des nanoparticules de fer dans une large gamme de fréquences et de températures. Ils ont suggéré un modèle alternatif en introduisant l'effet des interactions magnétiques dans l'énergie de la barrière.

1.3. Dynamique d'aimantation ultrarapide

Il est bien connu qu'un matériau ferromagnétique devient paramagnétique au-dessus d'une certaine température appelée température de Curie (T_c). L'aimantation du matériau diminue lorsque la température augmente. Historiquement plusieurs théories ont permis de comprendre ce phénomène. Brièvement : le modèle de base fût celui de Weiss-Langevin reposant à la fois sur le champ local proportionnel à l'aimantation exercé sur chaque moment et sur la statistique de Boltzmann [34]. Le modèle de Heisenberg apporta un fondement quantique à la théorie du champ local en introduisant la notion d'interaction d'échange [35]. Ces théories étaient cependant moins bien adaptées au ferromagnétisme des métaux de transition dont la modélisation a fait couler beaucoup d'encre. Le modèle de Stoner reposant sur le magnétisme itinérant et des corrélations entre électrons modélisées par un champ moyen apporta quelques progrès sans toutefois pouvoir expliquer quantitativement les paramètres expérimentaux comme la température de Curie ou les valeurs de la susceptibilité magnétique en fonction de la température [36]. Clairement un modèle d'électrons complètement délocalisés n'était pas approprié et un retour à une notion plus localisée s'imposa. Le modèle d'Anderson basé sur des fluctuations locales des spins itinérants réconcilia partiellement les débats notamment pour expliquer le caractère Curie-Weiss de la transition ferro-paramagnétique même pour les métaux de transition [37]. C'est la théorie de Moriya du champ auto-consistant décrivant les fluctuations de spins qui apporta un éclairage décisif sur le comportement des métaux faiblement ferromagnétiques [38, 39]. L'idée de base repose sur l'interaction entre des modes de spins décrits dans l'espace réciproque (donc localisés) et une description des interactions entre spins plus sophistiquée que la « simple » description Hartree-Fock. Dans toutes ces approches, la température est naturellement celle des électrons, des spins et du réseau cristallin qui sont en équilibre thermodynamique. Nous appellerons dans la suite cette température, la température d'équilibre $T_{\text{éq}}$.

Par analogie avec la transition ferro-paramagnétique en fonction de $T_{\text{éq}}$, on peut utiliser des impulsions laser femtosecondes intenses (d'une durée de quelques femtosecondes) pour exciter un matériau ferromagnétique, et induire une modification quasi-instantanée de la température électronique : c'est le principe du femto-magnétisme. Expérimentalement, la dynamique ultrarapide d'aimantation est étudiée grâce à la technique pompe sonde résolue en temps. Dans ces expériences, des impulsions laser femtosecondes de forte intensité (pompe) sont utilisées pour mettre le système (électrons, spins) hors équilibre, et des impulsions de faible intensité (sonde) permettent de suivre l'évolution temporelle des propriétés

magnétiques et optiques du matériau étudié. Afin de pouvoir interpréter les résultats expérimentaux dans les troisième et quatrième chapitres, cette partie a pour objectif de donner une description microscopique des différents mécanismes physiques présents lors d'une excitation optique et responsables de la dynamique électronique et de la désaimantation ultrarapide. Nous y détaillons également un modèle macroscopique développé par J.-Y. Bigot, basé sur le modèle phénoménologique à deux bains et les équations de Bloch, pour modéliser la relaxation du module et l'orientation de l'aimantation.

1.3.1. Dynamique d'électrons induit par laser

Différents processus sont impliqués lors de l'absorption quasi instantanée de l'énergie du laser ($h\nu$) dans la profondeur du métal (~ 20 nm).

- Initialement, le gaz électronique est excité avec une grande énergie cinétique au dessus de niveau de Fermi (≥ 1 eV) en induisant une polarisation cohérente collective de la population électronique. Cette polarisation électronique résultante a un comportement oscillatoire qui préserve la mémoire optique de l'impulsion laser. Subséquemment (dans une échelle de temps inférieur à 10 fs), le mouvement collectif des électrons relaxe via l'interaction de Coulomb entre électrons. Ces processus sont essentiellement des diffusions élastiques c'est-à-dire que les électrons gardent leur énergie cinétique mais perdent leur cohérence de phase. A ce stade, les paires électrons-trous (quasi-particules) ne constituent pas une distribution de Fermi-Dirac thermalisée. La distribution résultante athermale est représentée dans la figure I.3.1a. Elle a une forme rectangulaire qui est déterminée par l'énergie de l'impulsion laser et la densité d'énergie absorbée.

- Durant les quelques dizaines de femtosecondes qui suivent, une redistribution énergétique des quasiparticules se produit via des collisions électron-électron inélastiques. Ce processus est connu sous le nom de thermalisation électronique car les états électroniques occupés tendent vers une distribution de Fermi-Dirac chaude après un temps caractéristique de l'ordre d'une centaine de femtosecondes (figure I.3.1b). Cette étape est dominée par le mécanisme d'interaction Coulombienne écrantée entre les quasi-particules (électron-électron, trous-trous et électron-trous). La température électronique T_e peut atteindre 1000 K selon la densité d'excitation de l'impulsion laser.

- Une fois la thermalisation des électrons achevée, le transfert d'énergie du bain d'électrons vers le réseau cristallin devient le mécanisme prépondérant. Les électrons chauds cèdent leur énergie au réseau via l'interaction électron-phonon, conduisant à une diminution de la température électronique et à une augmentation de la température du réseau T_1 (figure I.3.1c).

En quelques picosecondes (temps typique pour les métaux), un équilibre thermodynamique entre les deux réservoirs s'établit et la température électronique T_e est égale à celle du réseau T_l ($T_e = T_l$). Ce processus est bien décrit par le modèle phénoménologique à deux bains.

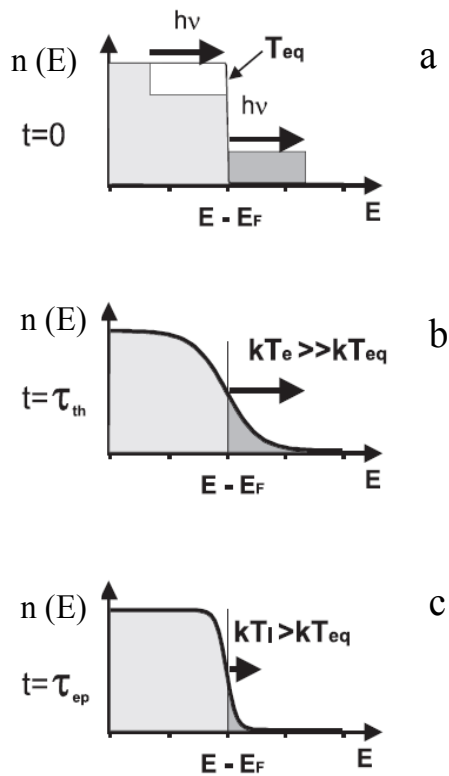


Figure I.3.1 : Dynamique d'électrons ultrarapide induite par une impulsion laser femtoseconde :

a) à $t = 0$, l'impulsion de la pompe excite le gaz électronique qui induit une distribution athermale déterminée par la densité d'énergie absorbée et l'énergie des photons $h\nu$. Avant l'excitation le système est caractérisé par une température d'équilibre T_{eq} .

b) Les électrons fortement excités se thermalisent dans un temps typique τ_{th} de l'ordre de 100 fs. Le mécanisme dominant est l'interaction électron-électron qui contribue à une distribution de Fermi Dirac chaude caractérisée par une température T_e .

c) L'interaction électron-phonon contribue au transfert d'énergie des électrons vers le réseau jusqu'à ce que leurs températures soient égales $T_e = T_l$. Ce processus se produit dans la gamme d'une picoseconde.

- L'étape finale est la diffusion de la chaleur du système vers le milieu environnant, le temps caractéristique variant de quelques centaines de picosecondes à quelques nanosecondes selon la conductivité thermique du métal et du substrat.

En plus de ces processus induits après l'excitation optique d'autres mécanismes de relaxation peuvent être présents comme le transport balistique des électrons dépendant de l'épaisseur du matériau [40], ou encore les effets de diffusion de surface surtout dans le cas des nanoparticules [41, 42, 43] (chapitre IV).

1.3.2. Modèle phénoménologique à deux bains

Proposé pour la première fois par Anisimov et al. [44] en 1974, le modèle à deux températures traite le gaz d'électrons et le bain de phonons comme deux systèmes distincts. Il suppose que chacun de ces deux systèmes est en équilibre thermique et que la température de chaque système obéit à la loi de Fourier. Les électrons sont caractérisés par une température

$T_e(t)$ et le réseau par une température $T_l(t)$. Le transfert d'énergie est déterminé par un système d'équations différentielles couplées :

$$\begin{aligned} C_e(T_e) \frac{dT_e}{dt} &= G_{el}(T_l(t) - T_e(t)) + P(t) - \vec{\nabla} \kappa_e \vec{\nabla} T_e(t, \mathbf{r}) \\ C_l(T_l) \frac{dT_l}{dt} &= G_{el}(T_e(t) - T_l(t)) - \vec{\nabla} \kappa_l \vec{\nabla} T_l(t, \mathbf{r}) \end{aligned} \quad (\text{I.3.1})$$

où C_e est la chaleur spécifique électronique, C_l est celle du réseau et G_{el} est une constante de couplage entre les électrons et le réseau (constante d'interaction électron-phonon). κ_e , κ_l sont les conductivités thermiques des électrons et du réseau respectivement. $P(t)$ est la densité d'énergie des impulsions laser absorbée par le métal, qui est donnée par la forme : $P(t) = I_0 \exp(-t / \Delta t)^2$; I_0 est l'intensité incidente, Δt est la durée de l'impulsion laser.

Pour les électrons libres dans un métal, la chaleur spécifique électronique varie linéairement en fonction de la température électronique : $C_e = \gamma_e T_e$; γ_e est une constante. Cela conduit à une augmentation du temps de relaxation électron-réseau lorsque la température augmente. Dans les métaux cristallins, la chaleur spécifique du réseau est calculée en prenant en compte les modes de vibration des ions (phonons). L'évaluation du taux de diffusion électron-phonon est réalisée par le modèle de Debye et le temps d'interactions électron-phonon est donné par la relation [45] :

$$\tau_{e-p}^{-1} = 2\pi\lambda k_B T / \hbar ; \quad (\text{I.3.2})$$

λ étant un facteur d'augmentation de la masse électron-phonon (electron phonon mass enhancement : une interaction électron-phonon forte dans un métal augmente la densité des états électroniques à proximité du niveau de Fermi). λ donne la force du couplage entre les électrons et le réservoir des phonons, qui contribue à la renormalisation de la masse des électrons comme $m_{eff} = m(1 + \lambda)$, m est la masse des électrons sans interaction.

L'équation I.3.2 est valable seulement pour des températures $T > \Theta_D/3$ où Θ_D est la température de Debye du système. La linéarité entre le taux de diffusion électron-phonon et la température est déterminée par le nombre des phonons excités thermalisés qui augmente linéairement avec la température.

Aux très basses températures, la loi de Debye donne une dépendance en T^3 de la chaleur spécifique. Pour des températures supérieures à la température de Debye Θ_D , la chaleur spécifique du réseau est constante et donnée par la loi classique de Dulong et Petit. Elle s'écrit : $C_l = 3Nk_B$, N est le nombre d'atomes par unité de volume.

Enfin, le succès du modèle à deux bains vient de l'interprétation directe de la dynamique observée expérimentalement dans laquelle les quantités mesurées dans les expériences résolues en temps (transmission différentielle $\Delta T(t)/T$ et réflexion différentielle $\Delta R(t)/R$) sont reliées directement à la variation de la température électronique $\Delta T_e(t)$ [46]. Pour prendre en compte la contribution des populations électroniques non thermalisées (athermales) à la dynamique dans le régime hors-équilibre, le modèle à deux températures a été généralisé en utilisant des équations de transport de Boltzmann [47, 48] et la dynamique des états excités est séparée en deux contributions athermale et thermalisée.

1.3.3. Mécanismes microscopiques responsables de la désaimantation ultrarapide?

Comme nous l'avons discuté précédemment, l'absorption d'une impulsion laser dans un métal crée une distribution électronique fortement excitée. L'interaction Coulombienne entre quasiparticules (électrons et trous) reconstituent une distribution de Fermi-Dirac (processus de thermalisation) et l'interaction électron-phonon contribue à équilibrer la température des électrons et celle du réseau (équilibre thermique). Dans le cas des matériaux magnétiques, cette distribution hors-équilibre induite par le laser s'accompagne d'une réduction du moment magnétique macroscopique (désaimantation) [49]. Précisons que le mécanisme de désaimantation n'est pas encore un problème complètement élucidé. Cependant, en considérant le modèle à deux températures on peut envisager différents scénarios :

- Premièrement, les électrons excités peuvent se coupler directement avec les spins via les mécanismes de diffusions élastiques spin-orbite induisant des renversement de spins et par conséquent une réduction du module de l'aimantation.
- Deuxièmement, les interactions entre le réseau et les spins peuvent changer l'aimantation via le couplage phonon-magnon.

La première explication a un caractère purement électronique et donc un temps caractéristique de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes (τ_{e-e}), et la deuxième explication prendrait place à une échelle de temps un peu plus longue (>1 picoseconde) pour expliquer la désaimantation ultrarapide observée expérimentalement (100 fs). Le scénario des interactions entre les trois réservoirs (électrons, spins, phonons) est représenté sur la figure I.3.2.

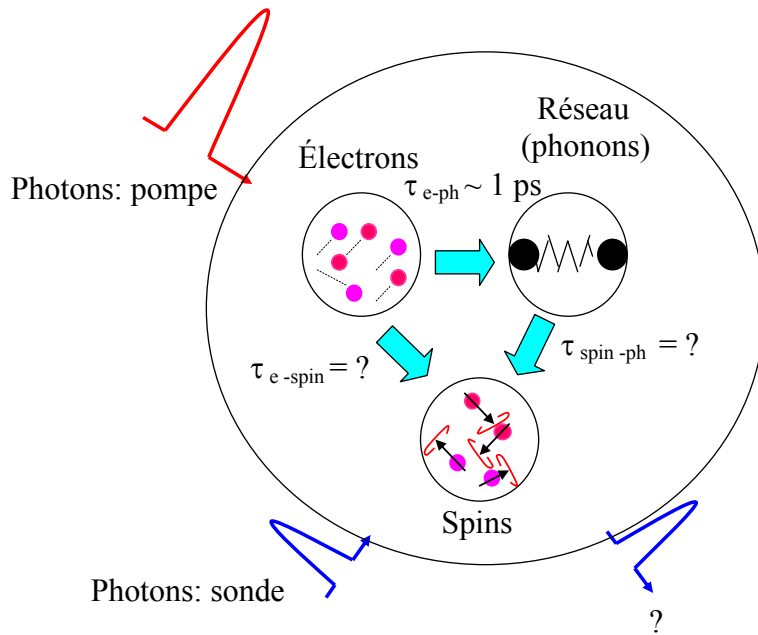


Figure I.3.2 : Illustration des mécanismes possibles responsables de la désaimantation après une excitation optique (pompe): l'impulsion laser transfère son énergie au système d'électrons qui peut se coupler avec le réservoir de spins ou du réseau.

Afin d'expliquer la désaimantation induite après l'absorption d'une impulsion laser femtoseconde dans les métaux, différents modèles microscopiques ont été proposés.

1.3.3.1. Modèle microscopique basé sur l'effet d'interaction spin orbite

Parmi les mécanismes microscopiques qui peuvent induire une désaimantation ultrarapide figure le couplage spin-orbite, l'énergie associée à ce couplage est donnée par la relation :

$$H_{SO} = \lambda \mathbf{L} \cdot \mathbf{S} = \lambda \left[L_z \cdot S_z + \frac{1}{2} (L^+ \cdot S^- + L^- \cdot S^+) \right] \quad (I.3.3)$$

\mathbf{L} et \mathbf{S} sont les opérateurs du moment orbital et du moment de spin respectivement, λ est la force du couplage spin-orbite (SO). Cette interaction spin-orbite a pour effet de mélanger les états de spins up et spins down, introduisant une probabilité finie pour le renversement des spins. Ces événements de « spin flip » sont décrits par des opérateurs de création et d'annihilation du moment de spin (S^\pm). Chaque changement du moment de spin S^- est accompagné par une modification du moment orbital L^+ et vice-versa. L'énergie typique associée à l'interaction SO est de l'ordre de quelques centaines de meV dans le cas des métaux de transition, ce qui correspond à une échelle de temps de quelques dizaines de femtosecondes ($\tau_{S-O} \cong \hbar / E_{S-O}$). Plusieurs travaux réalisés dans le groupe de Strasbourg en collaboration avec W. Hübner montrent bien que le couplage SO peut induire une désaimantation ultrarapide partielle [50, 51, 52, 53]. Dans leurs travaux, les auteurs ont résolu

numériquement un hamiltonien réduit décrivant la réponse temporelle d'une couche bidimensionnelle ferromagnétique de nickel excitée par des impulsions laser femtosecondes. Dans la référence [53], le couplage avec le champ électrique de l'impulsion laser (pompe) a été pris comme un terme additionnel de l'hamiltonien avec le couplage spin-orbite. Avec ces deux termes, ils ont mis en évidence une désaimantation ultrarapide en 20 fs en utilisant des impulsions laser de durée de 10 fs. Cet effet est expliqué par le couplage spin-orbite (SO) qui mixe les états individuels (singulets) et triplets, permettant au champ du laser à induire des transitions qui changent le moment du spin [50]. En augmentant la densité d'excitation de laser, une réduction maximum du module de l'aimantation de l'ordre de 50% a été obtenue. Les auteurs ont attribué cette limite à l'effet de bleaching c'est-à-dire le matériau devient transparent pour des densités élevées d'excitation laser.

1.3.3.2. Modèle de Stoner

Un autre modèle microscopique proposé pour comprendre les mécanismes impliqués dans la désaimantation ultrarapide photo-induite est le modèle de Stoner dépendant du temps. L'excitation optique d'un métal ferromagnétique résulte à une modification de la distribution initiale des électrons dans la bande d et dans les bandes de conduction (figure I.3.3). Dans ce régime de forte perturbation, les électrons acquièrent une grande énergie au dessus du niveau de Fermi permettant de prendre en considération le modèle de Stoner [36]. Dans ce modèle, la désaimantation est obtenue au moyen de processus de diffusion de spin (spin flips) avec renversement de spin pour les électrons de la bande majoritaires (up) qui diffusent soit vers la bande minoritaire (down) soit vers la bande de conduction sp [50]. Ce mécanisme peut modifier la population de spins majoritaires (n_{\uparrow}) et minoritaires (n_{\downarrow}) et diminuer le décalage entre les deux bandes (spin up et spin down) et par conséquent mener à une réduction du module d'aimantation. Avec ce modèle, une limite de $\sim 60\%$ de désaimantation a été obtenu pour des densités proches du seuil d'endommagement dans un film de nickel.

1.3.3.3. La diffusion électron-magnon

Un autre mécanisme de relaxation qui pourrait être responsable de la désaimantation ultrarapide induite dans les matériaux ferromagnétiques fait intervenir les ondes de spins (magnons). Après l'excitation optique, les magnons peuvent acquérir une partie de l'énergie des électrons. Dans ce cas, le transfert d'énergie se fait par le couplage électron-magnon. Comme pour le cas du couplage électron-phonon où les électrons polarisent le réseau (et vice versa), le couplage électron-magnon peut être vu comme un électron ayant une certaine

orientation de spins qui polarise magnétiquement les électrons environnants avec la direction opposée de spin. Du point de vue de la mécanique quantique, les magnons sont excités par les événements de diffusion de spin (spin flips) qui réduisent le moment magnétique selon l'axe de quantification du système. Il n'y a pas grande différence entre ce type de modèle et celui de Stoner sinon qu'au lieu de considérer des états de quasi-particules couplées par l'interaction d'échange, on considère des états étendus de spins (les magnons) qui interagissent avec des spins itinérants.

Le couplage électron-magnon s'est avéré comparable ou même plus grand que le couplage électron-phonon dans le cas du Gd [54]. Donc, il joue un rôle important dans la relaxation d'aimantation dans ces matériaux. Récemment, des mesures de photoémission résolue en temps de la structure électronique de surface dans le système Gd (0001)/W(110) [55] et Fe (110)/W(110) [56], montrent une contribution importante de la diffusion électron-magnon à la relaxation des électrons photo-induits de la surface. Cette contribution est responsable de la relaxation des électrons minoritaires (spin down). Ce dernier point a été soutenu par un travail théorique de Zhukov et al. [57] dans le cas du Ni et Fe. Dans ce travail, une contribution plus grande de taux de diffusion de spins à la relaxation dans la bande minoritaire par rapport à la bande majoritaire a été observée et des durées de vie différentes ont été obtenues. La différence entre les durées de vie pour les deux orientations de spins dans les métaux de transition (3d) a été attribuée à la différence d'états finaux pour le processus de diffusion dans la bande spin up en comparaison avec la bande spin down (voir la figure I.3.3).

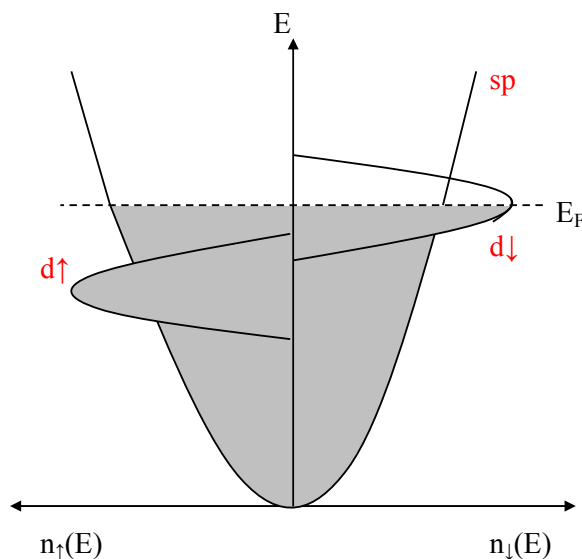


Figure I.3.3 : Schémas de la densité d'état d'un matériau ferromagnétique.

Jusqu'à présent, toutes les investigations théoriques ne permettent pas d'expliquer les résultats expérimentaux de manière satisfaisante. De plus, les modèles proposés ne prennent pas en compte tous les mécanismes d'interactions induits après excitation optique comme : l'effet de la dynamique des électrons non thermalisés, la contribution des interactions d'échanges dépendant du temps et l'effet du champ électromagnétique de la lumière sur le moment de spin. Il y a donc un problème encore ouvert pour des investigations théoriques approfondies.

1.3.4. Modèles macroscopiques pour la relaxation de l'aimantation

Du point de vue macroscopique, la première approche phénoménologique a été introduite par le groupe de Strasbourg [49] pour modéliser la dynamique de relaxation d'aimantation d'un film de Ni excité par des impulsions laser femtosecondes. En généralisant le modèle à deux températures, ils ont ajouté un troisième réservoir à une température T_s associé aux spins et qui est couplé avec les électrons et le réseau avec d'autres paramètres G_{es} et G_{sl} . Ce modèle est connu sous le nom de modèle à trois températures (le réservoir des électrons, des spins et du réseau). Dans un travail expérimental réalisé par Guidoni et al. [58], des mesures magnéto-optiques résolues en temps effectuées sur un film de CoPt_3 avec des impulsions de 20 fs montrent que la dynamique d'aimantation a la même dynamique que celle des électrons après la thermalisation des électrons (~ 60 fs) jusqu'à l'équilibre thermodynamique entre le réseau et les électrons (quelques ps). Par conséquent le modèle à deux températures (bains) est suffisant pour modéliser la dynamique de relaxation de l'aimantation dans le cas de faibles densités d'excitation.

En réalité, la situation est plus compliquée pendant la modélisation des expériences magnéto-optiques résolues en temps en raison de la dépendance temporelle du vecteur et module de l'aimantation $\mathbf{M}(t)$. Il est nécessaire de prendre en compte la relaxation du module de l'aimantation et aussi son orientation dans l'espace. Cette procédure est particulièrement importante lorsque que les configurations expérimentales permettent d'induire un mouvement de précession de l'aimantation \mathbf{M} [59, 60, 61]. Comme nous avons vu dans la première section de ce chapitre, l'orientation de \mathbf{M} est donnée soit par l'équation dynamique de Landau Lifshitz Gilbert (LLG) soit par les équations de Bloch Bloembergen (BB). Cette dernière approche est la plus appropriée pour prendre en considération la variation de module de l'aimantation au cours du temps.

Une description phénoménologique adaptée de la dynamique d'aimantation excitée par des impulsions laser ultracourtes a été proposée par Bigot et al. [62]. Cette description est

basée sur le modèle à deux bains et les équations de Bloch (I.1.19). La dépendance du module de l'aimantation avec la température a été simplifiée par des équations analytiques selon l'expression :

$$|\mathbf{M}(T_e(t))| = M_S \sqrt{1 - (T_e/T_c)^2} \text{ pour } T_e \leq T_c \quad (\text{I.3.4})$$

$$|\mathbf{M}| = 0 \text{ pour } T_e > T_c$$

T_c est la température de Curie, M_S est l'aimantation à saturation à $T_e = 0$

La variation temporelle de la température électronique est obtenue à partir du modèle à deux bains (équation I.3.1), qui est représenté sur la figure I.3.4.a) pour des temps « longs » (< 160 ps) et la figure I.3.4b) pour des temps courts. En prenant en compte les valeurs des différentes paramètres (C_e, C_l, \dots) et les équations (I.3.4), les auteurs ont modélisé la relaxation du module d'aimantation via la dissipation (diffusion) de la chaleur vers l'environnement (Fig. I.3.4.a) en haut).

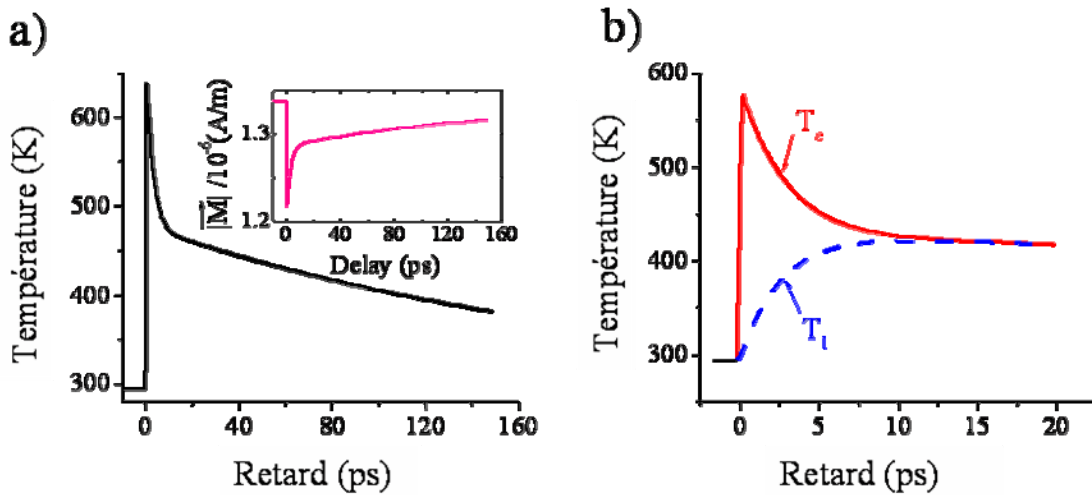


Figure I.3.4 : a) Variation temporelle de la température électronique T_e et du module de l'aimantation (en insert). b) La dynamique de la température électronique T_e et du réseau T_l aux temps courts (≤ 20 ps) [62].

Les composantes spatiales du vecteur d'aimantation $M_i(t)$ ($i = x, y, z$) sont décrits par les équations classiques de Bloch en tenant compte de la variation temporelle du module d'aimantation $|\mathbf{M}(t)|$ (équation (I.3.4)) et du champ effectif $\mathbf{H}_{\text{eff}}(T_e(t), T_l(t), \mathbf{M}(t))$:

$$\frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} = \gamma \mathbf{M}(t) \times \mathbf{H}_{\text{eff}}(T_e(t), T_l(t), \mathbf{M}(t)) - \left(\frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} \right)_{\text{relax}} \quad (\text{I.3.5})$$

où $(d\mathbf{M}/dt)_{relax}$ est un terme de relaxation du vecteur d'aimantation, le champ effectif est défini comme : $H_{eff}(t) = H_0 + H_d(t) + H_a(t)$; $H_d(t) = \tilde{N} \otimes M(t)$

Le premier terme du champ effectif est le champ statique appliqué H_0 , le second terme $H_d(t)$ est le champ démagnétisant associé à la contribution magnétique locale de l'échantillon. Le troisième terme est le champ d'anisotropie magnétocristalline H_a . Dans le cas d'une anisotropie uniaxiale (deuxième section), ce terme est décrit par une seule constante d'anisotropie K_1 . La dépendance en température du facteur $K_1(T)$ est donnée dans la référence [63] par la relation :

$$K_1(T) = K_1(0) \left(\frac{|M(T)|}{M_s} \right)^c \quad (I.3.6)$$

c est une constante. $c = 10$ dans le cas d'une seule monocouche.

La modélisation de la relaxation du vecteur d'aimantation en utilisant les équations (I.3.5) et (I.3.6) a permis de déterminer les paramètres associés à la précession et à l'atténuation de l'aimantation autour du champ effectif et de clarifier le rôle de l'anisotrope magnétique sur la réorientation initiale de l'aimantation [62].

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit brièvement les différents modèles microscopiques et macroscopiques permettant d'étudier la dynamique d'aimantation dans des systèmes ferromagnétiques. Dans un premier temps, nous avons rappelé le formalisme de la matrice densité d'un système à deux niveaux pour étudier la précession et la relaxation d'un spin $\frac{1}{2}$ (équations de Bloch), et l'approche du macro-spin (micromagnétisme) pour donner une équation générale de la dynamique d'aimantation dans des matériaux ferromagnétiques (Equation de Landau Lifshitz Gilbert LLG et l'équation de Bloch Bloembergen BB). Nous avons discuté la validité des deux approches de BB et LLG pour différentes conditions. Ensuite, nous nous sommes intéressés aux modèles dynamiques de Néel et Brown qui permettent de rendre compte de l'activation thermique dans des nanoparticules ferromagnétiques mono-domaines. En particulier, nous avons recalculé le temps de relaxation de l'aimantation dans l'approximation de la barrière haute d'anisotropie en utilisant la méthode de Kramer. Enfin, nous avons détaillé les différents modèles microscopiques proposés pour expliquer la désaimantation ultrarapide induite par des impulsions laser, basée sur l'effet d'interaction spin orbite, les excitations de Stoner ou encore la diffusion électron-magnon. Nous avons utilisé aussi le modèle à deux températures et les équations de Bloch pour expliquer la relaxation du module et la ré-orientation de l'aimantation.

Références bibliographiques du chapitre I

- [1] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Lalœ. « Quantum Mechanics », Wiley, New York (1987).
- [2] Y.R. Shen. « The Principles of Nonlinear Optics ». Wiley-Interscience, John Wiley and Sons, 1st edition (1984).
- [3] F. Bloch. Phys. Rev. **70**, 460 (1946).
- [4] A. Abragam. « Principles of Nuclear Magnetism », Oxford University Press, Oxford, (1961).
- [5] C. Kittel. « Introduction to Solid State Physics », John Wiley and Sons, (1986).
- [6] L. Landau and E. Lifshitz. Phys. Z. Sov. Union **8**, 153 (1935).
- [7] J. Miltat, G. Albuquerque, A. Thiaville. Spin dynamics in confined magnetic structures **I**, Topics Appl. Phys. **83**, 1- 34 (2002) edited by B. Hillebrands and K. Ounadjela (Springer, New York) PP 245-290 (2002).
- [8] T. L. Gilbert. Phys. Rev. **100**, 1243 (1955).
- [9] W. K. Hiebert. « Experimental micromagnetic dynamics: ultrafast magnetization reversal using time resolved scanning Kerr effect microscopy ». PhD thesis, University of Alberta (2001).
- [10] J. F. Cochran, J. M. Rudd, W. B. Muir, G. Trayling, and B. Heinrich. J. Appl. Phys. **70**, 6545 (1991).
- [11] J. C. Mallinson. « On damped gyromagnetic precession ». IEEE Transactions on Magnetism **23**, 2003 (1987).
- [12] N. Bloembergen and S. Wang. Phys. Rev. **93**, 72 (1954).
- [13] M. Bailleul. « Propagation et confinement d'ondes de spin dans les microstructures magnétiques ». Thèse de doctorat de l'école Polytechnique de Paris (2002).
- [14] A. G. Gurevich and G. A. Melkov. « Magnetization Oscillation and Waves », CRC Press (1996).
- [15] W. F. Brown. J. Appl. Phys. **34**, 1319 (1963).
- [16] D. A. Garanin, V. V. Ishtchenko and L. V. Panina. Teor. Mat. Fiz. **82**, 242 (1990).
- [17] D. A. Garanin. Physica A **172**, 470-491 (1990).
- [18] D. A. Garanin. Phys. Rev. B **55**, 1 (1997).
- [19] L. Néel. Ann. Geophys. **5**, 99 (1949).
- [20] W. F. Brown. J. Appl. Phys. **30**, 130S (1959).
- [21] W. F. Brown. Phys. Rev. **130**, 1677 (1963).

- [22] W. F. Brown. « Magnetostatic principles in ferromagnetism » (North-Holland publishing Company, Amsterdam), chap 6 (1962).
- [23] W. F. Brown. IEEE Trans. Mag. **15**, 1196 (1979).
- [24] M. C. Wang and G. E. Uhlenbeck. Rev. Mod. Phys. **17**, 323 (1945).
- [25] A. Aharoni. « Introduction to the Theory of Ferromagnetism » (Oxford University Press, New York), Chap. **5** (2000).
- [26] C. Thirion, W. Wernsdorfer, and D. Mailly. Nature Materials **2**, 524-527 (2003).
- [27] A. Aharoni. Phys. Rev. **135**, A447 (1964).
- [28] A. Aharoni. Phys. Rev. **177**, 793 (1969).
- [29] W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, J. L. Dormann, L. J. Geoghegan, Yu. P. Kalmykov, J. T. Waldron, A. W. Wickstead. Phys. Rev. B **52**, 15 951 (1995).
- [30] W. T. Coffey, D. S. F. Crothers, J. L. Dormann, L. J. Geoghegan and E. C. Kennedy. Phys. Rev. B **58**, 3249 (1998).
- [31] F. Luis, J. Bartolomé, F. Petroff, L. M. Garcia, A. Vaurès, and J. Carrey. J. Appl. Phys. **93**, 7032 (2003).
- [32] G. F. Goya, F. C. Fonseca, R. F. Jardim, R. Muccillo, N. L. V. Carreno, E. Longo, and E. R. Leite. J. Appl. Phys. **93**, 6531 (2003).
- [33] J. L. Dormann, D. Fiorani, E. Tronc. Advances in Chemical Physics, V **8**, Edited by I. Prigogine and Stuart A. Rice. ISBN 0-471, 16285 (1997).
- [34] R. M. White. «Quantum Theory of Magnetism ». 3rd Edition. Springer series in Solid-State Sciences **32** (2007).
- [35] W. Heisenberg. Z. Phys. **49**, 619 (1928).
- [36] Stoner E. Proc. R. Soc. A **165**, 372 (1938).
- [37] P.W. Anderson. Phys. Rev. **86**, 968 (1950).
- [38] T. Moriya. J. Magn. Magn. Meter. **14**, 1 (1979).
- [39] T. Moriya. Ann. Rev. Mater. Sci. **14**, 1 (1984).
- [40] J. Hohlfeld, J. Müller, S.-S.Wellerhof, and E. Matthia. Appl. Phys. B **64**, 387 (1997).
- [41] J.-Y. Bigot, V. Halté, J.-C. Merle and A. Daunois. Chem. Phys. **251**, 181 (2000).
- [42] J.-Y. Bigot, J.-Y. Merle, O. Cregut, and A. Daunois. Phys. Rev. Lett. **75**, 4702 (1995).
- [43] C. Voisin, D. Christofilos, N. Del Fatti, F. Vallée, B. Prével, E. Cottancin, J. Lermé, M. Pellarin, and M. Broyer. Phys. Rev. Lett. **85**, 2200 (2000).
- [44] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T.L. Perelman. Sov. Phys. JETP. **39**, 375 (1974).
- [45] G. Grimvall. « The Electron-Phonon Interaction in Metals ». North-Holland, New-York,

- 1st edition (1981).
- [46] R. Rosei. Phys. Rev. B **10**, 474 (1974).
- [47] R. H. M. Groeneveld, R. Sprik, and A. Lagendijk. Phys. Rev. B **44**, 5079 (1992).
- [48] W. S. Fann, R. Storz, H.W.K. Tom, and J. Bokor. Phys.Rev. Lett. **68**, 2834 (1992).
- [49] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. Lett. **76**, 4250 (1996).
- [50] J.-Y. Bigot. C. R. Acad. Sci., Ser IV: Phys., Astrophys. **2**, 1483 (2001).
- [51] G. Zhang, W. Hübner, E. Beaurepaire, J.-Y. Bigot. « Laser-induced demagnetization: Femtomagnetism, a new frontier? » in Topics of Applied Physics : Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures **I**, edited by B. Hillebrands and K. Ounadjela (Springer, New York) PP 245-290 (2002).
- [52] W. Hübner and G. Zhang. Phys. Rev. B **58**, R5920 (1998).
- [53] G. Zhang and W. Hübner. Phys. Rev. Lett. **85**, 3025 (2000).
- [54] E. Hatta, T. Sasaki, V.M. Svistunov, M.A. Belogolovskii, O.I. Cheryak, A.I. Khachaturov, and A.Y. Gerasimenko. J. Phys. Soc. Japan **70**, 1865 (2001).
- [55] A.V. Fedorov, T. Valla, F. Liu, P.D. Johnson, and M. Weinert. Phys. Rev. B **65**, 212409 (2002).
- [56] J. Schaefer, D. Schrupp, E. Rotenberg, K. Rossnagel, H. Koh, P. Blaha, and R. Claessen. Phys. Rev. Lett. **92**, 097205 (2004).
- [57] V.P. Zhukov, E.V. Chulkov, and P.M. Echenique. Phys. Rev. Lett. **93**, 096401 (2004).
- [58] L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. Lett. **89**, 017401 (2002).
- [59] G. Ju, A. V. Nurmikko, R. F. C. Farrow, R. F. Marks, M. J. Carey, and B. A. Gurney. Phys. Rev. Lett. **82**, 3705 (1999).
- [60] M. van Kampen, C. Jozsa, J.T. Kohlhepp, P. LeClair, L. Lagae, W.J.M. de Jonge, and B. Koopmans. Phys. Rev. Lett. **88**, 227201 (2002).
- [61] M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. Lett. **94**, 237601 (2005).
- [62] J.-Y. Bigot, M. Vomir, L. H. F. Andrade, and E. Beaurepaire. Chem. Phys. **318**, 137 (2005).
- [63] A.H. Morrish. « The Physical Principles of Magnetism », John Wiley and Sons, New York (1965).

Chapitre II : Dispositifs expérimentaux et échantillons

Dans ce chapitre nous introduisons les techniques de mesures pompe sonde qui ont été mises en œuvre pour étudier la dynamique d'aimantation de plots ferromagnétiques individuels et de nanoparticules magnétiques. Dans un premier temps, nous y discutons les différentes conditions nécessaires pour la génération des impulsions laser ultracourtes et l'amplification de ces impulsions. Ensuite nous décrivons la source optique utilisée pour nos mesures, ainsi que les techniques de spectroscopie pompe sonde et les processus physiques qui nous permettent d'accéder à la dynamique électronique et de l'aimantation. Puis, nous détaillons le microscope magnéto-optique confocal femtoseconde qui permet d'obtenir une résolution spatiale de l'ordre de 300 nm et une résolution temporelle de 150 fs. Enfin, nous décrivons les conditions et les techniques de fabrication des échantillons (implantation ionique, lithographie électronique) ainsi que leurs caractéristiques magnétiques statiques.

II.1. Techniques de spectroscopie femtoseconde

II.1.1. Génération d'impulsions laser femtosecondes

Généralement, une source laser femtoseconde est constituée d'un oscillateur produisant un train d'impulsions ultracourtes et d'un étage d'amplification permettant d'augmenter l'énergie des impulsions de plusieurs ordres de grandeurs ($\times 10^6$) pour étudier les processus optiques non-linéaires associés aux différents mécanismes d'interactions dans les matériaux excités. La diversité des techniques de génération et d'amplification d'impulsions femtosecondes est très grande. Quant aux applications qui en découlent, depuis le début des années 1990, une véritable révolution scientifique et technologique a vu le jour puisque les champs de recherche concernés couvrent désormais l'ensemble des sciences exactes de la physique à la chimie, la biologie et la médecine. Le secteur des technologies de l'information et de la communication a également énormément bénéficié des sources laser ultrabrèves. Aussi, nous nous restreindrons modestement au cadre des sources laser utilisées pour notre travail de thèse.

II.1.1.1. L'oscillateur (Exemple: Ti -saphir)

Un oscillateur femtoseconde est un dispositif produisant un train d'impulsions dont chacune a une durée extrêmement courte, de l'ordre de cinq femtosecondes pour les systèmes les plus performants actuels (figure II.1.1). Il s'agit avant tout d'un laser, constitué d'une cavité et d'un milieu amplificateur ayant un rendement efficace sur une large bande de fréquences, un élément pour le blocage des modes laser, et enfin un élément pour compenser la dispersion de vitesse de groupe (GVD) résultant de la propagation de l'impulsion dans les différents milieux dispersifs contenus dans la cavité.

Tout d'abord, nous savons d'après la propriété générale concernant la relation temps-fréquence de la transformée de Fourier (l'équation II.1.1) que pour produire une impulsion de durée Δt il faut disposer d'un spectre dont la largeur spectrale $\Delta\omega$ soit telle que :

$$\Delta\omega \Delta t \geq 1/2 \quad \text{II.1.1}$$

A partir de cette relation temps \leftrightarrow fréquence, nous pouvons directement relier le temps à la fréquence par la relation $\Delta\nu\Delta t \geq K$, K étant une constante qui dépend du profil temporel des impulsions, par exemple $K = 0.441$ pour un profil Gaussien.

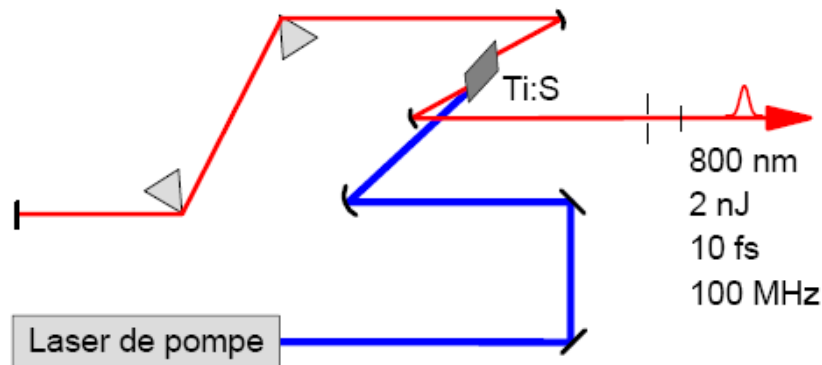


Figure I.1.1 : Schéma d'un oscillateur femtoseconde Titane : Saphir.

Donc, la première condition pour pouvoir obtenir des impulsions ultracourtes (femtosecondes) est de disposer d'un milieu de gain qui présente une très grande largeur spectrale. L'impulsion laser qui satisfait la relation II.1.1 est appelée « impulsion transformée limite ». Le matériau le plus couramment utilisé est le saphir dopé par des ions de titane ($\text{Ti}^{+3} : \text{Al}_2\text{O}_3$), qui présente une bande spectrale de gain (de fluorescence) très large, allant de 600 nm à plus de $1\mu\text{m}$ (figure II.1.2). De plus un barreau de Ti : saphir exhibe d'autres avantages comme une bonne conductivité thermique, une bande d'absorption spectrale adaptée aux sources laser de pompage (allant de 400 nm à 600 nm), et enfin une grande stabilité mécanique et photochimique.

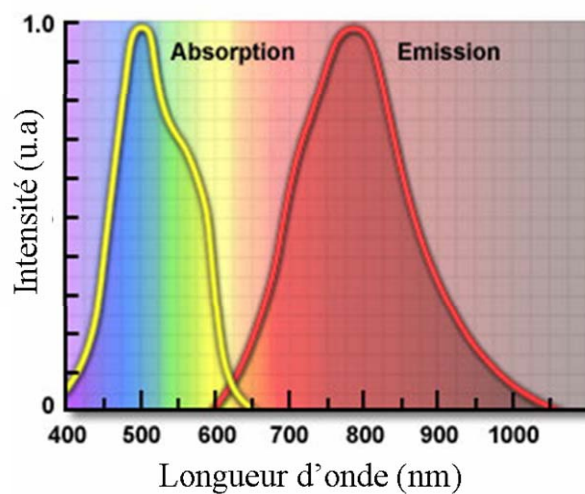


Figure II.1.2 : Spectres d'absorption et d'émission d'un cristal de saphir dopé par des ions de Ti^{+3} .

La deuxième condition nécessaire pour l'obtention d'impulsions laser courtes est le blocage des modes (mode-locking). Avec la grande largeur spectrale, un grand nombre de modes longitudinaux contribuent à cette émission, et le champ électrique total associé est la somme de tous ces modes [1]:

$$E(t) = E_0 \sum_{i=0}^n \cos((\omega_0 + i\Delta\omega)t + \phi_i) \quad \text{II.1.2}$$

où ϕ_i est la phase relative entre chaque mode de la cavité, ω_0 la pulsation centrale et $\Delta\omega$ est l'intervalle spectral libre entre chaque mode longitudinal de la cavité : $\Delta\omega = c/2L$, L étant la longueur de la cavité. Dans le cas d'une cavité laser dont la longueur est de l'ordre de 1.5 m, $\Delta\omega$ vaut 100 MHz. $\Delta\omega$ pouvant atteindre une centaine de THz, on aura jusqu'à un million de modes intervenant dans la production de l'impulsion. Il s'agit de s'assurer que le laser favorise le régime impulsionnel par rapport aux régimes continu ou bien chaotique. Une technique appelée blocage de modes par auto-focalisation des modes consiste à tirer parti de l'effet Kerr optique non-linéaire présent dans le milieu de gain [2]. Ce type de blocage de modes passif est présent principalement dans la cavité titane : saphir utilisée dans nos montages expérimentaux. En effet, lors de la propagation de l'impulsion laser de profil transverse $I(r)$ dans le milieu de gain, l'indice de réfraction du milieu (barreau) va être modifié par la relation :

$$n = n_0 + n_2 I(r) ; \text{ avec } n_2 \sim \chi^{(3)} \quad \text{II.1.3}$$

où n_0 est l'indice linéaire du milieu, n_2 l'indice non linéaire, r est la coordonnée radiale du barreau cylindrique et $\chi^{(3)}$ est le troisième ordre du tenseur non-linéaire de la susceptibilité du cristal (voir la deuxième partie de ce chapitre).

Lors de la propagation d'un faisceau gaussien par exemple, dans le cristal, le centre de faisceau voit un indice plus élevé que le bord du faisceau, et le chemin optique vu par le faisceau lumineux sera plus important au centre du faisceau que sur la périphérie. Cette plus grande épaisseur optique au centre du faisceau se traduit par une lentille effective, appelée lentille Kerr, qui a pour effet de focaliser le faisceau (voir la figure II.1.3). Cet effet d'autofocalisation est à l'origine du verrouillage en phase des modes de la cavité. Il se traduit par une diminution de la section du faisceau. Si le laser fonctionne en mode continu, le phénomène non linéaire d'autofocalisation ne peut avoir lieu, et la section du faisceau est plus grande. Il suffit alors d'introduire dans la cavité une fente, dont l'ouverture est plus petite que le diamètre du faisceau continu mais plus grande que la section du faisceau impulsionnel. Cette fente va être à l'origine de pertes plus importantes pour le régime continu que pour le

régime impulsionnel. L'oscillateur fonctionne ainsi préférentiellement en régime impulsionnel.

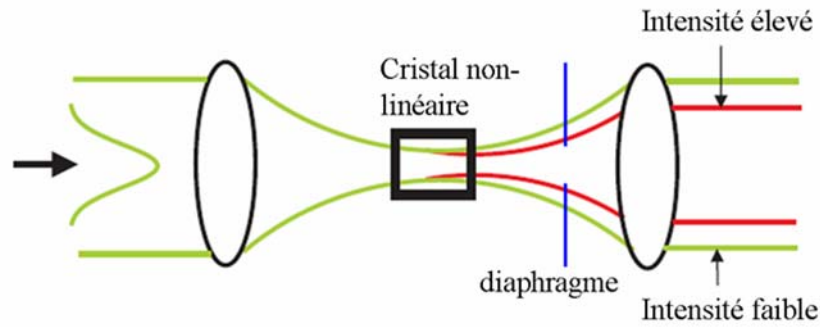


Figure II.1.3 : Illustration de l'effet Kerr optique dans le cas du blocage de modes passif. Le milieu Kerr agit comme une lentille sur le faisceau laser focalisé en produisant une amplification sélective des modes d'une intensité très élevée (en rouge).

La troisième condition pour produire des impulsions de très brève durée est d'introduire dans la cavité un mécanisme de compensation de la dispersion de vitesse de groupe. En effet, lors de la propagation de l'impulsion laser dans un milieu dispersif, des effets linéaires et non linéaires induisent un élargissement temporel de l'impulsion [3]. Dans le cas d'une impulsion gaussienne de durée τ_0 centrée autour de ω_0 en $z = 0$: $\xi(t) = E_0 \exp\left[-\frac{t^2}{2\tau_0^2}\right] \exp[-i\omega_0 t]$,

l'intensité laser après propagation s'écrit :

$$I(z, t) = I_0 \frac{\tau_0}{\tau(z)} \exp\left[-\frac{t^2}{\tau^2(z)}\right] \quad \text{II.1.4}$$

$\tau(z)$, paramètre de la gaussienne au point z s'écrit

$$\tau(z) = \tau_0 \sqrt{1 + k''^2 z^2 / \tau_0^4}, \quad k'' = \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{V_g(\omega)} \right) \quad \text{II.1.5}$$

k'' est la dérivée de l'inverse de la vitesse de groupe par rapport à la fréquence. Donc, l'impulsion va s'étaler dans le temps en suivant la loi :

$$\Delta t_{1/2}(z) = 2\tau(z) \sqrt{\ln 2} \quad \text{II.1.6}$$

Cet effet, appelé dispersion de la vitesse de groupe (DGV) peut être compensé par deux méthodes :

- Une première technique consiste à utiliser un ensemble de deux prismes permettant de séparer les différentes composantes spectrales de l'impulsion et de retarder les plus grandes longueurs d'onde (le rouge par exemple) qui sont précisément les plus rapides lors de la propagation dans le cristal non-linéaire (figure II.1.4.a). En ajustant correctement la distance entre les prismes on peut compenser l'étalement de l'impulsion intervenant lors de la propagation dans le cristal. Au lieu des prismes, on peut utiliser aussi des réseaux optiques pour compenser la vitesse de groupe. Ces réseaux présentent une forte dispersion négative de groupe par rapport aux prismes, conduisant à une diffraction plus forte des grandeurs longueurs d'ondes (rouge) que celles des petites longueurs d'ondes (bleu) (figure II.1.4.b).
- Une seconde technique consiste à utiliser de multiples réflexions sur des miroirs diélectriques ayant été spécialement conçus pour introduire une phase quadratique dont la courbure s'oppose à celle résultant de la propagation dans le saphir.

Notons qu'en principe il est nécessaire d'utiliser 4 prismes (ou 4 réseaux) mais qu'en pratique deux suffisent en repliant le parcours du trajet optique sur lui-même en utilisant un miroir de haute réflectivité après le deuxième réseau (ou le deuxième prisme).

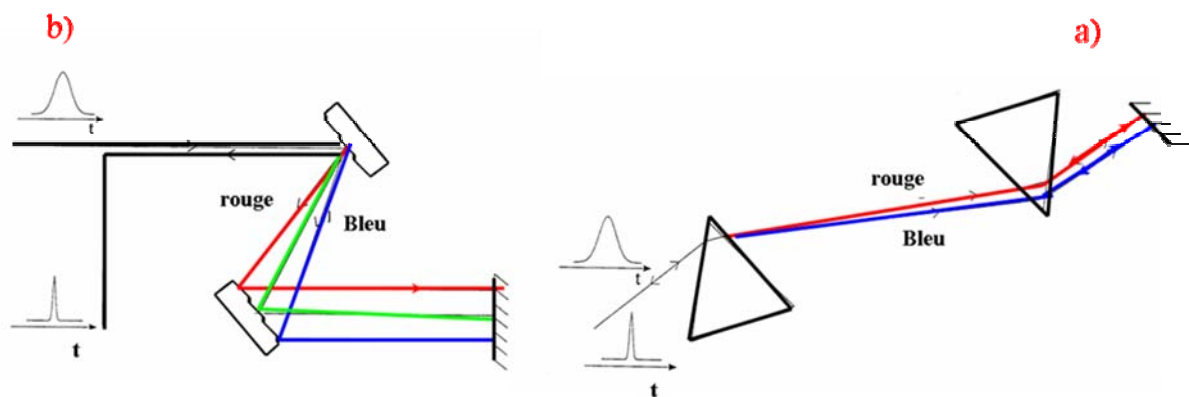


Figure II.1.4 : Compensation négative de la dispersion de vitesse de groupe (GVD) : a) dans le cas d'un système de deux prismes .b) dans le cas d'un système de deux réseaux optiques.

II.1.1.2. Etape de l'amplification

Un oscillateur femtoseconde produit typiquement un faisceau laser dont la puissance moyenne est de l'ordre de 500 mW à 1 Watt. Le taux de répétition de la cavité étant de l'ordre de 50 à 100 MHz, on dispose ainsi d'une énergie de l'ordre de quelques nanoJoules (nJ) par impulsion. Une telle énergie est suffisante pour certaines applications, mais dans de nombreux cas il est nécessaire d'avoir recours à une amplification optique du faisceau pour obtenir des énergies par impulsion plus importantes. Le processus utilisé pour assurer cette amplification est le plus souvent l'émission stimulée dans un matériau à large bande spectrale similaire à celui utilisé dans l'oscillateur, par exemple le saphir dopé au titane. Le spectre de l'impulsion amplifiée est souvent légèrement plus étroit que celui de l'impulsion incidente en raison du phénomène dit de rétrécissement spectral par le gain lié à la légère dépendance spectrale du facteur de gain du milieu amplificateur. Quant à la phase spectrale, on sait qu'elle est conservée puisque l'émission stimulée a pour caractéristique de produire un faisceau amplifié dont la phase est égale à celle du faisceau incident. Cette propriété permet d'amplifier des impulsions courtes dont la durée est approximativement conservée à la dispersion linéaire près. Il existe cependant une limitation technique à l'énergie des impulsions qui peuvent être produites par une application directe de cette méthode : au cours de sa propagation dans le milieu amplificateur, l'impulsion amplifiée atteint en effet des puissances crêtes considérables qui sont suffisantes pour induire des effets non linéaires importants, comme l'effet Kerr optique. On voit alors apparaître des phénomènes comme l'autofocalisation menant finalement à un endommagement du matériau amplificateur soumis à des puissances crêtes trop élevées. Il existe une méthode utilisée pour surmonter ce problème, dite amplification à dérive de fréquence (chirped pulse amplification ou CPA) [4]. Cette technique consiste à étirer l'impulsion temporellement d'un facteur de 2000 à 4000 en appliquant un déphasage spectral linéaire à partir d'un étireur optique (système de réseaux), ensuite à la re-compresser en sortie de l'amplificateur. Le système de compression est le même que le système d'étirement (système de réseaux), la seule différence est l'application de la loi inverse de la phase spectrale permettant de comprimer l'impulsion jusqu'à la durée la plus petite possible (en théorie voisine de la durée originale si les éléments optiques de l'amplificateur le permettent).

En pratique, la durée finale d'impulsion à la sortie de l'amplificateur est légèrement supérieure à la durée initiale compte tenu des effets de dispersion de deuxième ordre introduits par le passage du faisceau dans les différents composants optiques et les effets de

troisième ordre introduits par les réseaux (le compresseur et l'étireur). Dans ce cas un système de compensation de la vitesse de groupe est nécessaire, surtout dans le cas des impulsions ultracourtes (de durée inférieure à 40 fs).

II.1.2. Sources laser de l'expérience

Le système laser utilisé dans nos mesures est constitué de deux cavités lasers commerciales fabriquées par Spectra Physics (Tsunami et Spitfire), un laser continu (Millenia) utilisé pour pomper la cavité du Tsunami, et un autre pulsé (Evolution X) utilisé pour pomper la cavité du Spitfire.

- La première cavité est un oscillateur titane saphir (Tsunami) qui délivre des impulsions d'une durée de 80 fs à un taux de répétition de 82 MHz, pour une puissance moyenne de 600 mW. L'énergie par impulsion est de l'ordre de 7,3 nJ. Le milieu de gain est un barreau de saphir dopé au titane dont les propriétés d'absorption et émission (fluorescence) ont été discutés dans la première section du chapitre et présentées dans la figure II.1.2. Le barreau est pompé par un laser continu Millenia (NdYVO₄) doublé en fréquence (532 nm) avec une puissance moyenne de 5 W. Ce type d'oscillateur permet d'avoir une accordabilité de 100 nm (de 750 à 850 nm). La sélection en longueur d'onde et la largeur du spectre sont contrôlées grâce à une fente ajustable placée entre deux paires de prismes. Les prismes sont utilisés pour compenser la dispersion de vitesse de groupe. La cavité fonctionne en modes bloqués par la lentille Kerr (KLM) dont le déclenchement est réalisé grâce à un cristal acousto-optique. L'oscillateur fonctionne à un taux de répétition de 82 MHz qui correspond à un retard de 12.2 ns entre deux impulsions successives, un temps assez petit pour relaxer la température vers l'environnement de l'ordre de la nanoseconde pour les métaux. Pour éviter le background thermique dans les signaux mesurés (10 fois plus grand que celui du vrai signal) et avoir assez d'intensité pour générer des effets non-linéaire de type génération de continuum et amplification paramétrique, une étape d'amplification à une fréquence laser assez petite est indispensable.

- La deuxième source est un amplificateur régénératif (Spitfire) dont le milieu amplificateur est aussi un barreau de Ti : Saphir. Ce barreau est pompé par un laser pulsé (la durée des impulsions est 200 ns) Nd : YLF (Evolution X) doublé en fréquence (527 nm) fonctionnant un à taux de répétition de 5 KHz, et qui a une puissance moyenne de 11.5 W. La méthode d'amplification est fondée sur la technique d'amplification à dérive de fréquence (CPA) décrite dans la dernière section II.1. En entrant dans la cavité régénérative les impulsions issues de l'oscillateur Tsunami sont étalées temporellement par un réseau optique

(étireur). Après quatre passages sur le réseau, l'impulsion laser est reconstruite spatialement, puis elle est injectée dans le résonateur par réflexion sur le barreau (à l'angle de Brewster). Ensuite, l'impulsion effectue un double passage à travers d'une lame quart d'onde ($\lambda/4$) qui sert à tourner sa polarisation d'un angle de 90° , puis elle passe par une première cellule de Pockels permettant à modifier l'état de polarisation pour compenser l'effet de $\lambda/4$. Lorsque le nombre de passage est trop élevé, le gain n'arrive pas à compenser les pertes en intensité, et la seconde cellule est activée l'impulsion étant extraite hors de la cavité avec un facteur d'amplification de 10^6 . Les cellules de Pockels sont contrôlées par un module de synchronisation permettant d'appliquer la haute tension et de choisir le retard entre leur activation (dans la gamme de quelque nanosecondes). Enfin à la sortie de la cavité, les impulsions sont recompressées par un réseau semblable (compresseur) à celui utilisé pour l'étireur. Les caractéristiques des impulsions à la sortie sont les suivantes : la durée des impulsions est de 120 fs, l'énergie par impulsion est de l'ordre de 0.2 mJ et la cadence du laser est 5 kHz.

II.1.3. Caractérisation de l'impulsion laser

Pour caractériser temporellement les impulsions laser délivrées par l'amplificateur Spitfire, il existe plusieurs techniques qui permettent d'accéder à l'intensité et la phase des impulsions laser. Dans ce paragraphe, nous présenterons deux techniques différentes basées sur le principe d'auto-corrélation qui nous donnent des informations sur la durée de l'impulsion laser.

Autocorrélation interférométrique :

Cette méthode permet de déterminer la durée de l'impulsion et l'effet de dispersion de la vitesse de groupe résiduelle des impulsions introduit par les différents éléments optiques installés sur le trajet de faisceau. Considérons le schéma représenté sur la fig. II.1.5. Comme dans un interféromètre de Michelson, on divise le faisceau incident en deux parties égales. On dispose ainsi de deux faisceaux parallèles, l'un pouvant être retardé par rapport à l'autre à l'aide d'une ligne à retard. Ensuite, les deux faisceaux sont focalisés en géométrie colinéaire sur un cristal non-linéaire de KDP (Phosphate de potassium dihydrogéné) ($300 \mu\text{m}$ d'épaisseur). Ensuite, on place un filtre bleu sur le trajet du faisceau engendré pour éliminer la diffusion résiduelle des deux signaux et on mesure l'intensité à la fréquence 2ω en fonction du retard entre deux impulsions. Comme les deux faisceaux interfèrent, le signal mesuré s'écrit :

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |(E(t) + E(t - \tau))^2| \quad \text{II.1.7}$$

où τ est le retard entre les deux faisceaux.

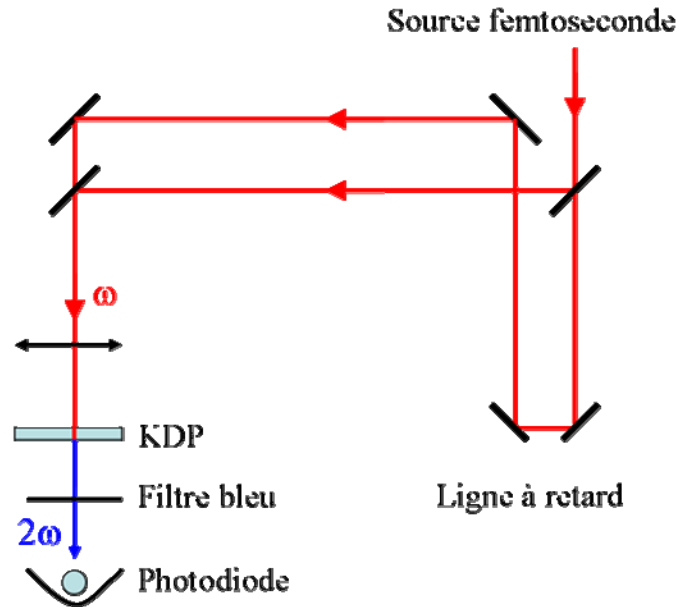


Figure II.1.5 : Schéma de l'autocorrélation interférométrique en géométrie colinéaire.

Dans le cas d'une impulsion gaussienne de la forme : $E(t) = \cos \omega_0 t \exp(-t/\tau_0)^2$; τ_0 étant la durée de l'impulsion et ω_0 est la pulsation centrale de l'impulsion. On obtient l'expression du signal interférométrique :

$$S(\tau) = 1 + 4 \cos(\omega_0 \tau) \exp(-\frac{3}{4}(\tau/\tau_0)^2) + \cos(2\omega_0 \tau) \exp(-(\tau/\tau_0)^2) + 2 \exp(-(\tau/\tau_0)^2) \quad \text{II.1.8}$$

Si τ est tel qu'il n'y a pas de recouvrement temporel entre les deux impulsions, le signal sera simplement égal à deux fois le signal que l'on obtiendrait pour un seul des deux faisceaux. Par contre, pour $\tau = 0$, on obtient $2^4 = 16$ fois plus de signal. On en déduit la relation [5] :

$$S(t=0) = 8S(\infty) \quad \text{II.1.9}$$

Comme nous l'avons signalé au début de la section, l'autocorrélation interférométrique présente l'avantage par rapport à une autocorrélation non-colinéaire d'être sensible au glissement de fréquence de l'impulsion.

Autocorrélation en géométrie non-colinéaire :

Cette technique dont le schéma est présenté sur la figure II.1.6.a) a le même principe que l'autocorrélation interférométrique sauf que les deux faisceaux sont focalisés de façon non-colinéaire sur le cristal non-linéaire KDP. Le second harmonique généré (2ω) est détecté par un photomultiplicateur. La fonction de corrélation enregistrée (donnée par l'équation II.1.7) est présentée dans la figure II.1.6.b) pour les impulsions délivrées par l'amplificateur régénératif (Spitfire). En utilisant le facteur de déconvolution de 1.41 pour une impulsion gaussienne, la durée mesurée de l'impulsion est de l'ordre de $\tau = 152$ fs.

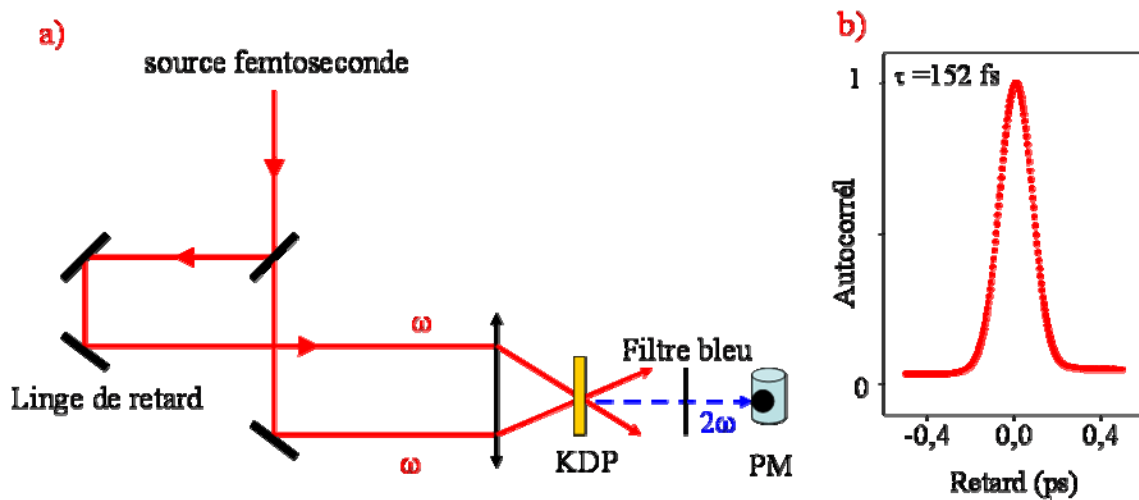


Figure II.1.6.a) : Schéma d'un autocorrélateur optique en géométrie non-colinéaire. b) Courbe de l'autocorrélation de l'impulsion délivrée par le Spitfire.

II.1.4. Technique de mesure pompe sonde résolue en temps

La technique pompe sonde est une méthode utilisée très largement en spectroscopie femtoseconde et qui permet de se passer de détecteurs électroniques ultrarapides dont la réponse temporelle est en général limitée à quelques centaines de picosecondes sauf pour les systèmes sophistiqués et coûteux de caméras à balayage de fente (résolution de ~ 2 ps). Il est ainsi possible de réaliser des expériences avec une résolution temporelle véritablement femtoseconde. Le principe de base de la technique consiste à combiner l'utilisation de deux impulsions lumineuses synchronisées et présentant un décalage temporel ajustable de façon fine. Prenons l'exemple d'un système moléculaire comprenant des niveaux d'énergie discrets. La première impulsion intense dite pompe, déclenche la dynamique dans le système étudié par l'absorption (par exemple) d'un état fondamental vers un état excité. La deuxième

impulsion de faible intensité dite sonde, interagit avec le système après un temps τ bien déterminé et ajustable. Cette interaction pourra soit s'effectuer sur la même transition optique que celle induite par la pompe soit sur une transition différente, partant de l'état excité préparé par la pompe après un certain temps correspondant à la dynamique d'évolution des populations dans l'état excité. La puissance de la méthode pompe sonde provient de sa capacité à suivre en temps réel les mécanismes d'interactions dans les systèmes étudiés avec une résolution temporelle de l'ordre de quelques femtosecondes (donnée par la durée des impulsions). Cet avantage a donné naissance à plusieurs branches de recherches nouvelles comme par exemple : le femtomagnétisme pour étudier les interactions dans un système magnétique (observer la désaimantation ultrarapide [6]), la femtobiologie pour comprendre le fonctionnement des molécules biologiques (observer les paquets d'ondes vibrationnels par exemple [7]) et enfin la femtochimie domaine de recherche qui consiste à suivre la dynamique réactionnelle dans des composés chimiques. Cette dernière branche a valu le Prix Nobel de chimie à Ahmed Zewail en 1999. Notons que bien que la dynamique femtoseconde des systèmes métalliques soit plus complexe que celle des composés moléculaires, en raison principalement des interactions à plusieurs corps dans le « gaz » d'électrons, une très grande variété d'expériences sont réalisables que ce soit pour étudier la dynamique des charges seules ou bien celle des spins.

Le protocole expérimental consiste à enregistrer le signal final en fonction du décalage temporel entre la sonde et la pompe. Donc, il s'agit de reconstruire pas à pas l'évolution du système, réalisant une véritable stroboscopie. Dans le cas d'un métal de transition qui est excité par des impulsions laser intenses, on mesure la variation de la transmission et/ou de la réflexion induite après l'absorption d'une impulsion de pompe. Le signal pompe sonde est donné par la relation :

$$\frac{\Delta I_{SP}(t)}{I_S(t)} = \frac{I_{SP}(t) - I_S(t)}{I_S(t)} ; I = T, R \quad \text{II.1.10}$$

$I_{SP}(t)$ est le signal de la sonde en présence de la pompe (soit de réflexion R soit de transmission T), $I_S(t)$ est le signal initial de la sonde en absence de la pompe, et t est le retard entre la pompe et la sonde.

D'un point de vue de l'optique non-linéaire la configuration pompe-sonde est un cas particulier du mélange à quatre ondes. Ce signal est un processus non-linéaire du troisième ordre qui fait intervenir la susceptibilité $\chi^{(3)}$.

Considérons un matériau qui possède une réponse du troisième ordre. Dans ce cas, la polarisation $P^{(3)}$ est reliée à la susceptibilité $\chi^{(3)}$ par la relation :

$$P^{(3)}(\omega_s) \propto \sum_{i,j,k} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_s; \omega_i, \omega_j, \omega_k) E_i(\omega_i) E_j^*(\omega_j) E_k(\omega_k) \quad \text{II.1.11}$$

où i, j et k peuvent être égaux à p (pompe) ou s (sonde) avec la condition d'avoir toujours deux impulsions laser pompe et sonde.

Dans l'équation de la polarisation $P^{(3)}$, il apparaît plusieurs termes, mais comme en pratique dans le cas de nos expériences nous mesurons seulement le signal dans la direction de la sonde, on ne s'intéresse donc qu'aux termes proportionnels à $\mathbf{E}_s(\omega_s)$. Il ne reste que les termes du type: $E_p E_p^* E_s, E_s E_s^* E_s$. Le deuxième terme n'étant pas relevant dans le cadre d'une expérience pompe sonde avec détection synchrone, le seul important est $E_p E_p^* E_s$ ainsi que les permutations correspondantes des champs. La permutation $E_p^* E_s E_p$ n'existe que pendant la durée de cohérence de la polarisation dans le milieu. Ainsi, on l'appelle terme « cohérent ». La permutation $E_s E_p^* E_p$ n'existe qu'aux retards négatifs et correspond à la perturbation de la sonde sur la pompe (pump perturb free decay). Il est de faible intensité car il nécessite d'établir une cohérence entre le faisceau sonde et le faisceau pompe. Par contre la permutation $E_p E_p^* E_s$ est très importante puisqu'il correspond au réseau cohérence établi par le faisceau pompe dont on peut mesurer la durée de vie aux retards positifs entre pompe et sonde.

Dans le cas d'un milieu de faible absorption, nous pouvons écrire la variation de la transmission du faisceau sonde induit par la pompe comme [8]:

$$\frac{\Delta T_s(t)}{T_s(t)} \cong -\Delta \alpha_{sp}(\omega_s, t) d \quad \text{II.1.12}$$

où d est l'épaisseur de l'échantillon, $\Delta \alpha_{sp}(\omega_s, t) = \alpha_{sp}(\omega_s, t) - \alpha_s(\omega_s, 0)$ est la variation de l'absorption optique du milieu induite en présence de la pompe (dans $\Delta \alpha$ tient compte de la longueur d'interaction avec l'échantillon). D'une manière générale, même dans le cas de petites variations, il faut connaître les variations de la transmission différentielle $\Delta T/T$ et la réflexion différentielle $\Delta R/R$ pour connaître indépendamment la partie imaginaire et la partie réelle de la susceptibilité $\chi^{(3)}$ (soit la fonction diélectrique effective ε du matériau).

Pour analyser quantitativement la dynamique de relaxation des électrons dans les films métalliques par exemple, il est nécessaire de relier les variations de la distribution électronique induite par l'excitation optique aux variations des propriétés optiques de l'échantillon (transmission, réflexion). Dans le cas d'une faible excitation optique (température électronique $\ll 500$ K), les parties réelle et imaginaire de la fonction diélectrique ε sont des combinaisons linéaires de $\Delta T/T$ et $\Delta R/R$ via les relations de Rosei [9] :

$$\begin{aligned}\Delta\varepsilon_1 &= A \frac{\Delta T}{T} + B \frac{\Delta R}{R} \\ \Delta\varepsilon_2 &= C \frac{\Delta T}{T} + D \frac{\Delta R}{R}\end{aligned}\quad \text{II.1.13}$$

où $\Delta\varepsilon_1$ et $\Delta\varepsilon_2$ représentent respectivement les parties réelle et imaginaire de la fonction diélectrique effective ε du métal. A, B, C et D dépendent de la longueur d'onde d'excitation, l'épaisseur du film et de l'indice de réfraction complexe du matériau.

Dans la prochaine section, nous revenons sur la technique de mesure magnéto-optique résolue en temps pour mesurer la variation temporelle de l'aimantation.

Effet Kerr optique :

Intéressons-nous au cas où il y a un seul faisceau laser associée au champ $E(\omega)$ incident sur un milieu non-linéaire possédant un centre d'inversion ($\chi^{(2)} = 0$). La polarisation induite, à la fréquence ω et en se limitant au troisième ordre, s'écrit alors :

$$P(\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E(\omega) + \frac{3\varepsilon_0}{4} \chi^{(3)} E(\omega) E^*(\omega) E(\omega) \quad \text{II.1.14}$$

On voit que le terme de la polarisation non-linéaire de troisième ordre a exactement la même phase que le champ électrique (l'accord de phase est automatiquement vérifié).

Si le milieu est isotrope, on a

$$P(\omega) = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} + \frac{3\varepsilon_0}{4} \chi^{(3)} E(\omega) E^*(\omega) \right) E(\omega) = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} + \frac{6\chi^{(3)}}{4n_0 c \varepsilon_0} I \right) E(\omega); \quad \text{II.1.15}$$

$I(\omega) = n_0 \varepsilon_0 c (E(\omega) E^*(\omega)) / 2$ est l'intensité du champ électrique de l'impulsion laser.

Cette dernière relation permet de définir un indice de réfraction effectif n comme

$$n^2 - 1 = \chi^{(1)} + \frac{6\chi^{(3)}}{4n_0 c \varepsilon_0} I ; \text{ avec } \chi^{(1)} = n_0^2 - 1 \quad \text{II.1.16}$$

$$\text{Donc } n \cong n_0 + \frac{n_2}{2} I \text{ avec } n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0^2 c \varepsilon_0} \quad \text{II.1.17}$$

n_0 étant l'indice de réfraction linéaire, n_2 est l'indice de réfraction non-linéaire. Ce phénomène est appelé effet Kerr optique et les milieux pour lesquels l'indice suit la relation sont les milieux Kerr. Ainsi, la dépendance de l'indice de réfraction en fonction de l'intensité laser produit une modulation de la phase pendant la durée de l'impulsion laser. Un exemple de manifestation de l'effet Kerr optique est le phénomène d'autofocalisation qui se manifeste par la dépendance spatiale de cet effet (voir le paragraphe II.1.1.1.).

II.1.5. Technique pompe sonde Kerr Faraday résolue en temps

Avant de s'intéresser aux effets magnéto-optiques dépendant du temps, nous commençons par une simple description des effets magnéto-optiques Kerr et Faraday statiques.

II.1.5.1. L'effet Kerr (Faraday) magnéto-optique statique

L'effet magnéto-optique Kerr ou Faraday résulte de l'interaction d'une lumière polarisée (linéaire, circulaire gauche ou droite) avec un matériau magnétique. L'aimantation du matériau M est proportionnelle à la rotation de la polarisation de la lumière après réflexion par le matériau pour l'effet Kerr ou après transmission à travers le matériau pour l'effet Faraday. Selon l'orientation de la polarisation de la lumière incidente et la direction de l'aimantation du matériau, on peut distinguer trois configurations expérimentales (voir la figure II.7 par exemple pour l'effet Kerr) :

- L'effet magnéto-optique polaire : dans cette configuration, l'aimantation est perpendiculaire à la surface de l'échantillon et est contenue dans le plan d'incidence de la lumière.
- L'effet magnéto-optique transverse : dans cette configuration, l'aimantation se trouve dans le plan de l'échantillon et perpendiculaire au plan d'incidence de la lumière.
- L'effet magnéto-optique longitudinal : dans ce cas, l'aimantation est parallèle au plan d'incidence de la lumière et à la surface de l'échantillon.

Classiquement, l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE) peut être expliqué par l'action d'une force de Lorentz sur les électrons excités avec l'onde électromagnétique incidente. Cette image n'explique cependant pas la réalité puisqu'on a besoin de champs magnétiques très élevés de l'ordre de 10^4 T pour obtenir un signal observable expérimentalement.

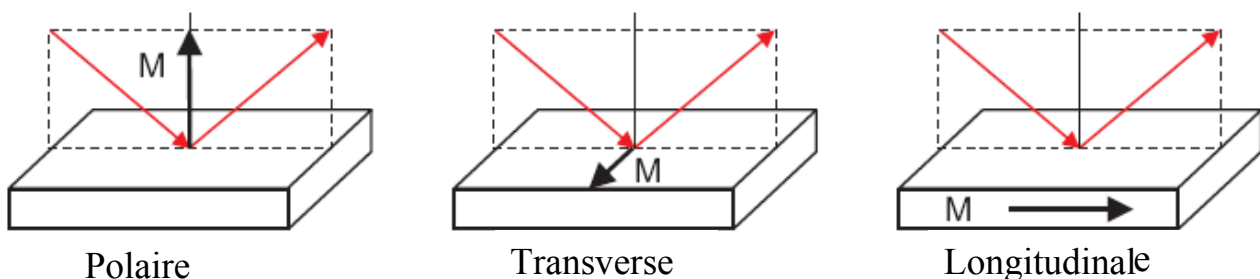


Figure II.7 : Les différentes configurations expérimentales de l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE) : polaire, transverse, et longitudinale.

Macroscopiquement, dans l'approche phénoménologique, le tenseur diélectrique qui décrit la réponse optique d'un milieu optique isotrope peut être écrit comme :

$$[\varepsilon] = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} \quad \text{II.1.18}$$

En présence de l'aimantation, le milieu devient anisotrope optiquement, les effets induits par l'aimantation étant décrits par les composantes non-diagonales du tenseur diélectrique qui sont données par la formulation de Onsager [10] :

$$[\varepsilon] = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & -\varepsilon_{xz} \\ -\varepsilon_{xy} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{xz} & -\varepsilon_{yz} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix}; \text{ avec } \varepsilon_{ij}(M) = \varepsilon_{ij}(-M) \quad \text{II.1.19}$$

Cette expression est valable dans le cas général pour une direction de l'aimantation arbitraire. Nous supposons le cas où l'aimantation est dirigée selon l'axe oz (perpendiculaire à la surface de l'échantillon), dans ce cas les éléments ε_{xz} s'annulent et l'aimantation peut s'écrire comme : $\varepsilon_{xy} = F.M$; F est une constante complexe.

Pour une lumière polarisée linéairement, qui peut être décomposée en deux ondes électromagnétiques de polarisation circulaire droite σ_+ et gauche σ_- , on peut calculer les différents indices n_+ et n_- du matériau à partir du tenseur diélectrique et en déduire la rotation complexe de l'onde incidente qui a la forme :

$$\tilde{\theta}_K = \theta_K + i\eta_K = \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}(\varepsilon_{xx} - 1)} \quad \text{II.1.20}$$

où θ_K est la rotation Kerr, η_K est l'ellipticité Kerr. Soulignons que dans le régime statique les effets magnéto-optiques sont linéaires par rapport à l'aimantation et par rapport au champ électrique de la lumière (susceptibilité d'ordre 1 : $\chi^{(1)}$).

Du point de vue microscopique, la combinaison entre le couplage spin-orbite et l'interaction d'échange ainsi que la prise en compte des règles de sélections des transitions optiques permettent d'expliquer les effets magnéto-optiques observés expérimentalement. Les transitions optiques dans l'approximation dipolaire ont des probabilités d'absorption différentes pour la lumière polarisée circulairement droite ou gauche. La partie imaginaire des composantes non-diagonales du tenseur de conductivité qui détermine la réponse magnéto-optique, est donnée par la relation [11] :

$$\text{Im}\sigma_{xy} = \frac{e^2\pi}{4\hbar\omega m^2\Omega} \sum_{i,j} f(E_i)[1-f(E_j)][|<i/p_-/j>|^2 - |<i/p_+/j>|^2] \delta(\omega_{ji} - \omega) \quad \text{II.1.21}$$

où $f(E)$ représente la fonction de distribution de Fermi Dirac, $\hbar\omega$ est l'énergie des photons de la lumière incidente. $\hbar\omega_{ij} = E_j - E_i$; E_i et E_j sont les énergies de l'état électronique initial $|i\rangle$ et final $|j\rangle$ respectivement, $\delta(\omega_{ji} - \omega)$ décrivant la conservation de l'énergie (règle d'or de Fermi). $|\langle i/p_-/j\rangle|$ et $|\langle i/p_+/j\rangle|$ sont les éléments de matrice pour les transitions interbandes dipolaires pour la polarisation circulaire gauche et droite respectivement. Dans le cas des matériaux ferromagnétiques, le couplage spin-orbite a été montré comme étant le plus important pour expliquer les effets magnéto-optiques [12].

II.1.5.2. L'effet Kerr (Faraday) magnéto-optique dynamique (résolu en temps)

Dans les expériences pompe sonde magnéto-optiques, nous mesurons la variation de l'aimantation induite sur la sonde par la pompe en fonction du retard entre les deux impulsions (pompe et sonde). Dans ce cas, le signal magnéto-optique dynamique s'écrit :

$$\frac{\Delta M_{SP}(t)}{M_S(t)} = \frac{M_{SP}(t) - M_S(t)}{M_S(t)} \quad \text{II.1.22}$$

Où $M_{SP}(t)$ est l'aimantation de la sonde en présence de la pompe, $M_S(t)$ est l'aimantation initiale de la sonde sans pompe.

Nous considérons le cas d'un film ferromagnétique mince placé dans un champ magnétique statique H_0 (\perp à la surface du film) excité par deux impulsions laser : une impulsion pompe intense $E_p(t)e^{i\omega t}$ et une impulsion sonde $E_s(t-\tau)e^{i\omega t}$, retardée d'un temps τ . Les réponses temporelles de la polarisation optique $P(t)$ et magnéto-optique $M(t)$ sont données par [13]:

$$\begin{aligned} P(t-\tau) &= R^{(1)}(t-\tau) \otimes E_s + R^{(3)}(t-\tau) \otimes E_p E_p^* E_s \\ M(t-\tau) &= R^{(1)MO}(t-\tau) \otimes E_s H_0 + R^{(3)MO}(t-\tau) \otimes E_p E_p^* E_s H_0 \end{aligned} \quad \text{II.1.23}$$

où $R^{(1)}$, $R^{(3)}$ et $R^{(1)MO}$, $R^{(3)MO}$ sont les réponses optique et magnéto-optique de premier (linéaire) et troisième ordre (non linéaire) respectivement.

Examinons la rotation Kerr et Faraday dans le cas d'une sonde polarisée linéairement, la polarisation de la pompe est supposée circulaire. Dans la configuration de Faraday, la polarisation de la sonde subit une rotation $\theta_F(\tau)$ et une ellipticité $\eta_F(\tau)$ qui peuvent être décomposées en deux contributions :

$$\begin{aligned} \theta^F(\tau) &= \theta_F^{(1)MO} + \theta_F^{(3)}(\tau) + \theta_F^{(3)MO}(\tau) \\ \eta^F(\tau) &= \eta_F^{(1)MO} + \eta_F^{(3)}(\tau) + \eta_F^{(3)MO}(\tau) \end{aligned} \quad \text{II.1.24}$$

$\theta_F^{(1)MO}$, $\eta_F^{(1)MO}$ sont la rotation et l'ellipticité statiques, qui sont associées à l'aimantation statique de la sonde M_S . Ces quantités ne dépendent pas de l'intensité de la pompe ni du retard entre la pompe et la sonde τ .

$\theta_F^{(3)}(\tau)$, $\eta_F^{(3)}(\tau)$ sont la rotation et l'ellipticité optiques induites par la pompe. L'anisotropie de l'indice de réfraction non-linéaire induite par la pompe donne lieu à une biréfringence et un dichroïsme du faisceau sonde, qui dépendent de l'intensité de la pompe. Cet effet est un processus cohérent, qui relaxe exponentiellement en fonction du retard entre la pompe et la sonde avec une constante de temps T_2 associée au déphasage électronique ($T_2 \sim 10$ à 20 fs).

$\theta_F^{(3)MO}(\tau)$, $\eta_F^{(3)MO}(\tau)$ sont la rotation et l'ellipticité magnéto-optiques dynamiques induites par la pompe. Cette contribution contient des informations sur la dynamique d'aimantation mais elle ne peut pas être analysée simplement par un terme purement magnétique. En effet, la réponse temporelle correspondant au terme $R^{(3)MO}(\tau)$ contient la dynamique des charges et des spins. En plus de la réponse magnétique dépendant du temps, elle comprend tous les processus incohérents comme la thermalisation électronique (avec un temps $t_{\text{therm}} \sim 60$ à 300 fs), la relaxation électron-phonon (avec un temps $\tau_{e-l} \sim 500$ fs à 10 ps) et enfin la diffusion de la chaleur (voir le premier chapitre). D'une façon générale, la contribution purement électronique (les charges) est beaucoup plus faible que celle des spins mais en toute rigueur il est nécessaire de déterminer complètement le tenseur de susceptibilité pour évaluer leur importance relative comme nous l'avons fait à Strasbourg dans le cas du CoPt_3 [14]. L'absence d'une telle analyse peut conduire à des interprétations erronées [15].

II.6. Configuration expérimentale

Au cours de ce travail, nous avons utilisé deux configurations expérimentales différentes. Nous avons utilisé un premier montage pour étudier la dynamique du vecteur d'aimantation dans l'espace des axes (polaire, longitudinal, transverse) d'une assemblée de particules magnétiques avec une résolution temporelle de 120 fs et une résolution spatiale de $50 \mu\text{m}$. La deuxième configuration que nous avons développée au cours de cette thèse avait pour but d'étudier la dynamique ultrarapide des plots ferromagnétiques individuels avec une résolution spatiale donnée par la limite de diffraction de la lumière (~ 300 nm pour $\lambda = 400$ nm) et une résolution temporelle de 150 fs.

Les impulsions laser sont délivrées par un amplificateur régénératif avec une durée de 120 fs, à un taux de répétition de 5 kHz, et à une longueur d'onde centrée à 793 nm (voir la figure II.8). Ensuite le faisceau laser est divisé en deux parties par une lame séparatrice : la

première partie du faisceau est utilisée pour la première configuration expérimentale, l'autre partie du faisceau est envoyée vers le microscope magnéto-optique confocal.

Pour le premier montage, le faisceau laser est divisé en deux parties en utilisant une autre lame séparatrice. Le faisceau le plus intense (80 %) est utilisé pour générer le faisceau pompe à une longueur d'onde de 396 nm par doublage de fréquence dans un cristal non-linéaire de BBO d'épaisseur 3 mm. Le faisceau de faible intensité (20 %) est utilisé comme sonde à 793 nm. Le retard optique entre les deux impulsions est contrôlé par un moteur pas à pas d'une résolution de 1 μm /pas. Ensuite, les deux faisceaux sont focalisés sur l'échantillon avec une tache de diamètre 100 μm pour la pompe et 50 μm pour la sonde avec deux angles d'incidence différents: incidence normale pour la pompe et 53° pour la sonde dont polarisation est initialement linéaire. L'aimantation est mesurée par une analyse de la polarisation de la sonde après réflexion (géométrie magnéto-optique Kerr) au moyen d'un cube séparateur de polarisation. Pour obtenir des informations sur la dynamique des électrons, nous avons mesuré également la transmission et la réflexion différentielles. Les signaux sont détectés par des photodiodes de façon synchrone avec un amplificateur « Lock-in » dont le signal de référence à 215 Hz est donné par un modulateur mécanique installé sur le faisceau pompe. Nous détaillons dans le quatrième chapitre la méthode de mesure des trois composantes de l'aimantation (polaire, longitudinale, transverse).

Pour la deuxième configuration, nous avons utilisé le montage pompe sonde en géométrie confocale, mais cette fois la sonde a une longueur d'onde à 396 nm pour obtenir une meilleure résolution spatiale, le faisceau pompe étant à 793 nm. De plus, les deux faisceaux sont focalisés de façon colinéaire sur l'échantillon. Nous détaillons le principe de fonctionnement du microscope magnéto-optique résolu en temps dans la deuxième partie de ce chapitre.

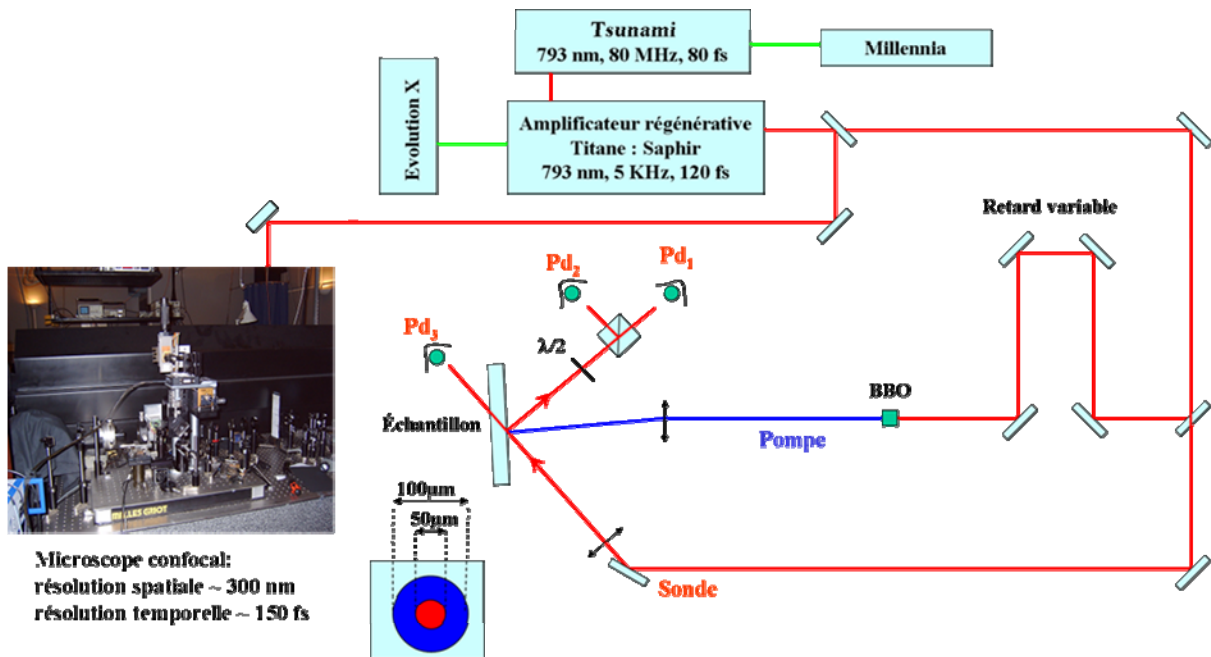


Figure II.8 : Schéma général du montage expérimental. Il y a deux configurations expérimentales différentes: 1- Un montage pompe sonde magnéto-optique avec une résolution temporelle de 120 fs et une résolution spatiale de 50 μm : pour mesurer la trajectoire de l'aimantation dans les trois directions de l'espace pour l'étude des nanoparticules magnétiques mono-domaine. 2- Un microscope magnéto-optique confocal avec une résolution temporelle de 150 fs et une résolution spatiale de 300 nm pour étudier la dynamique et le renversement d'aimantation de plots ferromagnétiques submicroniques individuels.

II.2. Microscope magnéto-optique confocal résolu en temps

II.2.1. Introduction à la microscopie confocale

La microscopie confocale présente un grand avantage par rapport à la microscopie optique conventionnelle : le contrôle de la profondeur de champ, ce qui permet de réduire les informations provenant de régions hors du plan focal qui se traduit habituellement par une dégradation de l'image optique. Cette capacité de sélectionner des séries d'images en différentes profondeurs de l'échantillon étudié permet notamment d'effectuer des images en 3D. Le concept de base du microscope confocal a été développé pour la première fois par M. Minsky en 1950 [16] pour étudier les tissus neurobiologiques. Minsky a imaginé une solution élégante basée sur un microscope classique en rajoutant deux diaphragmes : l'un réduisant la source de lumière à un point et l'autre dans le plan conjugué devant le détecteur. Quelques années plus tard (1980), une première démonstration de l'utilité de microscope confocal a été démontrée par T. Wilson, B. Amos et J. White sur des cellules biologiques en mesurant leur fluorescence [17]. Le microscope confocal a été commercialisé en 1987. De plus, avec les progrès considérables de la technologie des lasers, l'électronique et l'informatique, une architecture compacte a été élaborée comprenant des lasers, des éléments optiques, des dispositifs de balayage rapide et des ordinateurs qui traitent numériquement les images. Ces microscopes sont actuellement les plus utilisés en biologie (neurobiologie, biophysique...) pour étudier des molécules uniques, des cellules et tissus vivants. De plus, nous pouvons l'utiliser aussi dans le domaine de la physique de la matière condensée, par exemple pour imager l'état magnétique des nanostructures magnétiques individuelles ce qui constitue l'objectif principal de cette thèse développé dans le prochain chapitre.

Le principe de la microscopie confocale est résumé dans l'image II.2.1. Il existe plusieurs configurations. Celle de la figure II.2.1 correspond au cas d'une imagerie par fluorescence avec un échantillon excité par laser. Les rayons de lumière (laser d'excitation) passent au travers d'un pinhole qui est situé dans le plan conjugué de l'échantillon et dont le déplacement permet d'explorer l'échantillon (spécimen), puis sont envoyés vers l'échantillon à l'aide d'un miroir dichroïque et un objectif de microscope. Ensuite l'émission des rayons de fluorescence provenant de différents plans de l'échantillon (dans la profondeur) sont collectés grâce à un deuxième diaphragme placé avant le détecteur (PM). Le rôle de ce diaphragme est d'éliminer les signaux provenant d'autres plans. Il est ainsi possible de sélectionner seulement les rayons émis par un seul plan de l'échantillon.

La résolution spatiale latérale d_{xy} , est donnée par la limite de diffraction des rayons de lumière passant par l'objectif d'ouverture numérique NA. La résolution en profondeur d_z , dépend à la fois de l'ouverture numérique mais également du diamètre du diaphragme. Dans le meilleur des cas (diaphragme de diamètre adapté) celles ci sont données par :

$$\begin{aligned} d_{xy} &= 0.4\lambda / NA \\ d_z &= 1.4\lambda / NA^2 \end{aligned} \quad \text{II.2.1}$$

où λ est la longueur d'onde de la lumière émise par l'échantillon (fluorescence). Ainsi, l'adjonction d'un diaphragme entraîne une amélioration de la résolution spatiale de l'ordre de 30% par rapport à la microscopie optique conventionnelle. Si on utilise par exemple une lumière d'excitation de longueur d'onde $\lambda = 400$ nm qui est focalisée avec un objectif de microscope possédant une ouverture numérique de 0.65, nous obtenons une résolution latérale $d_{xy} = 246$ nm et une résolution en profondeur $d_z = 860$ nm. Ces valeurs sont obtenues à partir des équations II.2.1 dans le cas où le pinhole est de diamètre très petit (~ 300 nm à quelques microns).

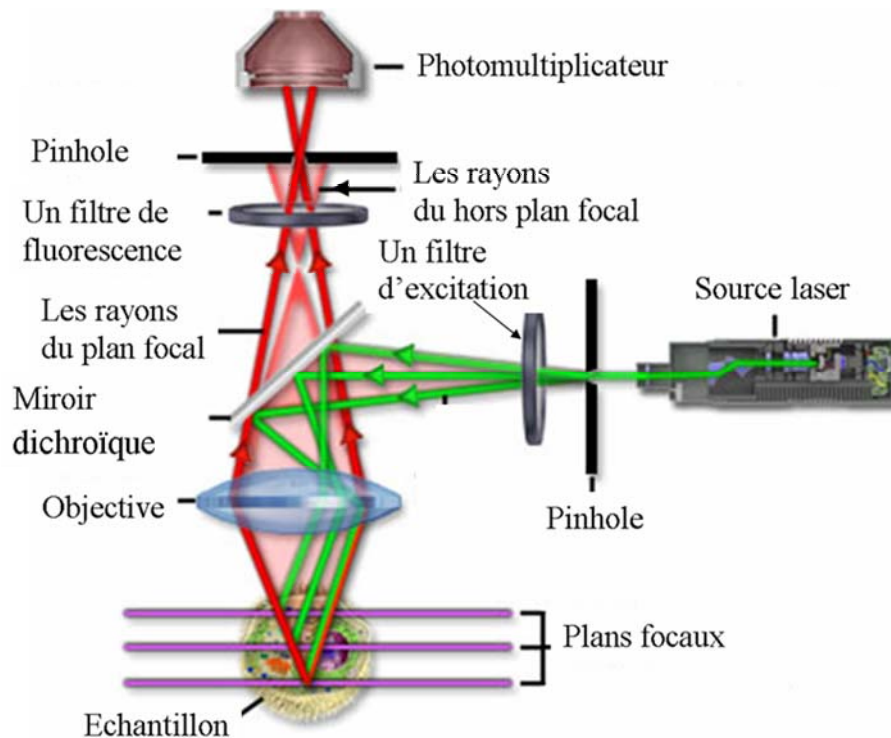


Figure II.2.1 : Schéma de la configuration optique d'un microscope confocal en mode fluorescence (OLYMPUS).

II.2.2. Microscope magnéto-optique confocal résolu en temps

Nous utilisons une configuration expérimentale de microscopie confocale modifiée par rapport à la figure II.2.1, avec une analyse de polarisation des faisceaux incident et réfléchi pour mesurer le contraste magnéto-optique des plots ferromagnétiques individuels. Notre approche expérimentale permet, en plus de la résolution spatiale de 300 nm, d'avoir une résolution temporelle de 150 fs permettant de réaliser des expériences pompe sonde résolues en temps. Ce microscope magnéto-optique résolu en temps est présenté sur la figure II.2.2. Les impulsions laser pompe et sonde sont délivrées par un amplificateur régénératif titane : saphir fonctionnant à un taux de répétition de 5 kHz. Le faisceau pompe est centré à une longueur d'onde fondamentale de 793 nm, tandis que la sonde (396 nm) est obtenue par le processus de génération de la seconde harmonique dans un cristal de BBO (beta barium borate) d'épaisseur 1.5 mm. Deux télescopes indépendants sont installés sur le trajet des faisceaux permettent d'adapter le mode et la collimation de chaque faisceau afin d'obtenir une meilleure focalisation sur l'échantillon. Après un passage par une ligne à retard optique, la pompe est rendue colinéaire au faisceau sonde grâce à une lame dichroïque, ensuite les deux faisceaux sont focalisés sur l'échantillon grâce à un objectif de microscope ayant une ouverture numérique de 0.65 et un grandissement x40. L'échantillon est monté sur une platine piézoélectrique qui a une résolution de déplacement de 2 nm et une course maximale de 80 μm en x et en y.

La résolution latérale théorique est de 300 nm pour la sonde (396 nm) et de 600 nm pour la pompe (793 nm). L'intérêt de la configuration confocale dans nos expériences est très important pour éliminer la diffusion provenant des réflexions hors du plan focal qui participe à la détérioration de la polarisation de la lumière et à une augmentation du bruit dans le signal mesuré. C'est le cas en particulier de la réflexion du substrat qui est en général d'épaisseur 500 μm c'est à dire bien supérieure à la profondeur de champ qui en confocal est dans la gamme de 1 μm . La durée approximative des impulsions est de 150 fs pour la pompe et 180 fs pour la sonde. Cette augmentation de la durée (120 fs) est liée à la dispersion de vitesse de groupe introduite par le verre de l'objectif. Le faisceau réfléchi de la sonde est collecté par une lame séparatrice dichroïque, et focalisé de nouveau dans un pinhole de diamètre de 20 μm et détecté par un photomultiplicateur (PM). Pour réaliser l'image optique des nanostructures magnétiques en temps réel de façon à pouvoir les repérer ainsi qu'à superposer les deux faisceaux nous avons utilisé une caméra vidéo qui est placée à la même distance que le pinhole après la lentille de focalisation. Un miroir escamotable permet soit de visualiser les

nanostructures soit de réaliser les mesures magnéto-optiques. Enfin le signal est mesuré de façon synchrone avec un amplificateur « Lock-In » dont le signal de référence de 215 Hz est donné par un modulateur mécanique installé sur le bras de la sonde pour les mesures statiques et sur la pompe pour les mesures dynamiques.

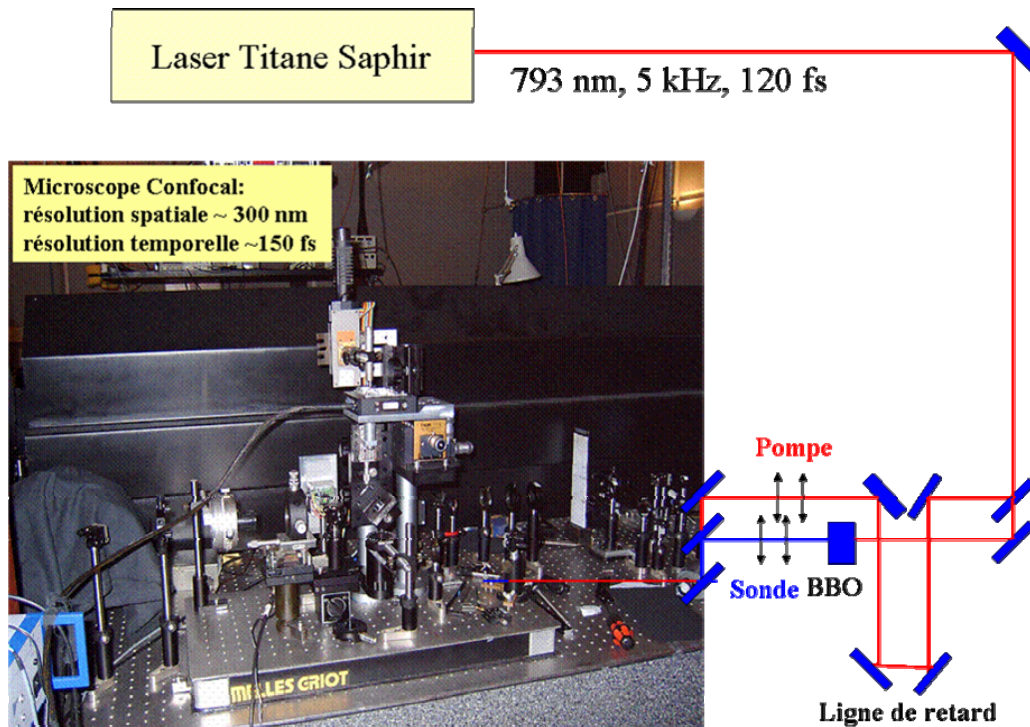


Figure II.2.2 : Schéma du microscope magnéto-optique confocal développé pour mesurer la dynamique ultrarapide d'aimantation d'un plot ferromagnétique individuel submicronique. La résolution spatiale est de 300 nm, la résolution temporelle est de 150 fs.

Avant d'étudier le mode statique et dynamique du microscope magnéto-optique confocal, nous allons discuter les différents problèmes rencontrés pendant la construction du microscope, qui sont liés à la dépolarisation du laser, à la dispersion de vitesse de groupe et à la détection.

- Problème de dépolarisation du laser surtout pour les longueurs d'ondes proches de l'ultraviolet (~ 400 nm) : Une première version d'un microscope confocal avait été développée dans le cadre de la thèse d'Abdelkrim Benabbas pour étudier l'exaltation de transmission de réseaux de trous sub-longueur d'onde [18]. Ce microscope n'était cependant pas motorisé au niveau de la platine de l'échantillon et la préservation du

taux de polarisation était d'environ 10^{-2} . Une deuxième version, mise en œuvre dans le cadre du stage ingénieur de Julien Pansiot a consisté à motoriser le support d'échantillon sur une platine piézo-électrique et à l'interfacer à un PC en langage C++. Cette version a été utilisée dans le cadre de la thèse de Pascal Didier pour étudier le vieillissement de la molécule GFP en mesurant leur fluorescence [19]. Dans le cadre de nos études il a fallu re-concevoir l'optique de l'instrument afin d'avoir un meilleur taux de polarisation. Par ailleurs, le microscope précédent n'était pas suffisamment stable mécaniquement pour nos mesures. Nous avons donc construit un nouveau microscope dont le montage est présenté sur la figure II.2.4 avec des éléments optiques qui conservent l'état de polarisation et en réutilisant la motorisation piézo-électrique du support de l'échantillon et son interface au PC.

- Dispersion de vitesse de groupe : Pour minimiser cet effet, nous avons utilisé un objectif en réflexion (fonctionnant en mode de réflexion sur trois miroirs). Cependant, nous avons constaté que l'état de polarisation de la sonde est détérioré ($\sim 10^{-2}$) au lieu de $5 \cdot 10^{-4}$ avec un objectif classique d'ouverture $NA = 0.65$. C'est cette dernière solution que nous avons adoptée ce qui explique que la durée des impulsions est augmentée de 120 fs à 150 fs pour la pompe et à 180 fs pour la sonde. Cette résolution temporelle s'est avérée suffisante pour étudier la désaimantation ultrarapide (> 120 fs) et la relaxation de l'aimantation (de 0.5 ps à 1 ns).

- Problèmes de détection : En raison des faibles signaux magnéto-optiques ($\sim 10^{-15}$ J/impulsion) et l'importance du bruit introduit par le photomultiplicateur (PM), le rapport signal/bruit est faible. Au début, nous avons utilisé un photomultiplicateur IP28 (ancien model de HAMAMATSU) alimenté par un générateur de tension à 700V (la tension pouvant varier de 0 à 1000 V), nous avons obtenu un rapport signal/bruit dans la gamme de 0.5 à 1, ce qui était trop faible pour effectuer les mesures dynamiques surtout dans le cas des matériaux de faible signal magnéto-optique comme le permalloy et le nickel dont l'état magnétique situé dans le plan de l'échantillon n'est pas favorable à la configuration naturellement polaire du microscope. Nous avons opté pour des photomultiplicateurs R4220 de chez HAMAMATSU qui possèdent une meilleure sensibilité à basse tension d'alimentation et un faible bruit par rapport aux PM IP28. Avec les PM R4220, nous avons utilisé une tension d'amplification de 300 V et le rapport bruit/signal typique est de 0.1 soit 5 fois

amélioré. La sensibilité de la cathode et l'efficacité quantique (%) du PM R4220 en fonction de la longueur d'onde sont représentées sur la figure II.2.3. Nous voyons que la sensibilité présente un maximum sur une gamme spectrale de 100 nm centrée à 400 nm.

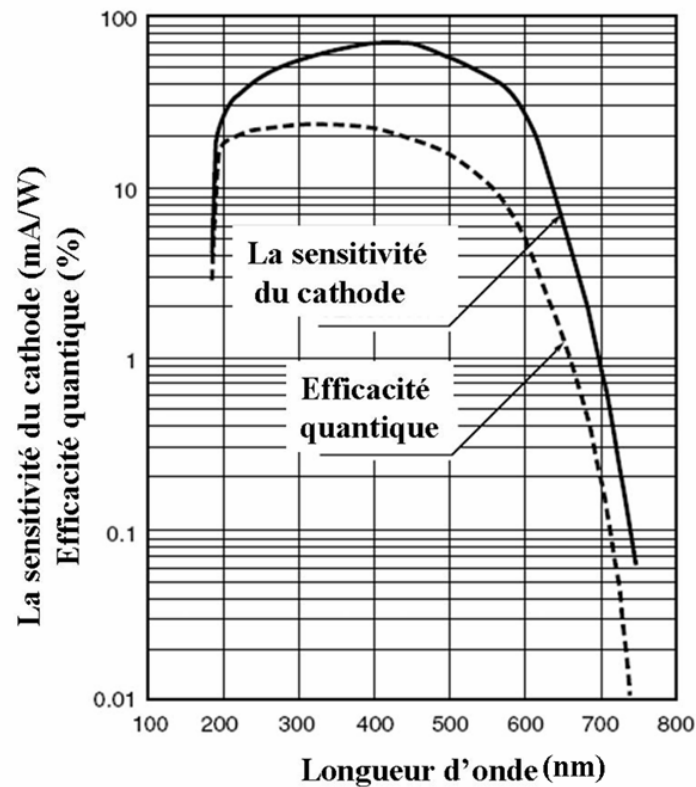


Figure II.2.3 : Réponse spectrale du photomultiplicateur PM 4220 : Ligne continue : évolution de la sensibilité de la cathode du PM avec la longueur d'onde. Ligne pointillée : variation de l'efficacité quantique avec la longueur d'onde.

II.2.2.1. Mesures magnéto-optiques statiques

Nous avons utilisé principalement la technique des polariseur et analyseur croisés [20] pour mesurer le signal magnéto-optique statique en géométrie Kerr polaire. Le plan d'incidence presque perpendiculaire de la sonde par rapport au plan de l'échantillon nous donne une sensibilité très importante du signal Kerr polaire. Avec cette configuration (voir la figure II.2.4), la sonde est analysée après le plan focal et le diaphragme avec un polariseur de type Glan orienté à un angle de quelques degrés ($< 10^\circ$) et croisé par rapport à l'état initial du polariseur placé avant le microscope (polarisation linéaire P dans nos mesures). Un champ magnétique variable d'amplitude de ± 4 kOe est appliqué perpendiculairement par rapport au plan de l'échantillon.

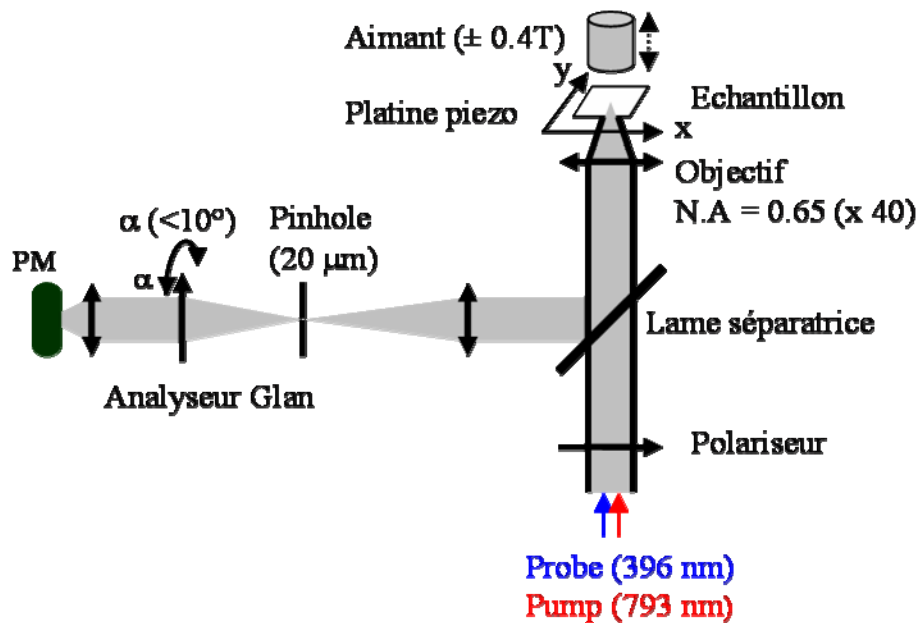


Figure II.2.4. : Montage du microscope magnéto-optique confocal. Analyse de la polarisation en géométrie Kerr polaire par la technique polariseur/analyseur croisés.

Analyse de Jones [21] :

On décrit le champ électrique \mathbf{E}_{inc} associé à l'onde électromagnétique incidente polarisée avec deux composantes selon les axes d'unité \mathbf{e}_s et \mathbf{e}_p . Si l'onde électromagnétique passe au travers d'un polariseur orienté à un angle α_p , un champ électrique d'amplitude normalisée à 1 s'écrit dans la base $\mathbf{e}_s, \mathbf{e}_p$:

$$\mathbf{E}_{\text{inc}} = E_{\text{incS}}\mathbf{e}_s + E_{\text{incP}}\mathbf{e}_p = \begin{pmatrix} E_{\text{incS}} \\ E_{\text{incP}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sin \alpha_p \\ \cos \alpha_p \end{pmatrix} \quad \text{II.2.2}$$

Avec cette notation, après la réflexion par un échantillon magnétique, la polarisation de la sonde devient elliptique, et les deux composantes du vecteur du champ $\mathbf{J}(E_s, E_p)$ sont données par la matrice de Jones [21] :

$$[\mathbf{T}] = \begin{pmatrix} r_{SS} & r_{SP} \\ r_{PS} & r_{PP} \end{pmatrix} = r_{SS} \begin{pmatrix} 1 & -\tilde{\theta} \\ \tilde{\theta} & \rho \end{pmatrix} \quad \text{II.2.3}$$

où r_{SS} et r_{PP} sont les coefficients complexes de Fresnel de la réflexion, $\tilde{\theta} = \theta + i\varepsilon$ est la rotation Kerr complexe (θ la rotation, ε l'ellipticité). ρ est le rapport entre les composantes diagonaux r_{PP} et r_{SS} , qui peut s'écrire comme :

$$\rho = \rho' + i\rho'' = \frac{r_{PP}}{r_{SS}} = \frac{|r_{PP}|}{|r_{SS}|} \exp i(\delta_{r_{PP}} - \delta_{r_{SS}}) = \tan(\beta_{PP,SS}) \exp i(\Delta_{PP,SS}) \quad \text{II.2.4}$$

où $\beta_{PP,SS}$ est l'amplitude du rapport r_{PP}/r_{SS} , $\Delta_{PP,SS}$ est la différence de phase entre les composantes S et P de la polarisation du champ électrique réfléchi.

Nous pouvons écrire les deux composantes du champ électrique réfléchi comme :

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = E_0 \begin{pmatrix} \cos(\beta) \exp(-i\Delta/2) \\ \sin(\beta) \exp(i\Delta/2) \end{pmatrix} \quad \text{II.2.5}$$

$$\text{Avec } \tan(\Delta) = \frac{2\varepsilon}{(1-\varepsilon^2)\sin(2\theta)} \text{ et } \cos(\beta) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[1 + \cos(2\theta) \left(\frac{1-\varepsilon^2}{1+\varepsilon^2} \right) \right]^{1/2} \quad \text{II.2.6}$$

où β étant l'amplitude Kerr, Δ étant la phase Kerr.

Ainsi, pour un faisceau incident d'intensité I_0 , l'intensité détectée après une analyse de polarisation à un angle $\alpha_A = \pi/2 - \alpha$ et pour un angle de polariseur $\alpha_P = 0^\circ$, est donnée par [21]

$$I = \mathbf{E} \cdot \mathbf{E}^* = I_0 \left| \begin{pmatrix} \sin \alpha_A & \cos \alpha_A \end{pmatrix} [\mathbf{T}] \begin{pmatrix} \sin \alpha_P \\ \cos \alpha_P \end{pmatrix} \right|^2 \quad \text{II.2.7}$$

$$I = I_0 [\sin^2(\alpha) + 2\theta \sin(\alpha) \cos(\alpha) + (\theta^2 + \varepsilon^2) \cos^2 \alpha] \quad \text{II.2.8}$$

où $I_0 = E_0^2 = |r_{SS}|^2$ étant l'intensité du champ réfléchi (réflexion).

Généralement l'angle α est très petit ($< 10^\circ$), donc on obtient finalement l'intensité détectée I pour les deux directions du champ appliqué :

$$I_{\pm H} \cong I_0 (\alpha^2 \mp 2\alpha\theta + (\theta^2 + \varepsilon^2)) \quad \text{II.2.9}$$

Pour obtenir des informations sur l'aimantation, nous calculons la quantité R définie comme :

$$R = \frac{I_{+H} - I_{-H}}{4I_0} = -\theta \alpha \quad \text{II.2.10}$$

La quantité R dépend linéairement de l'angle de l'analyseur α , généralement les contributions optiques sont négligeables pour des petits angles d'analyse α et l'aimantation est donnée par la pente de ligne $R(\alpha)$.

$$M \propto \theta \propto I_{+H} - I_{-H} \quad \text{II.2.11}$$

Dans la figure II.2.5, on montre les mesures Kerr magnéto-optiques statiques d'un plot individuel de CoPt_3 ayant un diamètre de $1 \mu\text{m}$ pour deux directions opposées du champ magnétique ($H = \pm 3.5\text{kOe}$).

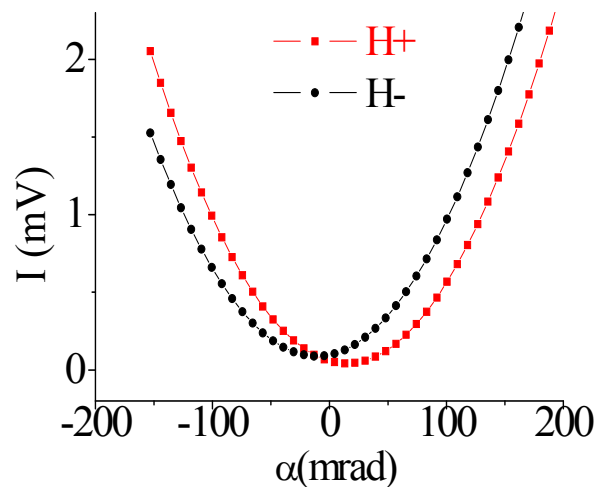


Figure II.2.5 : Signal magnéto-optique Kerr d'un plot individuel de CoPt_3 ayant un diamètre de $1\mu\text{m}$ en fonction de l'angle de l'analyseur pour un champ magnétique statique $H = \pm 3.5 \text{ kOe}$.

Les lignes continues représentent les ajustements calculés en utilisant l'équation II.2.9. L'accord est très bon. La légère asymétrie observée pour les deux minima des paraboles est due à la présence des constantes de dépolarisation introduites par les éléments optiques du microscope Kerr qui ne dépendent pas du champ magnétique. Nous avons calculé directement à partir des constantes de l'ajustement une rotation Kerr de 3 mrad .

Nous avons utilisé aussi la méthode d'analyse du pont de polarisation utilisant un cube séparateur de polarisation, précédé d'une lame d'onde $\lambda/2$ qui permet de séparer le faisceau réfléchi en deux faisceaux équilibrés. Cette méthode permet également d'avoir des informations directes sur l'aimantation pour une direction donnée du champ magnétique, dans ce cas, l'aimantation est proportionnelle à la différence entre les deux intensités des bras :

$$M \propto \theta = I_x - I_y \quad \text{II.2.12}$$

Avec cette technique le bruit présent sur chacun des deux bras s'additionne, nous avons donc travaillé principalement avec la première technique (polariseur/analyseur croisé).

Notre configuration expérimentale nous donne également la possibilité d'imager l'état magnétique des nanostructures magnétiques en déplaçant l'échantillon dans le plan XY. La figure II.2.6 (a) représente l'image magnéto-optique mesurée pour un angle d'analyse $\alpha = 6^\circ$ d'un plot individuel de CoPt_3 de diamètre 500 nm. Le signal magnéto-optique mesuré est proche de la résolution théorique de notre microscope. Cela se voit sur la figure II.2.6 (b) où est représentée une coupe transverse de l'aimantation en $Y=0$ selon l'axe X.

La ligne continue correspond à la convolution $C_d(X)$ d'une gaussienne (largeur à mi-hauteur de 300 nm) avec une fonction créneau d'une largeur de 500 nm :

$$C_d(X) = \exp[-\ln 2(X/150)^2] \otimes [H(X+250)(1-H(X-250))] \quad \text{II.2.13}$$

H étant la fonction Heaviside.

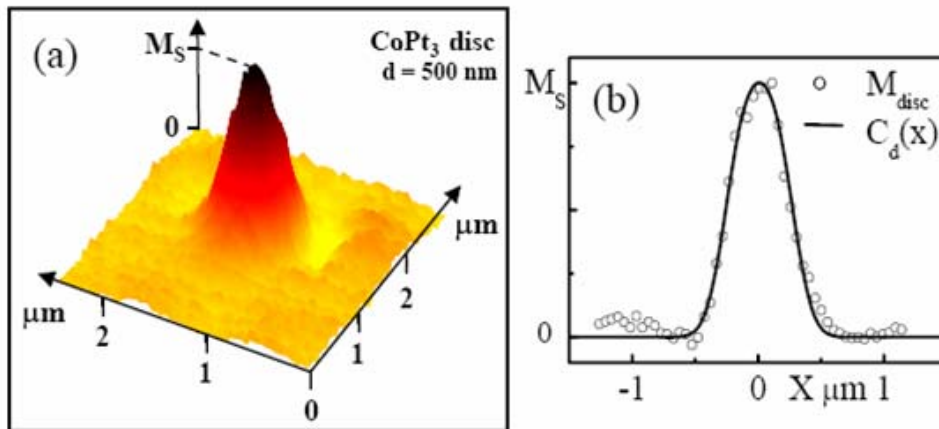


Figure II.2.6 : a) Image magnéto-optique d'un plot individuel de CoPt_3 de diamètre de 500 nm mesuré à un angle d'analyse de 6° et pour un champ magnétique $H = 4$ kOe. b) Une coupe transverse en $Y = 0$ ajustée avec la fonction de corrélation $C_d(X)$.

II.2.2.2. Mesures magnéto-optiques dynamiques

Dans le cas des mesures dynamiques, nous nous intéressons à la variation de l'aimantation induite par la pompe en fonction du retard entre la pompe et la sonde. Dans la configuration polariseur analyseur croisés, l'évolution temporelle de l'intensité après l'analyseur est donnée par la relation:

$$\Delta I_{\mp H}(\tau) = \pm 2\alpha [I_0 \Delta \theta_{\mp M}(\tau) + \theta_{\mp M} \Delta I_0(\tau)] \quad \text{II.2.14}$$

Dans cette formule, il existe deux contributions, la première associée à la réponse dynamique de l'aimantation qui est représentée par la variation de la rotation Kerr $\Delta \theta_{\mp M}(\tau)$. La deuxième

contribution correspond à la réponse transitoire de la réflexion qui contient des informations sur la dynamique des charges des électrons. On peut négliger la deuxième partie pour des angles d'analyse très petits ($< 5^\circ$) et aussi dans les matériaux qui présentent une réponse dynamique électronique plus faible que celle des spins (comme c'est le cas pour le CoPt_3 : $\Delta I_0 / I_0 \approx 10^{-2} \ll \Delta \theta_M / \theta_M \sim 0.1$ à 1). La variation de l'aimantation normalisée par la composante statique est donnée par :

$$\frac{\Delta M}{M}(\tau) = \frac{\Delta \theta_M}{\theta_M}(\tau) = \frac{\Delta I_{+H} - \Delta I_{-H}}{(I_{+H} - I_{-H})}(\tau) \quad \text{II.2.15}$$

Sur la figure II.2.7 (à gauche) nous avons représenté les paraboles statiques et dynamiques mesurées pour un retard entre la pompe et la sonde $\tau = 500$ fs, nous observons que les paraboles dynamiques sont plus proches par rapport aux paraboles statiques. Ce rapprochement est la manifestation de la diminution de l'aimantation après l'absorption de l'impulsion pompe (désaimantation partielle). De plus, nous pouvons mesurer la variation temporelle de la composante polaire de l'aimantation pour un angle fixe $\alpha = 6^\circ$ comme le montre la figure II.2.7 à droite (Voir le chapitre III pour plus de détails sur la dynamique d'aimantation).

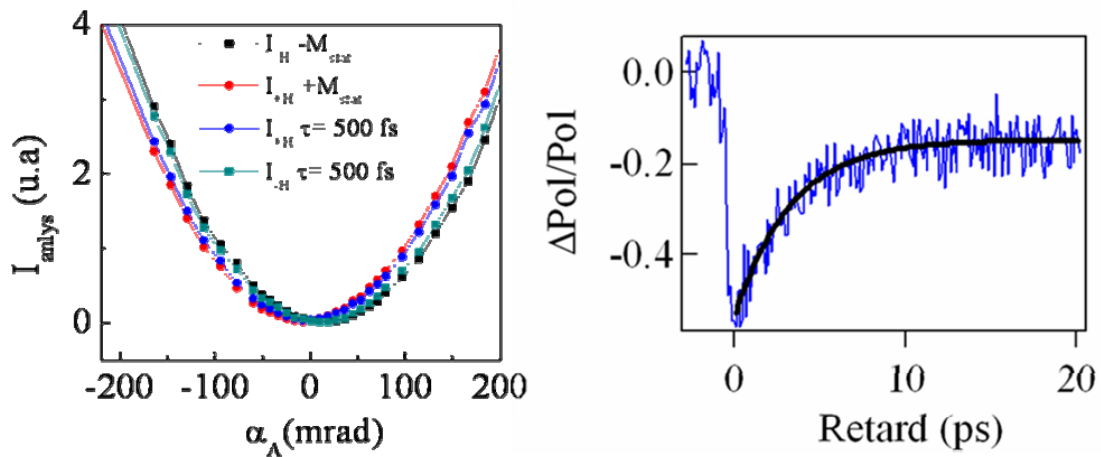


Figure II.2.7 : Paraboles statiques et dynamiques (à $\tau = 500$ fs) d'un plot individuel de CoPt_3 de diamètre $1\mu\text{m}$ (à gauche). A droite : la variation temporelle de l'aimantation pour le même plot pour un angle $\alpha = 6^\circ$. Dans les deux mesures, le champ magnétique est $H = \pm 3.5$ kOe.

De plus, notre configuration expérimentale nous donne la possibilité d'imager aussi l'état magnétique dynamique pour chaque retard fixe entre la pompe et la sonde dans le plan xy de l'échantillon. Dans ce cas le contraste d'image dynamique mesuré sur une surface $\Delta r_0 (= \Delta x_0 * \Delta y_0)$ est défini comme :

$$\Delta M(\Delta r_0, \tau) = \oint_r \Delta M(r, \tau) dr ; r = x, y \quad \text{II.2.16}$$

En déplaçant l'échantillon sur une surface $\Delta r_0 = 6.6 \times 3.3 \mu\text{m}^2$ pour un retard fixe entre la pompe et la sonde $\tau = 300$ fs, nous avons obtenu l'image magnéto-optique dynamique de deux plots ferromagnétiques (figure II.2.8). Le contraste correspond à une désaimantation partielle de 15% des deux plots pour une densité d'excitation laser de 1 mJ.cm^{-2} . Dans le troisième chapitre, nous utilisons cette technique d'imagerie pour étudier la dynamique spatio-temporelle d'aimantation d'un plot ferromagnétique individuel et les mécanismes de renversement induit optiquement dans ces plots ainsi que sur des films ferromagnétiques.

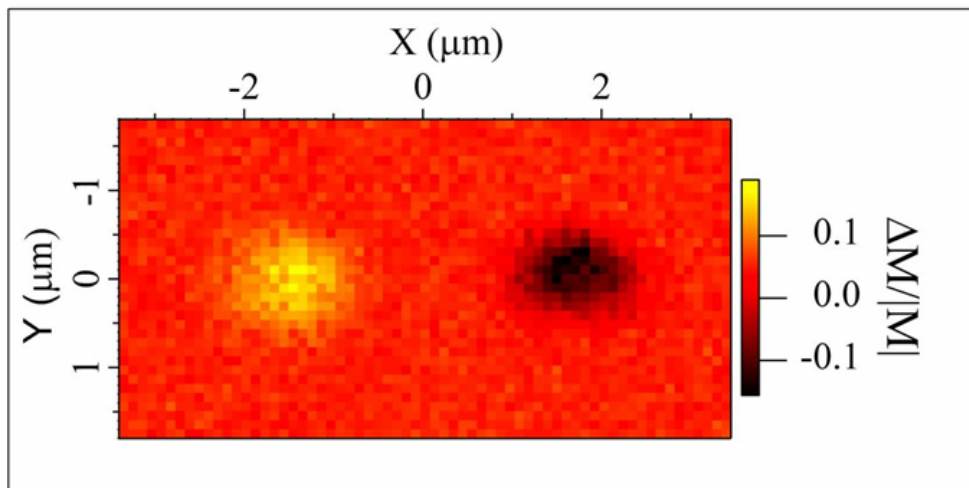


Figure II.2.8 : Image magnéto-optique dynamique pour un temps $\tau = 300$ fs de deux plots individuels de CoPt_3 de diamètre de $1 \mu\text{m}$ obtenue pour un angle d'analyse de 6° et pour une densité d'excitation laser de 1 mJ.cm^{-2} ($H = 0$). L'aimantation du plot jaune a été au préalable renversée par la pompe avec une densité d'excitation de 8 mJ.cm^{-2} et sous un bias inverse faible $H = -50$ Oe.

II.3. Elaboration et propriétés magnétiques des échantillons

Dans cette partie, nous allons décrire la méthode d'élaboration des échantillons que nous avons étudiés ainsi que leurs propriétés magnétiques. Ces échantillons ont été réalisés dans le cadre de plusieurs collaborations avec le Groupe d'Etude des Matériaux Métalliques de l'IPCMS pour les films et les plots ferromagnétiques, et l'Institut d'Électronique du Solide et des Systèmes de Strasbourg (INESS) pour les nanoparticules magnétiques.

II.3.1. Fabrication et étude magnétique statique de plots ferromagnétiques

Au cours de ce travail, nous avons étudiés la dynamique d'aimantation de deux types de plots ferromagnétiques fabriqués par lithographie électronique à partir des films d'alliages de CoPt_3 (15 nm d'épaisseur) et de Py (21 nm d'épaisseur). Ces plots ont été élaborés dans le cadre de la thèse de Julien Vénuat pour étudier la dynamique de renversement d'aimantation induite par des champs magnétiques pulsés [22]. Les films magnétiques ont été déposés sur des substrats de saphir (Al_2O_3) et de verre soit par épitaxie par jet moléculaire (MBE) pour l'alliage de CoPt_3 , soit par pulvérisation cathodique dans le cas du permalloy. La taille de ces plots varie de 0.2 μm à 1 μm pour le CoPt_3 et de 4 à 30 μm pour le permalloy.

La nanostructuration des plots est réalisée par lithographie électronique en deux étapes :

- La première étape consiste en la fabrication du masque de Titane. Il s'agit de déposer une couche de résine de PMMA/MAA (MAA : MethAcrylic Acid) recouverte par une autre couche de PMMA sur le film. La couche de PMMA est très sensible au faisceau d'électron. Ensuite, des zones bien déterminées de l'échantillon sont irradiées par un faisceau d'électrons et les zones dégradées de la résine sont dissoutes grâce à des solvants sélectifs. La prochaine étape c'est le dépôt de titane par épitaxie par jet moléculaire (MBE) afin de créer un masque qui protégera les zones non couvertes. Enfin, on procède à un lift-off c'est-à-dire que la résine est totalement dissoute avec l'acétone.
- La deuxième étape c'est la gravure des zones non protégés par le masque de titane avec un faisceau d'ions d'argon de faible énergie. Finalement, on obtient un réseau de plots de diamètre et d'espacement variables.

Sur la figure II.3.1, nous montrons l'image optique (réalisée avec le microscope confocal) d'un réseau de disques de CoPt_3 de diamètre de 1 μm espacés de 2 μm (Fig II.3.1a), et l'image AFM (microscope à force atomique) d'un réseau de plots carrés de permalloy de diamètre de 10 μm espacés de 4 μm (Fig II.3.1b).

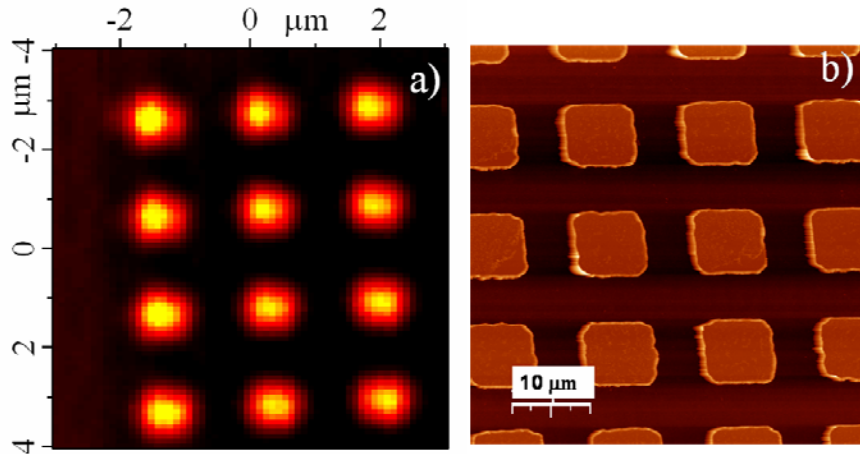


Figure II.3.1 : Les images optiques d'un réseau de plots de CoPt₃ ($D = 1 \mu\text{m}$) (a) et de plots carrés de Py ($L = 10 \mu\text{m}$) (b). Les images sont obtenues avec le microscope confocal (a) et le microscope à force atomique (b).

Les mesures magnétiques statiques d'une assemblée de plots ont été réalisées par la technique Kerr magnéto-optique en géométrie polaire pour les plots de CoPt₃ et longitudinale pour les plots de Py. Les plots de CoPt₃ sont ferromagnétiques avec une anisotropie magnétocristalline perpendiculaire élevée et un champ coercitif assez élevé, qui dépend beaucoup du diamètre des plots (figure II.3.2.a). Il varie de 2.7 kOe pour le film à 4.5 kOe pour les plots de diamètre de 500 nm. L'augmentation de H_c avec la diminution de la taille est probablement liée à la nucléation des domaines qui devient plus difficile surtout pour les plots de petites tailles [23].

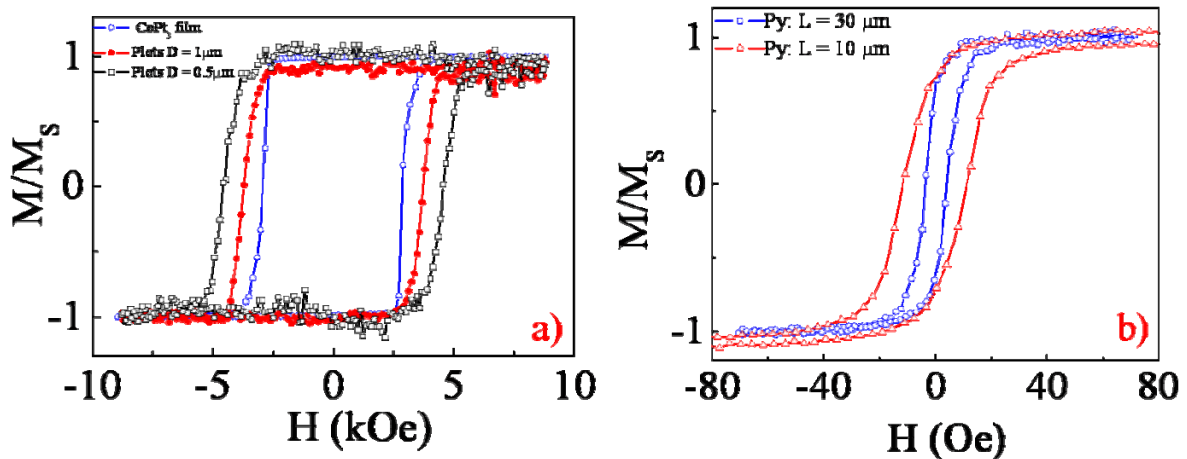


Figure II.3.2 : Variation du champ coercitif en fonction de la taille (diamètre) des plots. Cycles d'hystérèses normalisés des réseaux de plots de CoPt₃ mesurés par l'effet Kerr polaire (a) et de plots carrés de Py mesurés par l'effet Kerr longitudinal (b). Dans les deux cas il s'agit de mesures moyennes d'une assemblée de plots.

Les plots de Py sont aussi ferromagnétiques avec une faible anisotropie magnétique dans le plan et un champ coercitif assez faible, qui varie aussi avec la taille des plots. Il varie de 4 Oe pour les plots de côté $L = 30 \mu\text{m}$ à 12 Oe pour les plots avec $L = 10 \mu\text{m}$ (figure II.3.2.b).

II.3.2. Elaboration et étude magnétique de nanoparticules magnétiques

Comme indiqué dans l'introduction, nous nous sommes intéressés aussi à la dynamique ultrarapide d'aimantation de nanoparticules magnétiques de cobalt induite par des impulsions laser femtosecondes. Les particules sont élaborées par la technique d'implantation ionique dans des substrats de silice (SiO_2/Si) [24, 25] et de saphir (Al_2O_3). J'ai participé à l'élaboration de ces échantillons dans le cadre de mon stage de DEA [26]. Nous avons utilisé l'implanteur ionique (accélérateur électrostatique d'ions) au laboratoire d'INESS, qui est susceptible de fournir des faisceaux de différentes espèces d'ions (masse atomique < 130) dans des domaines d'énergie allant de 20 à 200 KeV. Les faisceaux d'ions des éléments choisis ont été obtenus à partir de la réaction de chloration de fils métalliques de Cobalt chauffés par induction puis par dissociation du chlorure. Les ions ainsi formés sont pré-accélérés dans un champ électrique de 20 keV dans le but de former un faisceau énergétique. Ce faisceau ionique traverse ensuite un champ magnétique intense perpendiculaire au faisceau qui sert de filtre de masse et permet ainsi de sélectionner, selon l'angle de déviation et la valeur du champ magnétique, un seul isotope. Le vide dans la chambre d'implantation est typiquement de 10^{-6} Torr. Deux substrats de saphir (S_1, S_2) et un substrat de silice (S_3) ont été implantés avec une énergie d'implantation de 160 keV et à une température de 873 K (à chaud), avec différentes doses du faisceau d'ions : S_1, S_2 à une dose de 10^{17} at.cm⁻² et S_3 à une dose de $3 \cdot 10^{16}$ at.cm⁻². Les particules de cobalt implantées dans la silice (S_3) ont une phase cristalline cfc avec un diamètre moyen de $10 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$ (figure II.3.3a) et une profondeur de pénétration de 83 nm (à partir des mesures de spectroscopie RBS: Rutherford Back Scattering) [24]. Pour les nanoparticules de cobalt implantées dans le saphir, nous n'avons pas pu réaliser des images de microscopie électronique à transmission (MET), due à la rigidité du saphir empêchant de réaliser des coupes transverses adaptées au MET.

Néanmoins, à l'aide des mesures magnétiques (voir le paragraphe suivant) et de simulations numériques Monte-Carlo (SRIM), nous avons déterminé un diamètre moyen de 4 nm pour S_1 et inférieur à 2.5 nm pour S_2 et un profil de concentration gaussien avec une profondeur de pénétration de 73 nm pour S_1 (figure II.3.3b).

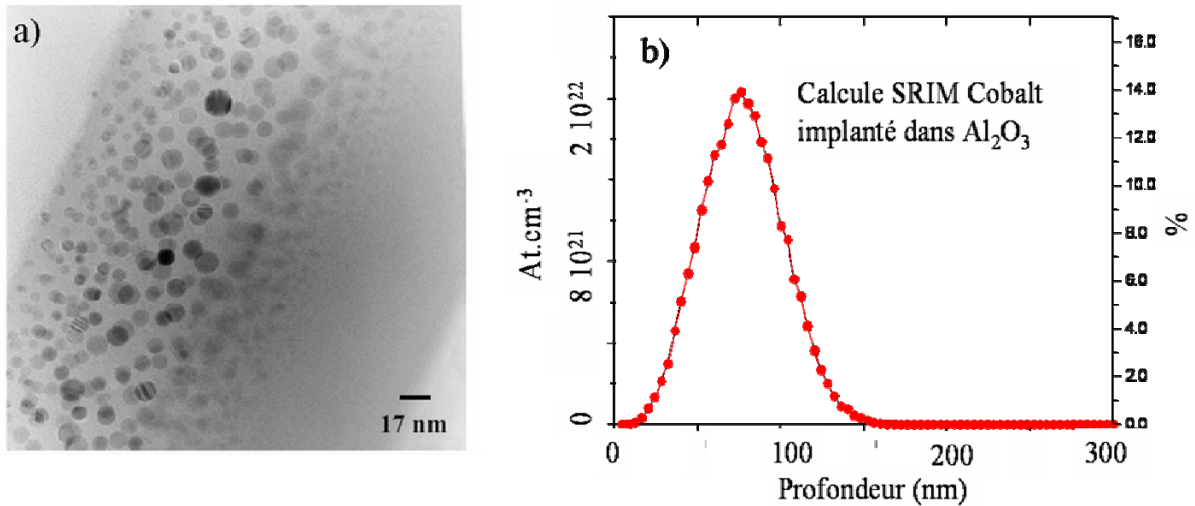


Figure II.3.3 a) : Image par microscopie électronique à transmission (MET) de particules de Co implantées dans un substrat de SiO₂/Si avec une dose de 10¹⁷ at.cm⁻² et une énergie d'implantation de 160 keV ; La température d'implantation est de 873 K: La taille moyenne est $\langle D \rangle = 10$ nm. b) Profil de concentration calculé par SRIM des particules de Cobalt implantées dans un substrat d'Al₂O₃ (avec les mêmes conditions).

Les propriétés magnétiques des nanoparticules ont été mesurées par la magnétométrie SQUID. D'après les cycles d'aimantation normalisés et mesurés avec le champ perpendiculaire par rapport au plan du substrat (figure II.3.4), les particules de cobalt implantées dans la silice ont un comportement ferromagnétique à température ambiante sous un champ coercitif de 105 Oe et une aimantation de saturation $M_s = 1.15$ emu.cm⁻². Cependant, les particules implantées dans le saphir (S₁, S₂) possèdent un comportement superparamagnétique ($H_c = 0$), dû à la faible taille de particules par rapport à la taille de transition superparamagnétique-ferromagnétiques $D_{S-F} = 5.2$ nm (pour du Co de structure hcp) [25] ; $M_s(S_1) = 9.3$ emu.cm⁻² < $M_s(S_2) = 1.46$ emu.cm⁻². Un autre paramètre très important à connaître est la présence (et la direction) de l'anisotrope magnétique de ces particules, qui jouent un rôle très important sur la réorientation initiale de l'aimantation après l'excitation optique par des impulsions laser (voir chapitre IV). Pour cela, nous avons mesuré les cycles d'aimantation dans les deux directions parallèle et perpendiculaire à la surface implantée de substrat à T = 300 K (pour S₃) et à T = 5 K (pour S₁, S₂). Les mesures montrent une anisotropie magnétique dans le plan dans le cas des particules ferromagnétiques (S₃) et une anisotropie perpendiculaire pour les particules superparamagnétiques (S₁, S₂).

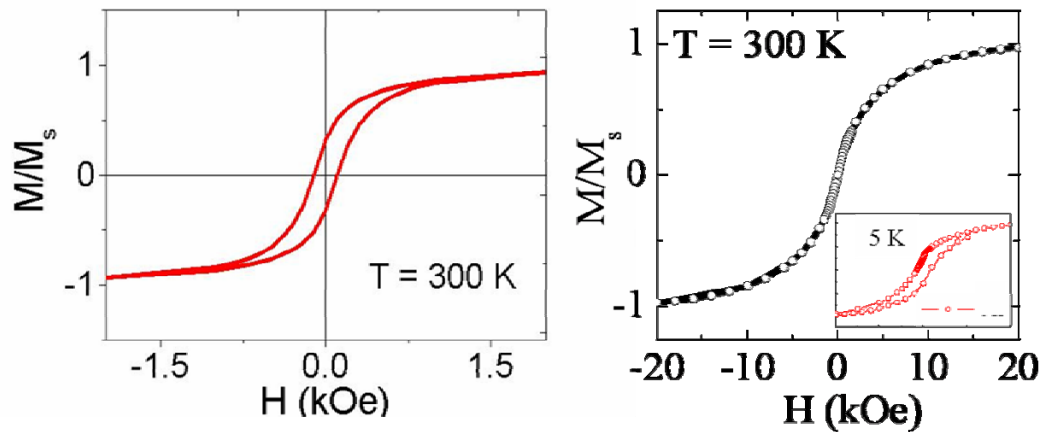


Figure II.3.4 : Cycles d'hystérèse normalisés mesurés à température ambiante (300 K) pour les nanoparticules implantées dans un substrat de SiO_2/Si (à gauche), Al_2O_3 (à droite), et à basse température (5 K) dans le cas des particules implantées dans le saphir.

Pour déterminer la température de blocage T_B (température de transition superparamagnétique-ferromagnétique) dans les particules implantées dans le saphir, nous avons réalisé des mesures ZFC–FC (Zero Field Cooling- Field Cooling) en présence d'un faible champ magnétique ~ 20 Oe. Comme montre la figure II.3.5, une augmentation progressive de l'aimantation avec la température, due à l'augmentation de l'énergie d'activation thermique $k_B T$, permet aux moments magnétiques de la particule de s'aligner selon le champ magnétique appliqué. Lorsque l'énergie thermique devient comparable à l'énergie d'anisotropie magnétique KV , la courbe ZFC présente un maximum à une température de 80 K pour l'échantillon S_1 . La détermination de la température de blocage permet de remonter à la taille moyenne des particules de nanoparticules en utilisant la formule suivante [27] :

$$D = \sqrt[3]{\frac{150k_B T}{\pi K}} \quad \text{II.3.1}$$

T est la température de blocage, k_B la constante de Boltzmann et K est la constante d'anisotropie magnétique. En utilisant la valeur de la constante de l'anisotropie magnétique de l'échantillon S_1 : $K = 0.57 \times 10^5 \text{ J.m}^{-3}$ (mesurée selon la référence [24]) et la valeur de la température de blocage mesurée (80 K), nous obtenons un diamètre moyen de particule ~ 4 nm.

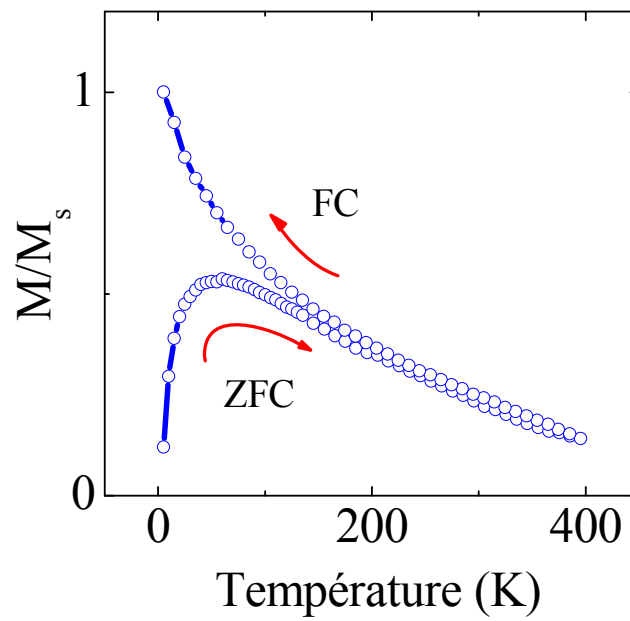


Figure II.3.5 : Mesures ZFC-FC (Zero Field Cooling Field Cooling) pour les nanoparticules de cobalt implantées dans le saphir (S_1) : Variation de l'aimantation en fonction de la température en présence d'un petit champ de ~ 20 Oe.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit les techniques femtosecondes utilisées dans notre étude expérimentale, ainsi que les différentes approches expérimentales permettant d'accéder à la dynamique ultrarapide d'aimantation. Dans la première partie, nous avons décrit les sources lasers utilisées dans nos mesures, en nous focalisant sur les différentes conditions nécessaires pour générer des impulsions laser femtosecondes relativement intenses permettant d'étudier les phénomènes optiques non-linéaires. Ensuite, nous avons détaillé la technique stroboscopique pompe sonde résolue en temps et les techniques magnéto-optiques Kerr et Faraday, ainsi que les mécanismes physiques impliqués qui nous permettent d'obtenir des informations sur la dynamique des charges et des spins dans les matériaux ferromagnétiques. Dans la deuxième partie, nous avons détaillé le principe de fonctionnement du microscope magnéto-optique confocal soit en régime statique (mesures polarimétriques), soit en régime dynamique (mesures pompe-sonde polarimétriques). Ce microscope a été développé pour accéder à la dynamique d'aimantation des plots ferromagnétiques avec une résolution spatiale de 300 nm et une résolution temporelle de 150 fs. Enfin, dans la dernière partie, nous avons décrit les techniques d'élaboration des différents types d'échantillons : la lithographie électronique pour les plots ferromagnétiques, l'implantation ionique pour les nanoparticules magnétiques. Nous avons décrit les propriétés magnétiques de ces nanostructures en réalisant des mesures magnétométriques de SQUID et de MOKE. Ces deux types de nanostructures ont été imagées soit optiquement par la microscopie optique (confocale), soit par la microscopie à force atomique (AFM) ou bien encore par microscopie électronique à transmission (MET).

Références bibliographiques du chapitre II

- [1] C. Rullière. « Femtosecond Laser Pulses, Principles and experiments ». Springer Verlag, 2nd ed. (2004).
- [2] Y.R. Shen. « The Principles of Nonlinear Optics ». Wiley-Interscience, John Wiley and Sons, 1st edition (1984).
- [3] R. R. Alfano. « The Supercontinuum Laser Source ». Springer Verlag (1989).
- [4] « Sciences aux temps ultracourts ». Académie des sciences (2002).
- [5] M. Joffre. Cours de DEA : « Propagation linéaire et non-linéaire d'une impulsion ultra-Brève ». Ecole polytechnique Palaiseau (1993-98).
- [6] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. Lett. **76**, 4250 (1996).
- [7] H. L. Fragnito, J.-Y. Bigot, P. C. Becker, C. V. Shank. Chem. Phys. Lett. **160**, 101 (1989)
- [8] F. Sanchez. Optique non- linéaire. Ellipses /edition marketing S.A (1999).
- [9] R. Rosei, D. W. Lynch. Phys. Rev. B. **5**, 3883 (1972).
- [10] A.K. Zvedin and V.A. Kotov. « Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials ». Institute of Physics Publishing (1997).
- [11] P. Bruno, Y. Suzuki, and C. Chappert. Phys. Rev. B. **53** 214 (1996).
- [12] Argyres P.N., Phys. Rev. **97**, 334 (1955).
- [13] J.-Y. Bigot. C. R. Acad. Sci., Ser IV: Phys., Astrophys. **2**, 1483 (2001).
- [14] L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. Lett. **89**, 017401 (2002).
- [15] B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge. Phys. Rev. Lett. **85**, 844 (2000).
- [16] M. Minsky. « Microscopy apparatus United States ». Patent 3013467 (1961).
- [17] Handbook of Biological confocal microscopy. Plenum press, 2nd ed. (1995).
- [18] A. Benabbas. « Dynamique femtoseconde de nanostructures métalliques ». Thèse de doctorat ULP, Strasbourg I (2004).
- [19] P. Didier. « Propriétés optiques de marqueurs fluorescents d'intérêt biologique en interaction avec leur environnement : étude par spectroscopie femtoseconde ». Thèse de doctorat ULP, Strasbourg I (2004).
- [20] J.-Y. Bigot, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and P. N. Saeta. Phys. Rev. Lett **93**, 077401 (2004).
- [21] R.M. A. Azzam and N. Bashara. « Ellipsometry and Polarized Light ». North-Holland,

- Amsterdam (1977).
- [22] J. Vénuat. « Etude statique et dynamique du renversement d'aimantation de petits objets d'anisotropie perpendiculaire ». Thèse de doctorat ULP, Strasbourg I (2006).
- [23] J.-P. Jamet, S. Lemerle, P. Meyer, J. Ferré, B. Bartenlian, N. Bardou, C. Chappert, P. Veillet, F. Rousseaux, D. Decanini, and H. Launois. *Phys. Rev. B* **57**, 14320 (1998).
- [24] Céline D'Orleans. «Elaboration par implantation ionique de nanoparticules de cobalt dans la silice et modifications de leurs propriétés sous irradiation d'électrons et d'ions de haute énergie ». Thèse de doctorat ULP, Strasbourg (2003).
- [25] C. D'Orléans, J. Stoquert, C. Estournès, C. Cerruti, J. J.Grob, J. L. Guille, F. Haas, D. Muller, and M. Richard- Plouet. *Phys. Rev. B* **67**, 220101 (2003).
- [26] A. Laraoui. « Elaboration, caractérisation et étude de la dynamique femtoseconde de l'aimantation des nanoparticules de cobalt implantées dans des substrats de Saphir ». Stage de DEA, UHA Mulhouse - ULP Strasbourg (2003).
- [27] C. P. Bean, I. S. Jacobs. *Appl. Phys.* **25**, 302 (1953).

Chapitre III : Etude spatiale et temporelle de la dynamique d'aimantation de plots et films ferromagnétiques

Nous utilisons le microscope magnéto-optique confocal décrit dans le chapitre II pour étudier la dynamique et le renversement d'aimantation dans des plots et des films ferromagnétiques avec une résolution spatiale de 300 nm et une résolution temporelle de 150 fs. Ce chapitre est divisé en deux grandes parties. Dans la première, nous présentons les résultats concernant la dynamique d'aimantation dans des plots ferromagnétiques individuels de CoPt₃ et de Permalloy (Ni_{0,8}Fe_{0,2}). Nous explorons l'influence de la densité d'excitation du laser (pompe) sur le temps de relaxation spin-réseau et sur la période de précession de l'aimantation. Enfin, nous utilisons le mode d'imagerie résolue en temps du microscope pour étudier la relaxation spatio-temporelle de l'aimantation d'un plot unique.

Dans la deuxième partie, nous présentons une méthode originale d'imagerie différentielle permettant d'étudier le renversement de l'aimantation d'un plot individuel de CoPt. Cette technique est également utilisée à la fois pour l'écriture et pour la lecture de domaines magnétiques submicroniques dans des films ferromagnétiques de CoPt (alliages et multicouches). L'écriture est réalisée par le renversement d'un domaine dans la partie excitée du film dû à l'augmentation de la température des spins induite par les impulsions laser. Nous discutons l'effet sur le renversement d'aimantation des différents paramètres : intensité du laser, amplitude du champ magnétique appliqué et la nature des substrats sur lesquels sont déposés les films ferromagnétiques. Pour comprendre les mécanismes de la désaimantation spatiale induite par laser sur les films, nous avons réalisé des mesures complémentaires avec le microscope à force magnétique (MFM) sur deux types de films : Alliage de CoPt₃ déposé sur saphir, et multicouches de CoPt déposées sur verre.

III.1. Dynamique d'aimantation de plots ferromagnétiques individuels

III.1.1. Introduction

Les plots ferromagnétiques de dimensions latérales submicroniques constituent des systèmes modèles pour le stockage de l'information sur des supports magnétiques où le bit d'information est matérialisé par la direction de l'aimantation d'un plot magnétique [1]. L'un des objectifs que nous avons essayé de réaliser est d'étudier la dynamique de renversement d'aimantation de plots ferromagnétiques de CoPt_3 possédant une anisotropie magnétique perpendiculaire élevée, avec des impulsions de champ magnétique synchronisées avec des impulsions laser femtosecondes. Dans le cadre de la thèse de Julien Vénuat [2] réalisée dans le Groupe d'Etudes des Matériaux Magnétiques des impulsions nanosecondes de champ magnétique ont été délivrées à un taux de répétition assez faible (quelques centaines de Hertz) par un générateur de courant dans une micro-bobine fabriquée par lithographie électronique autour d'un réseau de plots. Cependant, des premiers essais réalisés à un taux de répétition élevé comparable avec le taux de répétition du laser femtoseconde (5 kHz) montrent que les bobines s'échauffent et finissent par céder. Nous nous sommes donc concentrés sur les aspects dynamiques de l'aimantation en effectuant les expériences optiques pompe sonde avec le microscope magnéto-optique confocal. Cette approche expérimentale offre des nouvelles voies de contrôle de l'aimantation (renversement optique) dans la gamme de 100 GHz (2^{ième} partie du chapitre). Dans cette partie, nous discutons et présentons les résultats de mesures de la dynamique d'aimantation dans des plots ferromagnétiques individuels de CoPt_3 et de permalloy de diamètres variables (de 0.5 μm à 30 μm). Notre objectif était avant tout de montrer que l'étude des processus dynamiques conduisant à une modification d'aimantation ultra-rapide (désaimantation suivie de précession) est réalisable en optique femtoseconde avec une très grande fiabilité.

III.1.2. Dynamique d'aimantation d'un plot ferromagnétique individuel

Pour étudier la dynamique d'aimantation d'un plot submicronique individuel, nous avons utilisé le microscope magnéto-optique confocal résolu spatialement (300 nm) et temporellement (150 fs). La variation temporelle de la composante polaire de l'aimantation est obtenue via une analyse polarimétrique Kerr du faisceau sonde (400 nm) en fonction du retard entre la pompe (800 nm) et la sonde et en présence d'un champ magnétique statique d'amplitude variable appliqué perpendiculairement au plan de l'échantillon.

La figure III.1 présente la variation temporelle de l'aimantation différentielle ($\Delta M/M(t)$) d'un plot individuel de CoPt_3 de diamètre de $1 \mu\text{m}$ aux temps courts ($t < 20 \text{ ps}$) (a, c) et aux temps longs ($t < 1 \text{ ns}$) (b, d) pour deux intensités laser $I_{P1} = 4 \text{ mJ.cm}^{-4}$ (a, b) et $I_{P2} = 8 \text{ mJ.cm}^{-4}$ (c, d), pour un champ magnétique de 4 kOe suffisant pour saturer le plot. Initialement, les signaux diminuent durant les premières centaines de femtosecondes ($\sim 150 \text{ fs}$), ce qui correspond à une désaimantation induite par le laser. Cette désaimantation qui se produit après l'étape de la thermalisation des électrons ($\sim 60 \text{ fs}$ dans le cas d'un film de CoPt_3 [3]), est suivie par deux étapes de relaxation :

- La première étape (ré-aimantation partielle) consiste en un refroidissement des spins par échange d'énergie entre les électrons et le réseau (interactions électron-phonon) avec un temps caractéristique $\tau_{e-p} = 2.5 \text{ ps}$ pour I_{P1} et 5.2 ps pour I_{P2} . Comme nous le voyons sur la figure III.2, le temps de relaxation spin (électron)-réseau τ_{e-p} varie linéairement en fonction de l'intensité laser. Cette variation importante est expliquée par la dépendance de la chaleur spécifique électronique C_e et des spins C_s avec la température électronique. Notons que pour les fortes intensités ($\geq 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$), la chaleur spécifique de spins est sensée diverger car la température électronique est proche de la température de Curie (T_c). Cela est confirmé par le fait que l'on obtient une désaimantation presque complète (fig. III.1.c)).

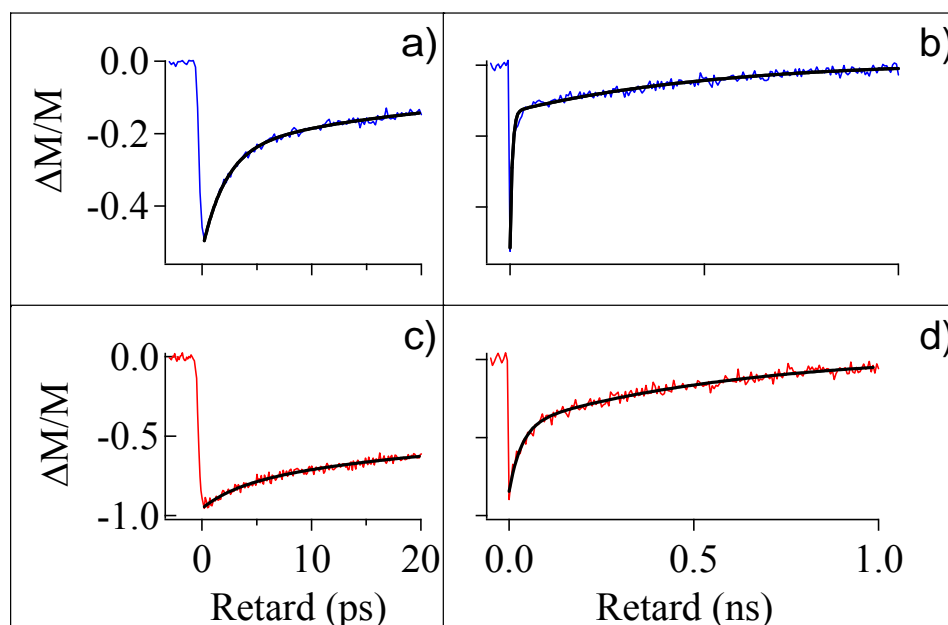


Figure III.1 : Evolution temporelle de la composante polaire de l'aimantation d'un plot individuel de CoPt_3 ($D = 1 \mu\text{m}$) aux temps courts (a, c) et longs (b, d) pour deux densités d'excitation : $I_p = 4 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (courbes en bleu), $I_p = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (courbes en rouge).

- La deuxième étape de relaxation est la reconstitution du module de l'aimantation via la diffusion de chaleur vers l'environnement (région non excitée du plot et substrat) avec un temps de diffusion τ_{diff} de 630 ps pour la Fig. II.1.b) et 530 ps pour la Fig. II.1.d).

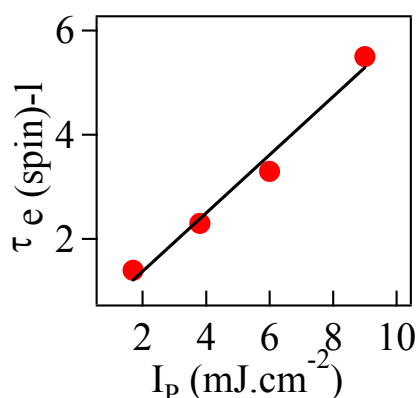


Figure III.2 : Variation du temps de relaxation spin (électron)-réseau en fonction de l'intensité laser.

Dans le cas des plots de plus petits diamètres ($< 0.5 \mu\text{m}$), il est difficile de distinguer s'il y a une variation de la dynamique d'aimantation avec la diminution de diamètre du plot. Comme nous avons vu dans la dernière section du chapitre II, ces plots possèdent une anisotropie perpendiculaire et un champ coercitif très élevés et par conséquent pour sortir l'aimantation de dehors de l'axe z (\perp), il faut appliquer un champ magnétique très élevé dans le plan ($\sim 20 \text{ kOe} \gg$ au champ délivré par nos aimants permanents $\sim 4 \text{ kOe}$). Pour étudier la dynamique de précession nous nous sommes plutôt intéressés à la dynamique d'aimantation dans des plots individuels de permalloy de différentes dimensions. Ces plots possèdent une aimantation planaire et un champ coercitif très faible (chapitre II).

Nous avons étudié la variation temporelle de l'aimantation différentielle dans des plots carrés de permalloy de largeur de $10 \mu\text{m}$ et de $30 \mu\text{m}$. Sur la figure III.3, nous présentons la dynamique de la composante polaire de l'aimantation d'un plot carré individuel de largeur $30 \mu\text{m}$ aux temps courts (a) et aux temps longs (b) pour une intensité laser de $8 \text{ mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$. Juste après l'absorption de la pompe, une désaimantation presque totale (100 %) se produit, suivie par une ré-aimantation partielle via les mécanismes d'échange d'énergie entre les électrons (spins) et le réseau avec un temps de relaxation $\tau_{e-l} = 10 \text{ ps}$. Aux temps longs ($> 20 \text{ ps}$), l'aimantation entreprend un mouvement de précession amortie autour du champ effectif résultant du champ appliqué, du champ d'échange et du champ d'anisotropie (magnéto-cristalline et de forme). La fréquence de précession est de 4.3 GHz et le temps d'amortissement η est de 954 ps .

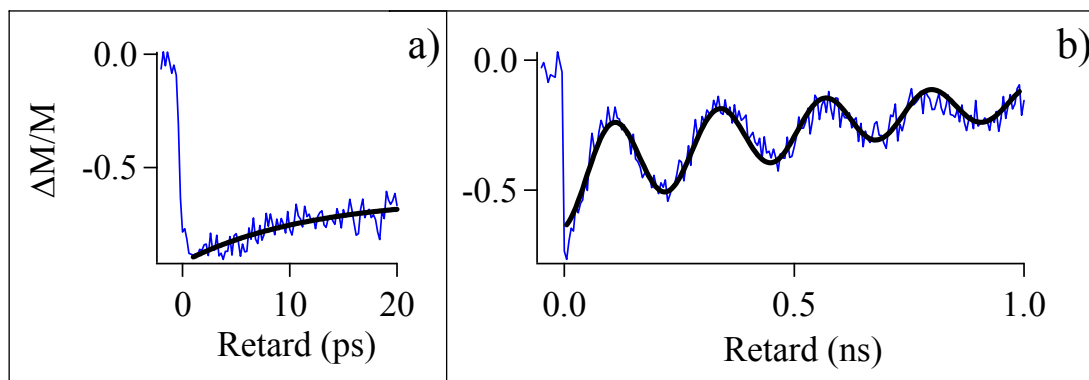


Figure III.3 : Evolution temporelle de la composante polaire de l'aimantation d'un plot individuel de Permalloy ($L = 30 \mu\text{m}$) aux temps courts a) et aux temps longs b) pour une densité d'excitation $I_p = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$.

Initialement le mouvement de précession est conduit par une variation temporelle du champ effectif via l'anisotropie de forme qui dépend elle-même du module de l'aimantation. Comme le montre la figure III.4.a), avant l'excitation optique ($t < 0$), le champ effectif est dirigé selon un angle de 23° par rapport à l'axe OY contenu dans le plan du film pour un champ appliqué selon l'axe OZ d'une amplitude de 4 kOe. Initialement, avec l'absorption des impulsions laser pompe ($t \sim 150 \text{ fs}$), le module de l'aimantation et du champ d'anisotropie magnétique (de forme H_{demag} et magnéto-cristalline H_{anis}) diminuent avec l'augmentation de la température électronique, conduisant à une réorientation du champ effectif par rapport à son état initial.

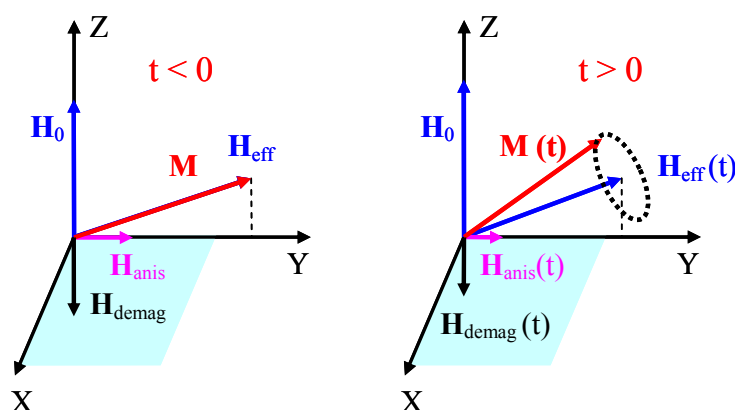


Figure III.4 : Configuration d'aimantation avant ($t < 0$) et après ($t > 0$) excitation optique. À $t \sim 150 \text{ fs}$ le module de l'aimantation et du champ d'anisotropie magnétique (H_{demag} et H_{anis}) diminuent avec l'augmentation de la température électronique, conduisant à une réorientation du champ effectif par rapport à son état initial. Durant l'étape de relaxation d'énergie ($t \gg 150 \text{ fs}$), l'aimantation précesse et s'aligne de nouveau avec la direction du champ effectif qui reprend sa direction initiale.

Durant l'étape de refroidissement (relaxation d'énergie), l'aimantation précesse et s'aligne de nouveau avec la direction du champ effectif qui reprend sa direction initiale. Nous avons étudié aussi l'effet de l'intensité laser (pompe) sur la fréquence et l'amplitude de précession. Sur la figure III.5.a), nous voyons clairement que lorsque l'on diminue l'intensité d'un facteur 2 (de 8 à 4 mJ.cm⁻²), l'amplitude de la précession diminue d'un facteur 3 et la fréquence de précession varie de 4.3 GHz ps à 5.3 GHz. Nous attribuons cet effet à la diminution de l'anisotropie de forme avec l'augmentation de la température électronique ($H_d(t) = -[N].M(T_e(t))$). Par conséquent, il en résulte une réduction du module de champ effectif, conduisant à une diminution de la fréquence de précession (figure III.5b) [4].

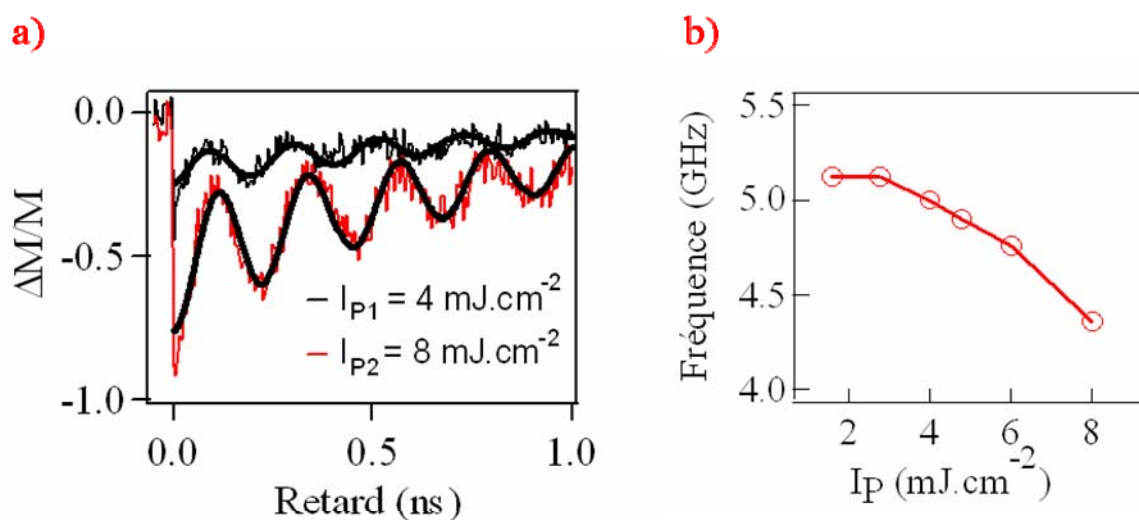


Figure III.5 : a) Evolution temporelle de la composante polaire de l'aimantation d'un plot individuel de Permalloy ($L = 30 \mu\text{m}$) pour deux densités d'excitation : $I_p = 4 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (noir), $I_p = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (rouge). b) Variation de la fréquence de précession en fonction de la densité d'excitation.

Soulignons, que dans le cas du permalloy, l'anisotropie magnétocristalline est assez faible pour donner une contribution importante dans la dynamique d'aimantation. Au contraire dans le cas d'un film de Co (16 nm)/Al₂O₃, la contribution des deux anisotropies (magnétocristalline et de forme) peut induire une augmentation de la fréquence de précession avec l'augmentation de l'intensité du laser (température électronique) [5]. Une autre remarque importante à signaler, c'est la présence d'une distribution de fréquences de précession autour du pic central dans les transformées de Fourier (FFT) comme le montre la figure III.6. Cette distribution est due à la dépendance temporelle de module de l'aimantation. Dans ce cas les équations de Bloch sont les plus appropriées pour modéliser les mesures de la résonance

ferromagnétique induite optiquement [6], ce qui n'est pas le cas avec les équations de Landau Lifshitz Gilbert pour lesquelles le module d'aimantation est supposé constant.

$$\frac{dM}{dt} = \gamma M \times H_{\text{eff}}(T_e(t), T_1(t), M(t)) - \left(\frac{dM}{dt} \right)_{\text{relax}} \quad \text{III.1}$$

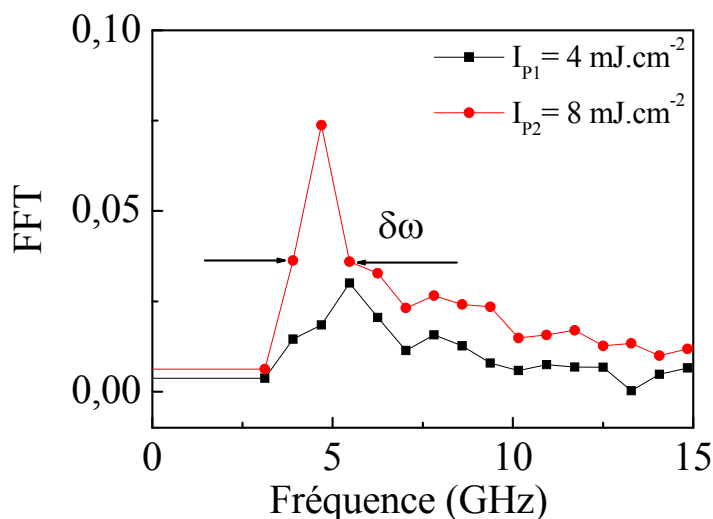


Figure III.6: Transformées de Fourier des mesures de la figure III.5.a).

Dans le cas d'un plot carré individuel de permalloy de largeur de $10 \mu\text{m}$, la dynamique d'aimantation est assez semblable à celle d'un plot de largeur $L = 30 \mu\text{m}$ dans les mêmes conditions de mesures (même intensité du laser et même champ magnétique). Cependant, il existe une différence dans le temps d'amortissement η . Comme le montre la figure III.7, une désaimantation ultrarapide pendant l'absorption de l'impulsion pompe, suivie par une précession et une atténuation de l'aimantation autour du champ effectif. La fréquence de précession est de 4.76 GHz pour une intensité laser de 6 mJ.cm^{-2} et le temps d'amortissement est de 654 ps . Il semble donc que des effets de taille commencent à se manifester sur l'amortissement η même pour des dimensions de plots assez grands. Notons qu'ils restent malgré tout assez faibles et que c'est notre technique de mesure qui permet ici de bien les mettre en évidence. Cela est d'ailleurs confirmé par le fait que les mesures statiques des cycles d'hystérèses montrent bien que le champ coercitif augmente un peu lorsque la taille diminue. Cette augmentation est liée en principe soit à l'augmentation de l'anisotropie magnétique avec la diminution de diamètre de plot [7] soit à l'inhomogénéité de surface introduite durant la fabrication des plots par lithographie électronique, conduisant probablement à l'augmentation de l'amortissement observé dans nos mesures.

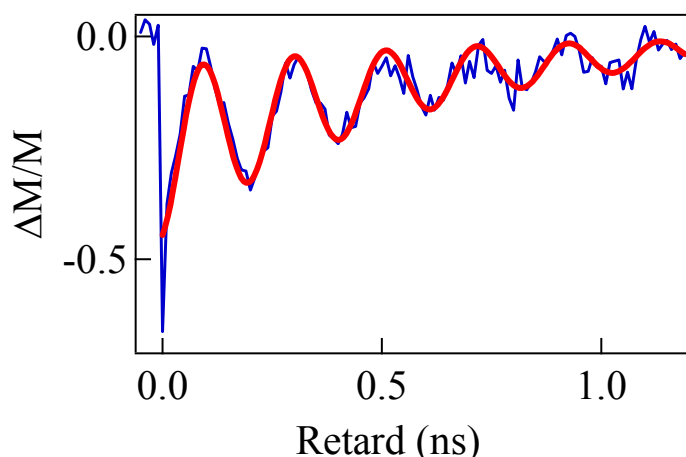


Figure III.7 : Evolution temporelle de la composante polaire de l'aimantation d'un plot individuel de Permalloy ($L = 10 \mu\text{m}$). $\eta = 655 \text{ ps} < 954 \text{ ps}$ pour le plot de diamètre de $L = 30 \mu\text{m}$.

En utilisant les valeurs mesurées de η , l'aimantation de saturation $M_S = 7.6 \cdot 10^5 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$ (mesurée selon la référence [8]), et la valeur du facteur gyromagnétique pour le permalloy $\gamma_0 = 2.22 \cdot 10^5 \text{ m}\cdot\text{A}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$ nous a permis de calculer une valeur d'amortissement $\alpha = \frac{2}{M_S \eta \gamma_0}$ (valable dans le cas des petites fréquences de précession [9]) de 0.012 pour le plot de largeur $L = 30 \mu\text{m}$ et de 0.018 pour le plot de largeur $L = 10 \mu\text{m}$.

III.1.3. Dynamique de réflexion d'un plot individuel

Intéressons-nous maintenant à l'évolution temporelle de la réflexion différentielle $\Delta R/R(t)$ dans les plots de CoPt_3 et de Py ($\text{Ni}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}$). Sur la figure III.8, nous présentons la variation différentielle de la réflectivité aux temps courts et longs (en haut de chaque figure) dans un plot individuel de CoPt_3 de diamètre de $1 \mu\text{m}$ (fig. III.8.a) et de Py de largeur de $10 \mu\text{m}$ (fig. III.8.b) pour une densité d'excitation de $4 \text{ mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$. Dans les deux types de plots, on observe la diminution du signal avec l'absorption de l'impulsion pompe, qui est liée à l'excitation des électrons et à leur thermalisation à une température élevée ($\sim 180 \text{ fs}$). Pendant et après la relaxation des électrons vers le réseau, un comportement oscillatoire apparaît avec une période de 15 ps pour le plot de CoPt_3 et 10 ps pour le plot de permalloy. Nous relierons cette réponse aux ondes acoustiques excitées perpendiculairement à la surface du plot [10, 11]. Phénoménologiquement, l'échauffement du réseau entraîne une dilatation de l'épaisseur

du plot. Il s'agit d'un processus cohérent qui est rapidement amorti lorsque la chaleur se dissipe dans l'environnement (substrat). Le dilatation (déplacement de surface) du film présente des oscillations d'une période de $2d/v_1$: d est l'épaisseur du film, v_1 est la vitesse du son dans le matériau [12]. Nous avons vérifié la validité de cette hypothèse dans plusieurs films de nickel, permalloy et CoPt. Dans le cas du permalloy, la période varie de 9 ps à 20 ps pour une épaisseur d qui varie de 21 nm à 50 nm. A partir de ces mesures nous pouvons calculer directement la vitesse de propagation des ondes acoustiques dans le réseau de Permalloy : $V_1(\text{Py}) = 4.5 \text{ km.s}^{-1}$.

Aux temps plus longs, la dynamique de la réflectivité correspond à la diffusion latérale de la chaleur dans le métal (région non excitée) et un transfert de chaleur perpendiculaire au substrat (Al_2O_3 pour CoPt_3 , verre pour Py).

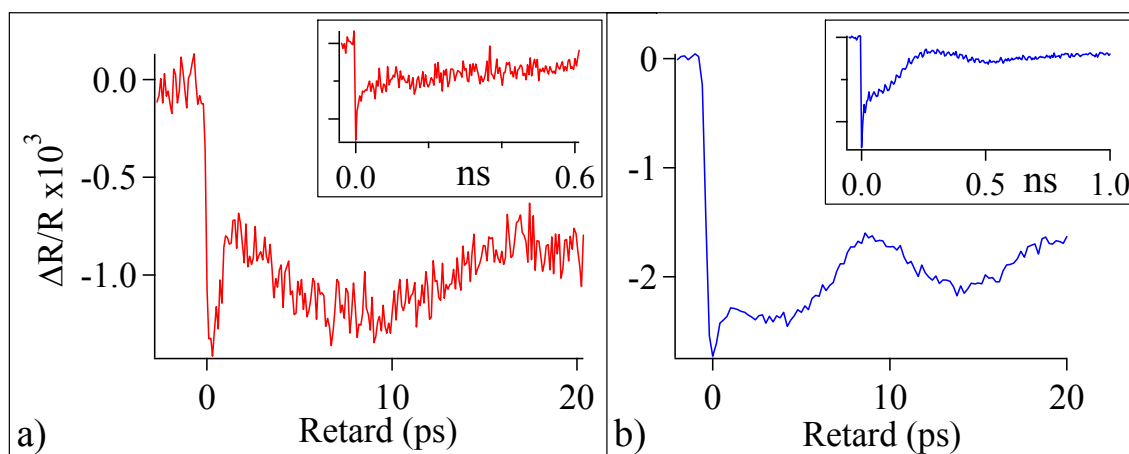


Figure III.8 : Evolution temporelle de la réflexion aux temps courts (< 20 ps) d'un plot individuel de CoPt_3 ($D = 1 \mu\text{m}$) (a), de Permalloy ($L = 10 \mu\text{m}$) (b), et aux temps longs (en haut dans chaque figure). La densité d'excitation de la pompe $I_p = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$. On y met en évidence le mouvement cohérent associé aux ondes acoustiques se propageant perpendiculairement au plot.

III.1.4. Dynamique spatio-temporelle d'un plot unique

Notre configuration expérimentale nous donne également la possibilité d'imager l'état magnétique statique et dynamique des plots individuels en déplaçant l'échantillon à l'aide d'une platine piézo-électrique (voir chapitre II). Cette approche expérimentale s'avère très intéressante pour obtenir des informations sur la structure spatiale des domaines magnétiques (en régime statique) et les mécanismes de relaxation spatio-temporelle de l'aimantation après l'excitation optique (en régime dynamique). La figure III.9 présente une comparaison entre

l'image magnéto-optique statique (à gauche) et l'image de microscope à force magnétique (à droite) de quatre plots de CoPt₃ désaimantés à -2.7 kOe après saturation avec un champ magnétique d'amplitude de +13 kOe. Nous observons un bon accord entre les deux images avec une structure de domaine qui naturellement apparaît plus clairement dans l'image de MFM (résolution ~100 nm).

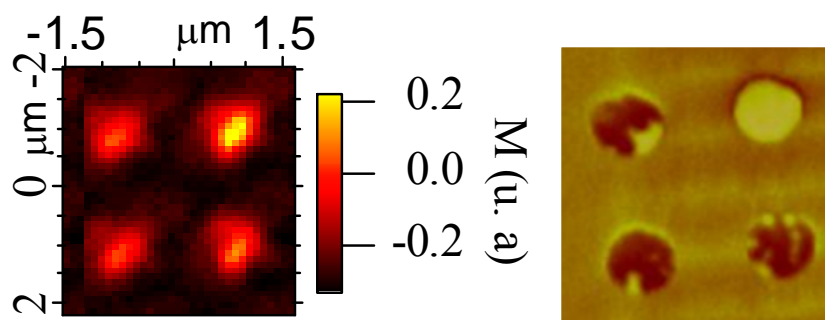


Figure III. 9 : Image magnéto-optique de 4 plots de CoPt₃ ($D = 1 \mu\text{m}$) désaimantés perpendiculairement par balayage du champ magnétique de + 13 kOe à -2.7 kOe (à gauche). L'image magnétique obtenue avec le microscope à force magnétique (MFM) des mêmes plots (à droite).

La variation spatio-temporelle de l'aimantation est obtenue en déplaçant le plot pour chaque retard entre la pompe et la sonde, en présence d'un champ magnétique statique de 4 kOe. Comme le montre la figure III.10, une désaimantation partielle (50 %) se produit sur toute la surface du plot pour un retard de 500 fs, suivie d'une ré-aimantation partielle à 20 ps (deuxième image) et une ré-aimantation presque totale (disparition du signal) pour des retards supérieurs à 150 ps. La densité de la pompe est 4 mJ.cm^{-2} . Sur la figure III.10, le contraste $\Delta M/M$ des images est ajusté avec le maximum du signal obtenu à 500 fs pour avoir la même variation temporelle de l'aimantation (en bas de la figure III.10). Pour cette raison, nous ne voyons pas des effets spatiaux comme l'expansion de la désaimantation. Cette variation est par contre apparente lorsque l'on trace les mesures spatio-temporelles selon des coupes transverses pour chaque image (figure III.11). On y observe une expansion thermique significative de la région désaimantée induite initialement par l'impulsion pompe laser. A $t = 100 \text{ fs}$ (lors de l'augmentation du signal dynamique correspondant au premier point rouge sur la figure III.10), une région partiellement désaimantée (25 %) du plot est obtenue avec un diamètre (largeur à mi-hauteur W) de 600 nm. Ce diamètre W augmente de 700 nm pour un retard de 1 ps puis à 850 nm pour un retard de 20 ps. Cette expansion spatiale est due à la relaxation de la chaleur dans la direction latérale du plot. Notons que simultanément un

échange thermique se produit également avec le substrat ce qui rend difficile de modéliser le bilan global d'échange thermique sans faire de simulation 3D de la propagation de chaleur dans tout le plot avec les conditions aux limites appropriées.

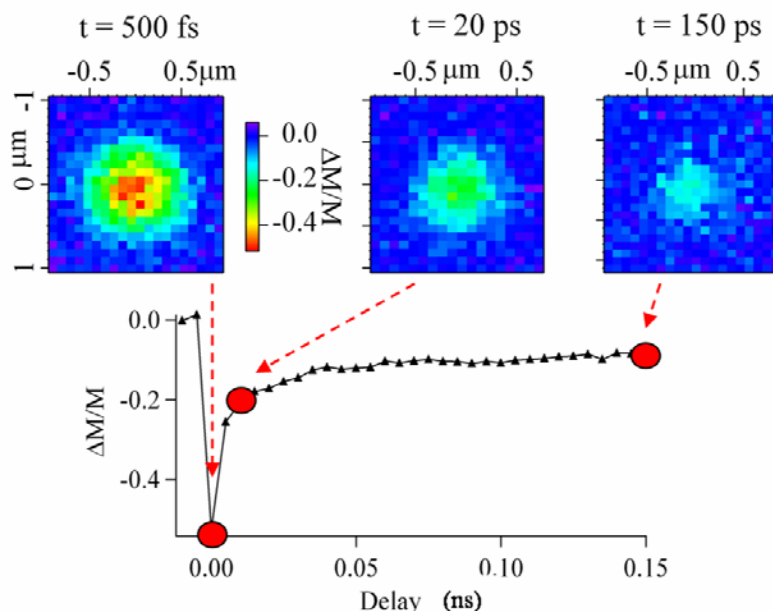


Figure III.10 : Evolution spatio-temporelle de l'aimantation d'un plot unique de CoPt_3 ($D = 1 \mu\text{m}$) : les images sont prises pour des retards fixes entre la pompe et la sonde : à 500 fs, 20 ps, et 150 ps. En bas : l'évolution temporelle de l'aimantation aux temps courts.

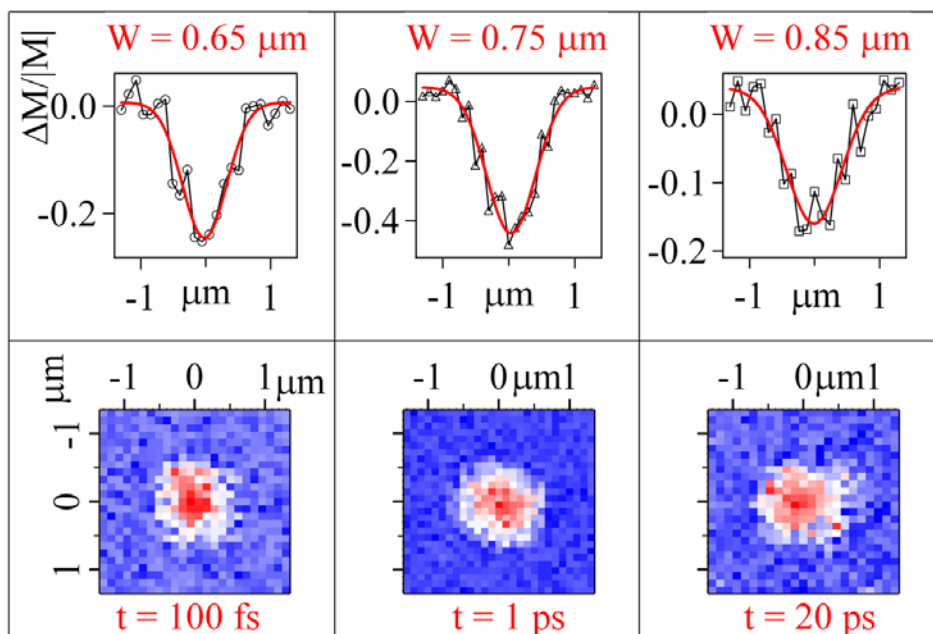


Figure III.11 : Expansion spatiale de la désaimantation d'un plot unique de CoPt_3 ($D = 1 \mu\text{m}$) induite par une impulsion pompe de 4 mJcm^{-2} . En bas : Les images magnétiques dynamiques prises à des retards $t = 100$ fs, 1 ps et 20 ps. En haut : les gaussiennes correspondants à une coupe de chaque image à $Y = 0 \mu\text{m}$.

Nous remarquons sur la figure précédente que la largeur à mi-hauteur des régions désaimantées est toujours inférieure au rapport du diamètre réel du plot (1 μm).

Nous relierons cette différence à l'amélioration de la résolution spatiale par notre méthode d'imagerie. Par définition, le contraste magnéto-optique différentiel dynamique est un processus non linéaire de troisième ordre qui est donné par la relation (chapitre II):

$$\Delta M(\tau, r) \propto \int \chi^3(r, t - \tau) I_p \mathbf{E}_s dr; \quad r = x, y \quad \text{III.2}$$

$I_p = \mathbf{E}_p \mathbf{E}_p^*$ étant l'intensité de la pompe, \mathbf{E}_p , \mathbf{E}_s sont les champs électriques des impulsions laser pompe (600 nm de diamètre) et sonde (300 nm de diamètre) respectivement, $\chi^{(3)}$ est la susceptibilité non-linéaire de troisième ordre.

On peut vérifier facilement en prenant une fonction de convolution $C_d(x)$ à partir de l'équation précédente (III.2) que la résolution spatiale peut être améliorée de 1 μm à ~ 700 nm dans le cas d'un disque de diamètre de 1 μm . $C_d(x)$ est la convolution du produit des gaussiennes de la sonde (300 nm de largeur à mi-hauteur) et la pompe (600 nm) avec une fonction qui définit un disque de diamètre à mi hauteur de 500 nm :

$$C_d(x) = \left(\exp(-\ln 2(x/300)^2) \right)^2 \otimes \left(\exp(-\ln 2(x/150)^2) \right) \otimes \left(\sqrt{(500)^2 - x^2} \right) \quad \text{III.3}$$

Par la suite, nous utilisons cette technique d'imagerie différentielle résolue en temps dans le cas des petites perturbations (faibles densités d'excitation)¹ comme une méthode de lecture des domaines magnétiques inscrits dans des films et plots ferromagnétiques de CoPt.

¹*Nous utilisons des faibles intensités pour ne pas perturber l'état magnétique induit par des impulsions laser intenses (renversement d'aimantation) en l'absence d'un champ magnétique extérieur.*

III.2. Photonique de spins : Contrôle de l'aimantation dans des plots et films ferromagnétiques de CoPt par des impulsions laser femtosecondes

La technologie des lasers femtosecondes offre aujourd'hui une nouvelle voie pour manipuler l'aimantation des matériaux magnétiques (les spins) avec les photons (via l'adressage magnéto-optique) avec une résolution temporelle de quelques femtosecondes. De plus, une bonne résolution spatiale peut être atteinte (~ 300 nm) en utilisant le microscope confocal [13]. Ce nouveau domaine appelé photonique de spins a des applications technologiques prometteuses surtout pour l'écriture et la lecture des informations magnétiques (bits) sur des supports magnétiques dans la gamme de 100 GHz à 1 THz. Avec ces perspectives, nous démontrons dans cette partie que la microscopie magnéto-optique combinée avec des impulsions lasers ultracourtes est une approche flexible pour contrôler optiquement l'aimantation dans des plots individuels et films ferromagnétiques de CoPt.

III.2.1. Technique d'imagerie pompe sonde résolue en temps (MOPPI)

Nous utilisons la technique d'imagerie pompe sonde résolue en temps dans le cas des petites perturbations pour étudier le renversement de l'aimantation d'un plot individuel de CoPt₃ et également pour écrire et lire des domaines magnétiques submicroniques dans des films ferromagnétiques de CoPt (alliages et multicouches).

Cette technique d'imagerie nommée MOPPI par la suite (Magneto-Optical Pump Probe Imaging) présente plusieurs avantages par rapport à la méthode d'imagerie MOKE conventionnelle (statique) :

- Mesure différentielle avec la modulation du faisceau pompe (215 Hz dans notre cas), qui nous permet d'obtenir un meilleur rapport signal/bruit via l'élimination des différentes sources de bruits comme la vibration mécanique de l'échantillon due au changement de la température de la pièce. Nous avons ainsi obtenu une excellente stabilité d'imagerie pendant plus d'une demi-journée grâce à cette technique.
- L'élimination de la contribution des composantes optiques (réflexion et transmission) dans le signal dynamique², permettant d'avoir des informations directes sur la direction d'aimantation surtout dans le cas de petits domaines magnétiques (~ 300 nm).

²le signal dynamique de la réflexion est quasiment nul (dans la gamme de 10^{-3}) par rapport à la variation de l'aimantation (~ 0.25).

- Le contrôle du retard optique entre la pompe et la sonde permet d'avoir des contrastes différents car le signal pompe sonde magnéto-optique dépend du temps.
- Enfin, comme nous l'avons discuté avant, la résolution spatiale est un atout majeur pour explorer les méso-structures magnétiques de dimensions (100-500 nm)

III.2.2. Renversement ultrarapide d'aimantation d'un plot individuel de CoPt₃

Nous utilisons la méthode d'imagerie pompe sonde résolue en temps (MOPPI) pour étudier le renversement d'aimantation d'un plot individuel de CoPt₃ de diamètre de 1 μm . Le protocole de renversement d'aimantation du plot est le suivant :

- Saturer le plot avec un champ magnétique de + 4 kOe puis faire l'image magnéto-optique dynamique à l'état rémanent (fig. III.12.b) pour une faible densité de laser $\sim 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$ et à un retard entre la pompe et la sonde de 300 fs.
- Appliquer un petit champ dans l'autre direction de l'aimant $\sim -50 \text{ Oe}$ et exciter le plot avec une forte densité 8 mJ.cm^{-2} puis faire de nouveau l'image magnétique dynamique (fig. III.12.c) dans les mêmes conditions que la figure (III.12.b).

Le contraste de chaque image correspond à la désaimantation partielle induite par le laser dans le plot à un retard de 300 fs. Ce retard optique a été choisi pour avoir un grand contraste du signal $\Delta M/M$.

Pour mettre en évidence l'effet des différents paramètres sur le renversement d'aimantation, nous avons réalisé plusieurs mesures en changeant l'intensité laser et l'amplitude du champ magnétique appliqué :

- Lorsque l'on excite le plot avec une forte intensité de 8 mJ.cm^{-2} et en absence du champ magnétique externe, nous obtenons une désaimantation totale sur toute la surface du plot (fig. III.12.d).
- Lorsque l'on augmente le champ magnétique appliqué dans la direction opposée par rapport à l'état initial de saturation de -50 Oe à -2 kOe , l'intensité nécessaire pour le renversement diminue de 8 mJ.cm^{-2} à 3 mJ.cm^{-2} et nous obtenons toujours un renversement total du plot. Si nous continuons de diminuer l'intensité du laser à 2 mJ.cm^{-2} pour un champ $H = -2 \text{ kOe}$, nous observons un renversement partiel du plot, qui se manifeste par la présence de deux domaines opposés d'un diamètre de $\sim 500 \text{ nm}$ (fig. III.12.a).

Les résultats obtenus montrent que l'on peut contrôler l'aimantation d'un plot unique avec la combinaison des deux paramètres : l'intensité laser et le champ magnétique. De plus, dans la prochaine section nous verrons que d'autres paramètres comme la nature de substrat, la polarisation circulaire du laser (gauche ou droite) peuvent donner d'autres types de renversement. Nous discuterons aussi les mécanismes impliqués dans chaque type de renversement.

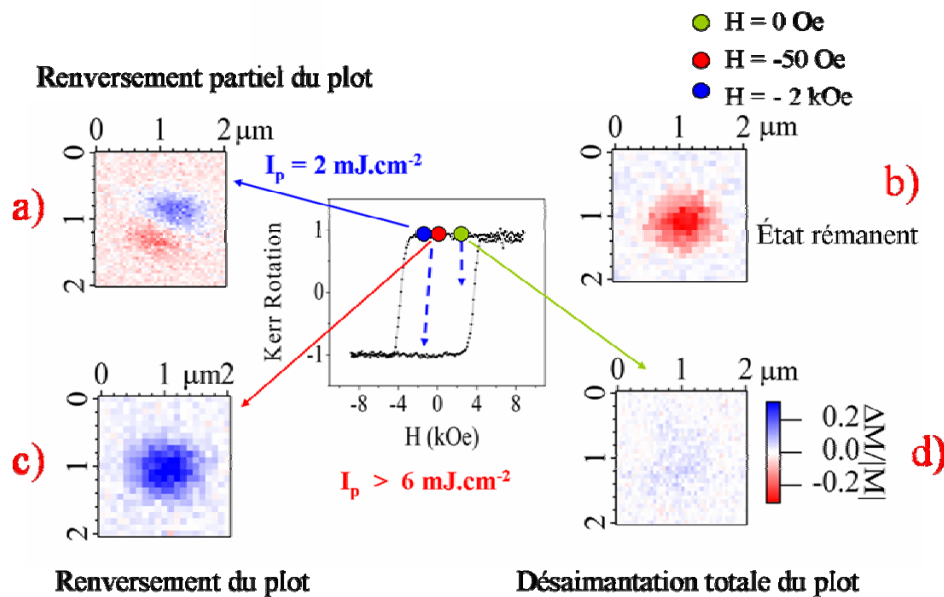


Figure III.12 : Contrôle de l'état magnétique d'un plot de CoPt₃ avec des impulsions laser intenses (pompe) et un champ magnétique statique. Les images magnétiques à l'état rémanent (b), après désaimantation avec la pompe $I_p = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$ et $H = 0 \text{ Oe}$ (d), renversement total avec $I_p = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$ et $H = -50 \text{ Oe}$ (c) et renversement partiel de la moitié du plot pour $I_p = 2 \text{ mJ.cm}^{-2}$ et $H = -2 \text{ kOe}$ (a). Toutes les images sont prises pour un retard de 300 fs et pour $I_{\text{lecture}} = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$.

III.2.3. Inscription magnéto-optique dans des films ferromagnétiques : Écriture et lecture des domaines magnétiques par des impulsions laser femtosecondes

Dans cette partie, nous nous intéressons à l'inscription et à la lecture magnéto-optique dans des films ferromagnétiques de CoPt. Pour l'écriture nous utilisons des impulsions laser femtosecondes intenses et pour la lecture nous utilisons la technique d'imagerie MOPPI décrite dans la section précédente. L'écriture est réalisée par le renversement d'un domaine dans la partie excitée du film due à l'augmentation de la température des spins induite par les impulsions laser. Nous avons étudié deux types de films ferromagnétiques possédant une anisotropie magnéto cristalline perpendiculaire. Le premier film est un alliage de CoPt₃

d'épaisseur de 15 nm déposé sur un substrat de saphir (Al_2O_3) par épitaxie par jet moléculaire (MBE). Le deuxième échantillon est un film de multicouches de $(\text{Co}_{0.5\text{nm}}\text{Pt}_{1\text{nm}}) \times 8$ d'épaisseur 12 nm déposé sur un substrat de verre par pulvérisation cathodique. Les deux films ont des cycles d'hystérèse carrés avec un champ coercitif de 2.8 kOe pour le film de $\text{CoPt}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ et autour de ~ 370 Oe pour le film de CoPt/verre (figure III.14.a). Nous allons étudier l'effet des différents paramètres du laser (intensité, polarisation), l'amplitude du champ magnétique appliqué et la nature du substrat sur le renversement d'aimantation.

III.2.3.1. Ecriture et lecture des domaines magnétiques avec un laser polarisé linéairement

La figure III.13 montre le logo « spin photonics » inscrit dans un film ferromagnétique de CoPt_3 par un renversement local sous un petit champ magnétique perpendiculaire de -50 Oe. Ce logo « spin photonics » présente symboliquement l'interaction d'une impulsion de lumière (énergie de photon $h\nu$) avec les spins S (moment magnétique). La procédure d'écriture (inscription) est la même que pour le renversement d'aimantation d'un plot individuel de CoPt_3 (section précédente). La densité d'énergie de la pompe utilisée pour écrire le logo est $E_{\text{écriture}} = 10 \text{ mJ.cm}^{-2}$, plus grand que la densité seuil minimale E_{seuil} nécessaire pour induire un renversement d'aimantation. Pour le film $\text{CoPt}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$, nous trouvons que $E_{\text{seuil}} (\sim 50 \text{ Oe}) = 6 \text{ mJ.cm}^{-2}$. La lecture est faite par la technique MOPPI à un retard optique de 300 fs et avec une intensité de lecture $E_{\text{lecture}} = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$ assez faible pour ne pas induire des modifications sur l'état final de l'aimantation.

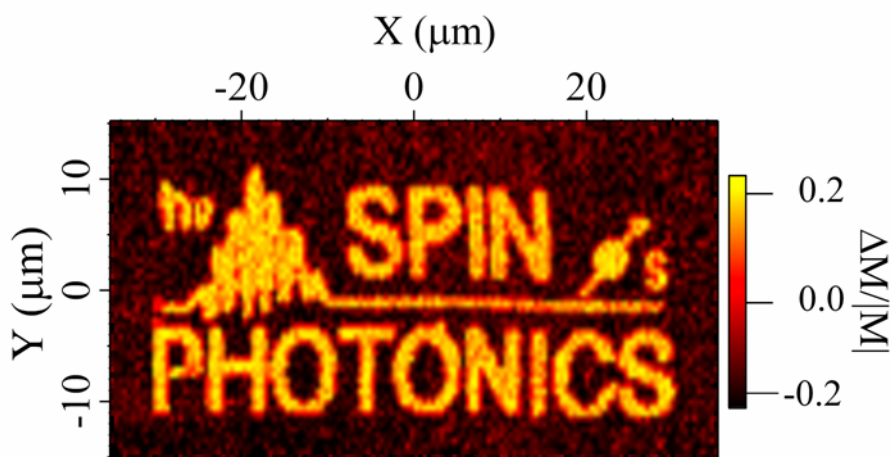


Figure III.13 : Ecriture et lecture optique dans un film ferromagnétique. Le logo SPIN PHOTONICS est inscrit dans un film de $\text{CoPt}_3/\text{saphir}$ avec une anisotropie perpendiculaire. L'intensité de l'écriture et de lecture (imagerie) sont respectivement: $E_{\text{écriture}} = 10 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (pour $H = -50 \text{ Oe}$) et $E_{\text{lecture}} = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$.

Une telle procédure permet d'écrire un plot dans le film ferromagnétique pour une position donnée de l'impulsion pompe dans le plan XY de l'échantillon. La figure III.14.b montre que chaque plot écrit avec la pompe (longueur d'onde de 800 nm, le diamètre de la tache laser ~ 600 nm) a un diamètre moyen de ~ 900 nm comme le montre la figure III.14.d sur une coupe transverse en $X = 0 \mu\text{m}$. Les cercles correspondent aux points expérimentaux et la ligne en train plein à un ajustement gaussien. Lorsque nous utilisons la sonde pour écrire (longueur d'onde de 400 nm, diamètre de la tache laser focalisée ~ 300 nm), le diamètre du plot inscrit est réduit à ~ 600 nm. Ces résultats prouvent que l'expansion thermique en dehors de la région excitée conduit à un renversement d'aimantation de l'ordre de $\sim 1/3$ plus grand que la tache du laser dans le cas de l'alliage CoPt_3 .

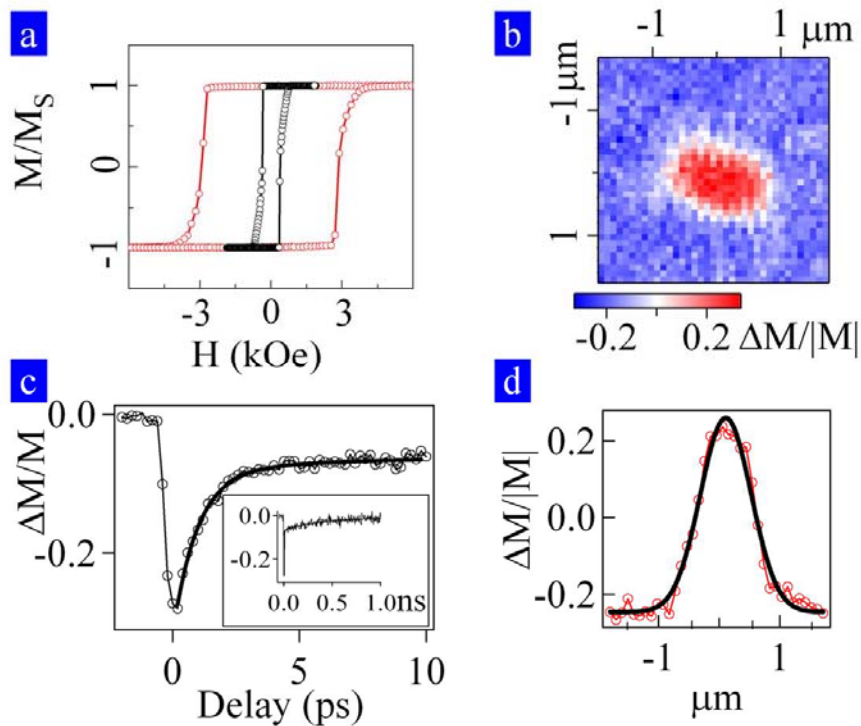


Figure III.14 : Résolution spatiale et temporelle de la technique MOPPI. a) Cycles d'hystérèse d'un film de $\text{CoPt}_3/\text{saphir}$ (cercles rouges), et de CoPt/verre (cercles noirs). b) Expansion spatiale d'un domaine écrit (diamètre ~ 900 nm) dans un film de $\text{CoPt}_3/\text{saphir}$ avec une intensité laser de 10 mJ.cm^{-2} et imagé à un retard fixe de 300 fs, l'intensité de lecture est 1 mJ.cm^{-2} . c) Variation temporelle de l'aimantation du plot écrit (en bas : la dynamique aux temps longs). d) Une coupe de l'image de la Fig III.14.b en $Y = 0 \mu\text{m}$.

Mécanismes macroscopiques associés au renversement d'aimantation :

Le renversement d'aimantation peut se produire en trois étapes importantes :

- Une désaimantation ultrarapide (~ 60 fs [3]) se produit dans la région excitée du film via la formation (nucléation) de petits domaines (voir la dernière partie du chapitre). Ainsi, due à l'augmentation de la température électronique, le champ coercitif diminue en-dessous du champ magnétique appliqué dans le sens inverse (~ -50 Oe).
- Propagation des domaines magnétiques créés dans la région excitée vers un état de basse énergie où la direction de l'aimantation est alignée selon le champ magnétique appliqué.
- Le refroidissement de la zone excitée via la diffusion de la chaleur vers le milieu environnant (100 ps à quelques ns).

En conséquence, la dynamique et le temps de ce renversement sont limités par la durée de ces trois étapes et doivent dépendre de la nature de substrat. Dans le cas d'un film de GdFeCo/verre, le temps de renversement a été mesuré dans la gamme de la nanoseconde [14]. Dans la réalité, le renversement d'aimantation induit par des impulsions laser femtosecondes est un processus complexe impliquant la nucléation des domaines renversés initialement, suivie de leur expansion tandis que le chauffage et le refroidissement de la zone excitée prennent place. La dynamique de la nucléation et de la propagation des domaines magnétiques dans le cas du renversement statique a été largement étudiée ces dernières années [15, 16, 17, 18], mais une description quantitative est toujours difficile à accomplir. Il est vraisemblable que la microstructure des films ferromagnétiques joue un rôle très important car les domaines créés initialement avec le laser dans un milieu uniforme et homogène sont instables. Nous revenons dans les paragraphes suivants sur le rôle de la structure cristalline sur le renversement d'aimantation. De plus, le gradient de la température élevée amené par les impulsions laser peut influencer directement la structure de film elle-même.

Lecture dynamique :

Nous pouvons utiliser la technique d'imagerie MOPPI pour la lecture des plots magnétiques pour différents retards optiques τ entre la pompe et la sonde (section III.2.2.). L'évolution temporelle de l'aimantation du plot renversé intégré sur tout le plot est présentée dans la figure III.14.c. La diminution de l'aimantation (20 %), qui est maximale pour le retard $\tau = 300$ fs, est due à l'augmentation de la température électronique induite par les impulsions pompe. La ré-aimantation partielle correspond à l'échange d'énergie entre les

électrons et le réseau et se produit avec un temps de 1 ps pour une intensité de 1 mJ.cm^{-2} . Aux temps longs (bas de la figure III.14.c), une ré-aimantation complète se produit avec un temps de 516 ps via les mécanismes de diffusion de la chaleur vers l'environnement (substrat de saphir et les régions non excitées du film de CoPt_3).

Une illustration des différents contrastes magnétiques pour différents retards est schématisée dans la figure III.15. La lettre M est premièrement écrite via un renversement d'aimantation avec le faisceau pompe ayant une intensité de 10 mJ.cm^{-2} dans le film de $\text{CoPt}_3/\text{saphir}$. Les trois signaux de MOPPI présentés dans la fig III.15.a, III.15.b et III.15.c correspondent à des retards de 300 fs, 2 ps et 10 ps respectivement.

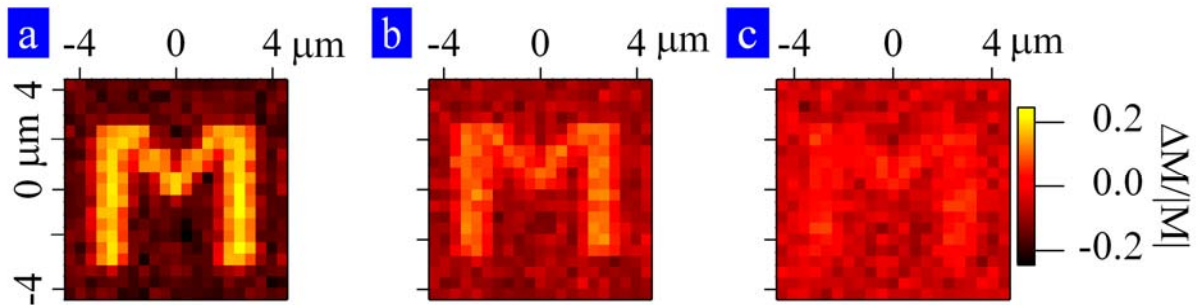


Figure III.15 : Lecture magnéto-optique dynamique : La lettre M est écrite premièrement dans un film de CoPt_3 avec $I_p = 10 \text{ mJ.cm}^{-2}$ pour un champ $H = -50 \text{ Oe}$. Les trois images sont obtenues à des retards pompe-sonde $\tau = 300 \text{ fs}$ (a), 2 ps (b) et 10 ps (c).

III.2.3.2. Effet du champ magnétique extérieur et de la nature de substrat sur l'inscription magnéto-optique

Commençons tout d'abord par l'effet du champ magnétique extérieur sur l'inscription magnéto-optique dans un film de CoPt_3 (alliage). Nous considérons toujours le cas d'un faisceau pompe polarisé linéairement. La figure III.16.a représente le logo de notre institut IPCMS écrit dans le film de $\text{CoPt}_3/\text{saphir}$. La procédure d'inscription est la même que celle décrite précédemment avec une densité de pompe $E_{\text{écriture}} = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$ et avec un champ magnétique statique de -50 Oe . Le logo IPCMS est lu avec une densité $E_{\text{lecture}} = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$ sans champ magnétique ($H = 0$). L'application d'un petit champ positif nous permet d'effacer chaque lettre inscrite du logo avec un renversement réversible à l'état initial. Dans la figure III.16.b la lettre M a été effacée avec la même intensité pompe $E_{\text{effacement}}$ mais pour un champ

positif $H = 50$ Oe. En revanche, lorsqu'il n'y a pas de champ appliqué ($H = 0$), une désaimantation permanente est obtenue avec la pompe. Par exemple, dans la figure III.16.b la lettre C du logo IPCMS est effacée avec $E_{\text{effacement}} = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$ et $H = 0$. Le signal MOPPI correspondant est nul dans la région spatiale du C qui est fracturée en petits domaines (voir la section III.2.4). Un tel comportement est a priori incommode pour des objectifs pratiques et la présence d'un champ magnétique statique ou pulsé, synchronisé avec les impulsions laser, est nécessaire pour ré-aimanter de nouveau le matériau.

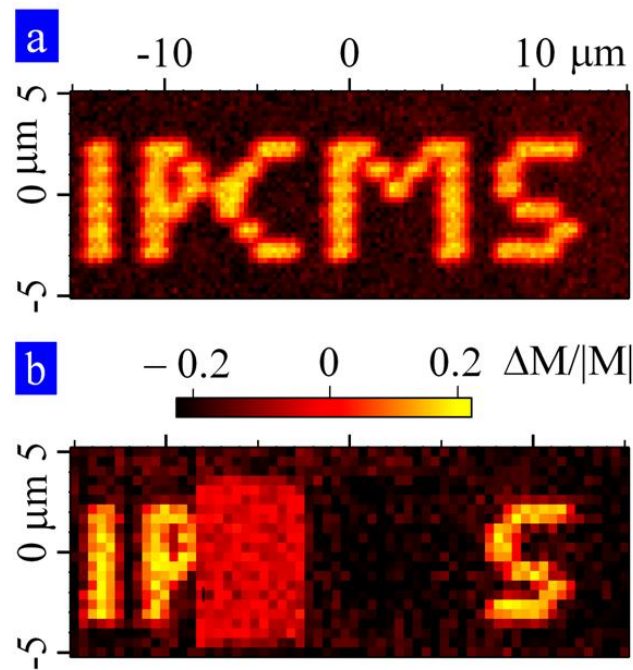


Figure III.16 : Contrôle de l'inscription magnéto-optique sur un film ferromagnétique de CoPt₃/saphir. a) Le logo IPCMS est écrit avec une intensité pompe $I_p = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$ pour un champ $H \sim -50$ Oe, et imagé avec $I_p = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$. b) La lettre M est ensuite effacée temporairement via un renversement d'aimantation vers l'état initial avec un champ $H \sim 50$ Oe et $I_{\text{effacement}} = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$. Ensuite, la lettre C est effacée de façon permanente via une désaimantation locale sans champ magnétique extérieur ($H = 0$) pour la même intensité de pompe.

Ces résultats montrent le rôle du champ extérieur dans les étapes associées au renversement d'aimantation. Quand le renversement d'aimantation est associé à la nucléation et la croissance des domaines opposés, le temps de renversement a été trouvé insensible à la température mais dépend beaucoup du champ effectif H_{eff} (le champ appliqué) [19].

Dans le cas d'un film polycristallin de CoPt (8 multicouches de $\text{Co}_{0.5\text{nm}} \text{Pt}_{10\text{nm}}$) déposé sur verre, nous avons observé le même effet du champ magnétique externe sur le renversement d'aimantation. Cependant, pour des densités d'excitation du laser ($\sim 4 \text{ mJ. cm}^{-2}$) et en absence du champ magnétique extérieur ($H = 0$), un autre type de renversement est apparu. Pour illustrer cet effet, nous avons étudié l'effet de l'intensité laser en utilisant deux configurations expérimentales d'excitation optique :

- L'excitation du film par la pompe en géométrie confocale avec une tache de 600 nm de diamètre. Comme nous l'avons vu, avec cette configuration il y a plusieurs avantages, dont l'amélioration de la résolution spatiale... Cependant, il est difficile de distinguer des petites variations spatiales de l'aimantation avec le changement des paramètres extérieurs et une étude complète par microscopie à force magnétique (MFM) est nécessaire (dernière section du chapitre).
- L'excitation du film par le haut (direction du faisceau pompe opposée à celle de la géométrie d'excitation confocale) avec une pompe de diamètre de 5 μm (largeur à mi-hauteur de la tache) permet d'obtenir des informations complémentaires. L'état magnétique lu avec la technique MOPPI est analysé toujours en géométrie confocale (la sonde étant toujours identique (300 nm de diamètre)).

Avec la deuxième configuration expérimentale, nous voyons sur la figure III.17 l'effet de l'intensité laser sur le renversement et l'expansion spatiale de la désaimantation. Chaque image est réalisée avec la technique MOPPI pour une intensité de lecture $E_{\text{lecture}} = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$ pour un retard τ de 300 fs. Au début, chaque région du film est renversée (ou désaimantée) pour quatre intensités laser : $I_1 = 4 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (fig. III.17.a), $I_2 = 5 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (fig. III.17.b), $I_3 = 6.2 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (fig. III.17.c) et enfin $I_4 = 7.5 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (fig. III.17.d). Deux résultats importants sont obtenus :

- Un renversement d'aimantation dans une région de 3.5 μm pour l'intensité laser la plus faible (fig. III.17.a) et répartie dans un anneau autour de la tache désaimantée, dont des dimensions varient avec la densité d'excitation (fig. III.17.b, c, d). De plus, le renversement a lieu toujours pour la même intensité laser $\sim 4 \text{ mJ.cm}^{-2}$.
- Une désaimantation totale prend place au milieu de la tache pour les fortes intensités (fig. III.17.b, c, d) via une formation des petits domaines magnétiques (paragraphe III.2.4.) et une expansion spatiale de cette désaimantation d'une tache de largeur mi-hauteur de 3 μm pour I_2 , à 7 μm pour I_3 et à 10 μm pour I_4 . Cette expansion est reliée

à la diffusion de la chaleur vers l'environnement avec l'augmentation de l'intensité laser.

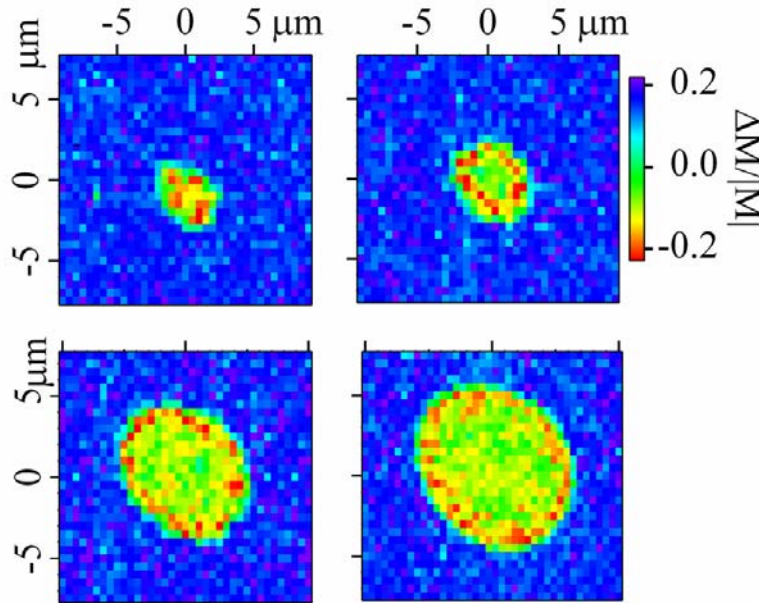


Figure III.17 : Influence de l'intensité du laser (pompe) sur l'inscription magnéto-optique dans le film de CoPt/verre. Les images magnétiques des régions écrites sur le film pour quatre intensités : $I_{p1} = 4 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (a), $I_{p2} = 5 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (b), $I_{p3} = 6.2 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (c), $I_{p4} = 7.5 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (d). L'intensité de lecture est la même, $I_{\text{lecture}} = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$.

Au contraire dans le cas du renversement d'aimantation induit optiquement en présence d'un champ magnétique, la situation est plus compliquée pour expliquer les mécanismes impliqués. Néanmoins, une comparaison entre deux mesures réalisées avec les deux configurations d'excitation décrites au dessus nous permet au moins d'accéder à l'une des causes de ce renversement. Dans la figure III.18.a), un domaine magnétique circulaire de diamètre $< 500 \text{ nm}$ est renversé avec la pompe de diamètre de 600 nm (géométrie confocale)³. Dans le cas d'une excitation par la pompe de diamètre de $5 \mu\text{m}$ (figure III.18.b), une structure en forme de fleur apparaît⁴. Cette structure contient plusieurs domaines renversés de différentes tailles, séparés par des parois de domaines. La taille de ces domaines varie de 300 nm à $1 \mu\text{m}$ selon la région de l'échantillon. Les deux mesures (images) montrent bien que le renversement d'aimantation d'un seul domaine se produit toujours dans une région spatiale assez petite qui ne constitue pas des défauts cristallins.

³ La densité d'excitation (critique) a été choisie de façon à induire un changement de l'état magnétique. ⁴ La structure en forme de fleur dans la figure III.18.b) est un zoom de l'image de la figure III. 17.a).

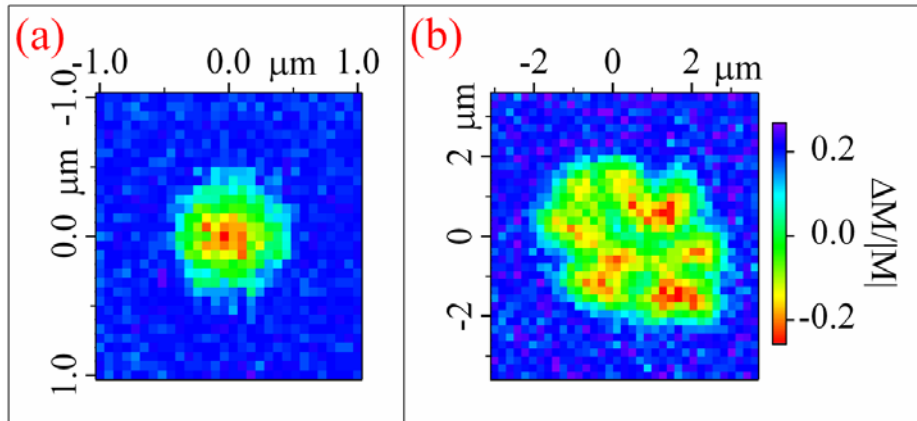


Figure III.18 : Renversement d'aimantation d'un film ferromagnétique de CoPt/verre sans champ magnétique appliqué. L'image magnéto-optique d'un domaine écrit avec la pompe de diamètre de 600 nm (configuration confocale) (a) et avec la pompe de diamètre de 5 µm (b). L'intensité de lecture est $I_{\text{lecture}} = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$ et de l'écriture est $I_{\text{écriture}} = 4 \text{ mJ.cm}^{-2}$.

De plus, l'étude avec le microscope à force magnétique (MFM) de la configuration magnétique de ces multicouches de CoPt/verre à l'état désaimanté⁵, a mis en évidence une structure en domaines magnétiques de dimension supérieure à 350 nm [2]. Le bon accord entre la taille minimale des domaines magnétiques observés avec la technique d'imagerie magnéto-optique dynamique (MOPPI) et le microscope MFM, met en cause la granularité (structure cristalline) de film. Apparemment, le renversement d'aimantation est dominé essentiellement par un processus de nucléation d'un mono-domaine et pas par une propagation des parois de domaines. Ces deux processus sont en effet présents lors d'un renversement thermique induit par des impulsions laser intenses en présence d'un petit champ magnétique [20] et aussi dans le cas d'un renversement statique par un champ magnétique dans des films continus [18, 19]. De plus, très récemment, nous avons observé le même type de renversement d'aimantation dans des films amorphes de GdFeCo en utilisant des intensités laser assez élevées ($> 6 \text{ mJ.cm}^{-2}$). Ces observations confortent l'hypothèse du rôle très important de la granularité du film (CoPt, GdFeCo) sur le renversement ultrarapide d'aimantation en absence du champ magnétique extérieur. Enfin, plusieurs questions se posent, surtout en ce qui concerne le type de renversement (cohérent, incohérent... ?) et à quelle échelle de temps il se produit.

⁵ *La méthode de désaimantation consiste à soumettre tout l'échantillon à un champ alternatif d'amplitude décroissante à l'aide de l'AGFM : le champ maximal utilisé est 13 kOe et le pas de décroissance est de 0.1 % [2].*

III.2.3.3. Inscription magnéto-optique en fonction de la polarisation circulaire du laser

En plus de ces types de renversement induits par des impulsions laser femtosecondes polarisées linéairement, le groupe de Theo Rasing à l'université de Nijmegen a montré que des impulsions laser femtosecondes polarisées circulairement peuvent induire un renversement optique de l'aimantation d'un film ferrimagnétique de GdFeCo en l'absence d'un champ magnétique externe [21] (voir la figure III.19.a (avant l'excitation optique) et III.19.b (après l'excitation optique)). Par ailleurs, l'effet de l'impulsion laser dans des grenats et orthoférites ferrimagnétiques a été étudié. Le résultat principal est que le champ électromagnétique du laser agit comme un champ magnétique pulsé de durée 100 fs et d'amplitude de 0.6 à 1 Tesla [22, 23, 24]. Du point de vue théorique, le processus fondamental associé à l'effet opto-magnétique est supposé être soit l'effet Faraday inverse [25, 26], soit l'effet magnéto-optique de Barnett [27]. Dans le dernier scénario, le renversement ultrarapide d'aimantation se produit via un transfert direct du moment de spin entre la lumière polarisée circulairement et le matériau magnétique. Dans les deux modèles, la polarisation circulaire du laser doit induire un champ magnétique dirigé selon le vecteur d'onde \mathbf{k} de la lumière. De plus, le signe du champ créé \mathbf{H}_{imp} change quand la polarisation passe de circulaire gauche (σ^-) à circulaire droite (σ^+).

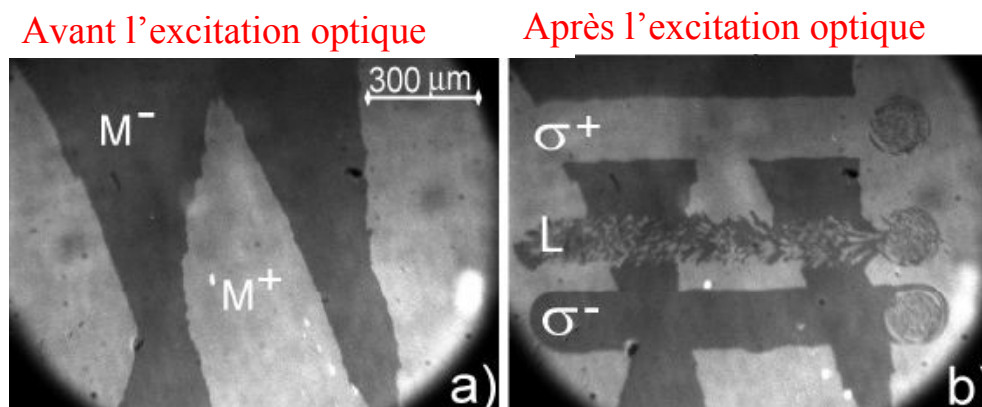


Figure 19 : L'effet des impulsions laser femtosecondes (40 fs de durée) polarisées linéairement et circulairement (droite et gauche) sur l'état des domaines magnétiques dans un film de GdFeCo. a) Image magnéto-optique de l'état magnétique du film avant l'excitation optique. b) Inscription des domaines magnétique en balayant un faisceau laser polarisé linéairement, circulairement droite (σ_+), et gauche (σ_-) avec une vitesse de balayage de $\sim 30 \mu\text{m/s}$; la densité d'excitation est 11.4 mJ.cm^{-2} [21].

III.2.4. Etude par microscopie à force magnétique et magnéto-optique : Visualisation de la désaimantation spatiale induite par laser dans des plots et films de CoPt.

Nous avons également étudié la configuration micro-magnétique des films ferromagnétiques de CoPt (alliage et multicouche) et plots ferromagnétiques individuels de CoPt₃ après désaimantation par des impulsions laser intenses ($\lambda = 793$ nm).

Film de CoPt₃/Al₂O₃ (alliage):

La figure II.20 présente une comparaison entre les contrastes MOPPI (a, b) et les images obtenues par microscopie à force magnétique MFM (c, d) d'une même région du film de CoPt₃/Al₂O₃ désaimantée pour deux intensités laser $I_1 = 4$ mJ.cm⁻², $I_2 = 8$ mJ.cm⁻² respectivement. La désaimantation est faite sans champ magnétique externe ($H = 0$). Avec les deux techniques d'imagerie, une expansion spatiale de la tache de désaimantation est obtenue lorsque l'intensité laser augmente. Cela est dû à la propagation latérale de la chaleur (le diamètre de la tache varie de 800 nm pour I_1 à 1.6 μ m pour I_2). De plus, une structure en domaines magnétiques en forme de « labyrinthe » apparaît avec une taille moyen de domaine de 250 nm (± 50 nm). Cette valeur, calculée à partir des transformées de Fourier (FFT) des deux images (II.20.c, d), est sensiblement la même dans le cas où le film est désaimanté par un champ magnétique alternatif [2]. Il est très vraisemblable que les centres de nucléation des domaines proviennent des défauts cristallins (centres intrinsèques) présents initialement dans le film et non par les modifications de la structure cristalline induite par le laser.

Donc, le processus de la désaimantation spatiale est dominé par la nucléation des domaines magnétiques créés initialement par le gradient de température induit par les impulsions laser. Les intensités laser intenses utilisées dans notre cas permettent de faire transiter la zone éclairée de la phase ferromagnétique vers la phase paramagnétique (la température électronique est assez élevée ou comparable à la température de Curie T_c). Cette désaimantation transitoire se manifeste par la disparition du cycle d'hystérésis pendant quelques picosecondes après l'absorption de l'impulsion laser [28].

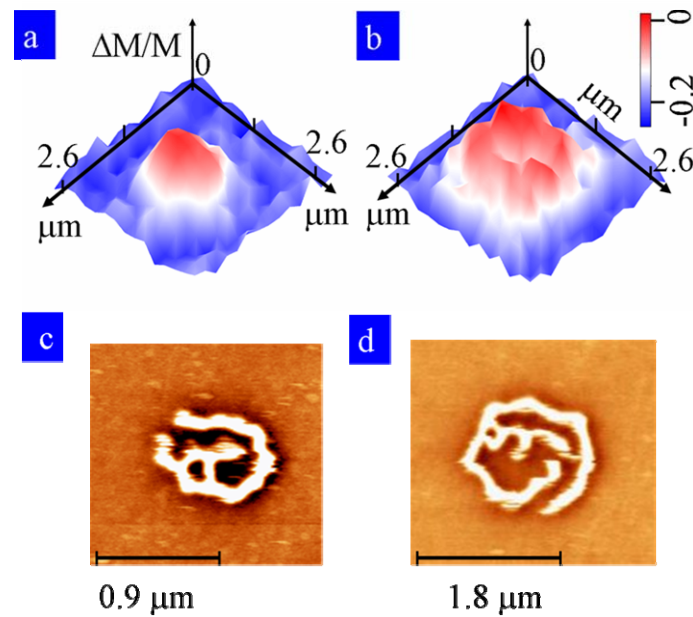


Figure III.20 : Etude par microscopie à force magnétique (MFM) de la désaimantation spatiale d'un film de $\text{CoPt}_3/\text{saphir}$. Les images magnétiques de deux régions désaimantées pour deux intensités laser $I_p = 4 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (a) et $I_p = 8 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (b). c) et d) Les images MFM correspondent à a) et b) respectivement.

Avant de passer à la configuration magnétiques des plots et films de CoPt/verre désaimantés avec des impulsions laser, faisons une comparaison entre les images de la technique d'imagerie pompe sonde magnéto-optique (MOPPI) et les images calculées à partir d'une convolution de la structure des domaines avec le contraste pompe sonde (équation II.2). Nous obtenons un bon accord entre les images mesurées (figure II.20.a, b) et les images calculées (figure II.21.a, b). Cette comparaison montre la bonne résolution spatiale de notre technique d'imagerie donnée par la limite de diffraction $\sim 300 \text{ nm}$ (proche de la résolution théorique).

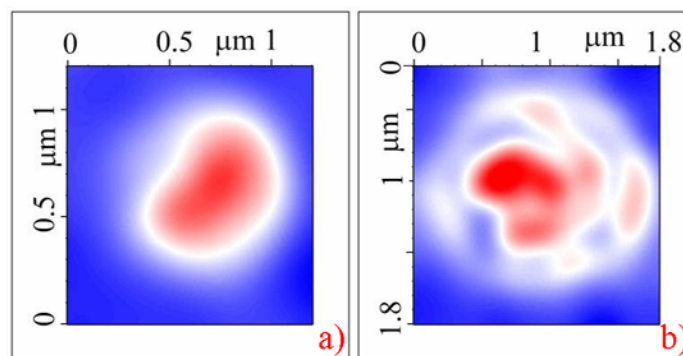


Figure III.21.a, b) : Images magnétiques calculées à partir de la convolution de la structure de domaines des figures III.19.c et III.19.d avec une gaussienne de largeur à mi-hauteur de 300 nm (la sonde).

Film de CoPt/verre (multicouches)

Pour le film continu de multicouches de CoPt/verre, la configuration magnétique après désaimantation optique est très différente de celle trouvée dans l'alliage de CoPt₃. A une densité d'excitation de 4mJ.cm^{-2} , un renversement d'un monodomaine magnétique est observé avec les deux techniques d'imagerie MOPPI et MFM (figure III.22.a, c). La taille du domaine renversé est $\sim 300\text{ nm}$. Donc, les images MFM confirment la présence d'un renversement d'aimantation d'un monodomaine dans les multicouches de CoPt, dont l'origine est discutée dans le paragraphe III.2.3.2.

Lorsque nous augmentons l'intensité laser à 8 mJ.cm^{-2} , une désaimantation spatiale prend place dans la tache excitée ($\Delta M/M = 0$) (figure III.22.b). Cette désaimantation se manifeste par la présence d'une structure en domaines d'un diamètre moyen de $\sim 175\text{ nm}$ (figure III.22.d). L'évolution progressive de la taille de domaines de 300 nm à 175 nm avec l'augmentation de la densité d'excitation peut être expliquée soit par la modification des propriétés magnétiques au dessus de la température de Curie (transition ferro-paramagnétique), soit par la modification de la structure cristalline surtout pour les fortes intensités laser ($> 8\text{mJ.cm}^{-2}$). Des modifications de la structure cristalline (et aussi de la structure des domaines magnétiques) assez similaires ont été observées dans les mêmes films avant et après un recuit thermique à une température de 450 K [2].

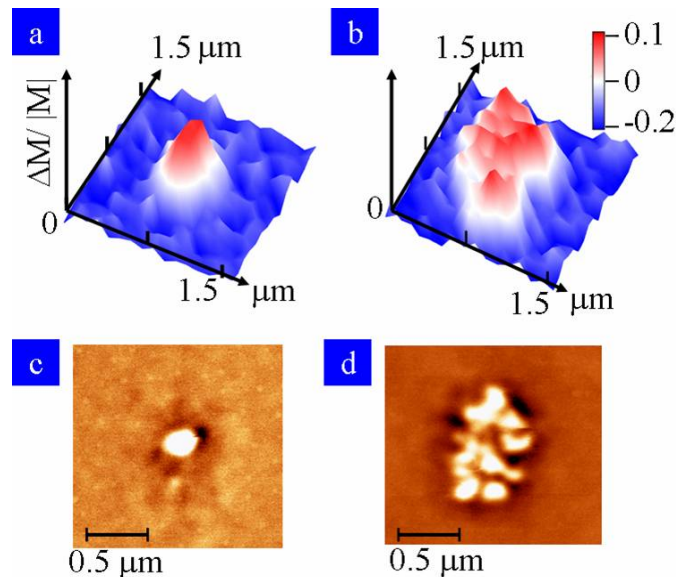


Figure III.22 : Etude par MOPPI et par microscopie à force magnétique de la désaimantation spatiale d'un film de CoPt/verre. L'inscription des domaines magnétiques est obtenue pour deux intensités de laser $I_P = 4\text{ mJ.cm}^{-2}$ (a) et $I_P = 8\text{ mJ.cm}^{-2}$ (b). c) et d) Les images MFM correspondantes à a) et b) respectivement.

Plots de CoPt_3 :

De manière similaire, nous avons désaimanté des plots individuels de CoPt_3 de diamètre de $1\ \mu\text{m}$ et $500\ \text{nm}$ avec des impulsions lasers d'une intensité de $8\ \text{mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$. Dans les plots de diamètre $1\ \mu\text{m}$, la configuration magnétique est semblable à celle observée dans les films continus de CoPt_3 . Au contraire, la situation est assez différente dans les petits plots (de diamètre $500\ \text{nm}$) avec l'apparition ou non d'une structure en domaines. Pour avoir une bonne statistique, nous avons désaimanté plusieurs plots. Les plots noirs dans la figure III.23 ne sont pas excités, ils représentent l'état magnétique initial (antiparallèle). Cependant, dans les plots excités, nous avons observé soit une structure en domaines pour certains d'entre eux, soit un renversement total de l'aimantation dans les autres. A priori, le renversement d'aimantation en absence d'un champ magnétique extérieur est liée soit aux défauts créés lors de la structuration par lithographie électronique, soit à l'effet de bord qui devient important avec la diminution de la taille du plots.

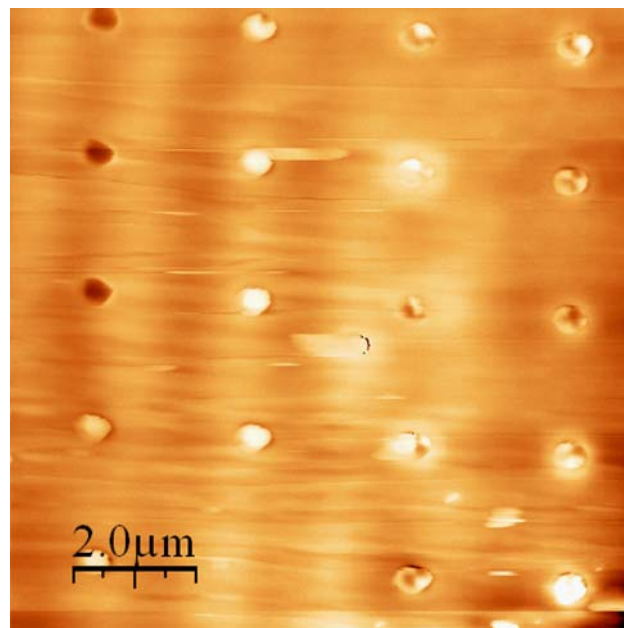


Figure III.23 : Etude par microscopie à force magnétique (MFM) de la désaimantation spatiale de plots ferromagnétiques de CoPt_3 /saphir. Image magnétique par MFM de plots désaimantés par le laser avec une intensité $I_p = 8\ \text{mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la dynamique et le renversement d'aimantation induits par des impulsions laser femtosecondes sur des plots individuels et films ferromagnétiques. Cette étude a été réalisée à l'aide du microscope Kerr magnéto-optique confocal avec une résolution spatiale de 300 nm et pour comparaison par microscopie à force magnétique.

Dans la première partie du chapitre, nous avons étudié la dynamique d'aimantation de plots ferromagnétiques individuels de CoPt₃ et de Permalloy (Ni_{0.8}Fe_{0.2}). Dans le cas des plots de CoPt₃ (diamètre 1 μm), une désaimantation ultrarapide se produit après la thermalisation des électrons (~150 fs). Cette désaimantation est suivie d'une ré-aimantation partielle via le mécanisme de relaxation spin-réseau (quelques picosecondes) puis une ré-aimantation totale via la diffusion de chaleur en dehors de la zone excitée par l'impulsion pompe (quelques centaines de picosecondes). Dans le cas des plots individuels de permalloy (diamètre de 10 et 30 μm), l'aimantation entreprend un mouvement de précession amortie autour du champ effectif. Nous avons étudié l'influence de l'intensité laser sur le temps de relaxation spin-réseau et sur la période de la précession d'aimantation. En ce qui concerne la dynamique électronique, nous avons observé les ondes acoustiques liées aux vibrations des phonons, dont la période dépend essentiellement de l'épaisseur des plots. Enfin, nous avons utilisé le mode d'imagerie du microscope pour observer l'expansion spatiale de la désaimantation au cours du temps.

Dans la deuxième partie, nous avons décrit une nouvelle technique d'imagerie différentielle permettant d'étudier le renversement de l'aimantation d'un plot individuel de CoPt₃ et de films ferromagnétiques de CoPt (alliages et multicouches). L'étude de l'influence des différents paramètres sur le renversement d'aimantation nous a permis de distinguer deux types de renversement : un renversement thermique (via la température électronique) qui dépend beaucoup de l'intensité laser et de l'amplitude du champ magnétique, un renversement pour une intensité typique de 4 mJ.cm⁻² qui est liée à la granularité du substrat (multicouches CoPt/verre). Nous avons discuté les mécanismes associés à chaque type de renversement. Enfin, nous avons étudié la structure spatiale des films (alliage de CoPt₃/saphir, et multicouches de CoPt/verre) désaimantés par des impulsions laser en utilisant (et en comparant les mêmes régions spatiales) la microscopie à force magnétique (MFM). Pour les deux types de films, des domaines magnétiques apparaissent dans les régions excitées par laser. La structure de ces domaines dépend beaucoup de l'intensité du laser ainsi que de la

nature du substrat. Dans le cas des films sur verre lorsque l'intensité laser augmente, on passe d'une structure mono-domaine d'aimantation renversée (taille caractéristique de 300 nm) à une structure multi-domaines vraisemblablement déterminée par les défauts cristallins (« pinning » magnétique).

Ces résultats sont extrêmement encourageants dans l'objectif d'une manipulation toute optique de l'information. En effet, il semble qu'un choix approprié des paramètres laser et de la granularité des films pourrait conduire à l'inscription ultra-rapide de mono-domaines de taille bien inférieure à la limite de diffraction optique.

Références bibliographiques du chapitre III

- [1] D. Weller, A. Moser, L. Folks, M. E. Best, W. Lee, M. F. Toney, M. Schwickert, J.-U. Thiele, and M. F. Doerner. *IEEE Trans. Magn.* **36**, 10 (2000).
- [2] J. Vénuat. « Etude statique et dynamique du renversement d'aimantation de petits objets d'anisotropie perpendiculaire ». Thèse de doctorat ULP, Strasbourg I (2006).
- [3] L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 017401 (2002).
- [4] A. Laraoui, J. Vénuat, V. Halté, M. Albrecht, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. *J. Appl. Phys.* **101**, 09C105-1 (2007).
- [5] M. Vomir. « Trajectoire d'aimantation induite par des impulsions laser femtosecondes : Etude tridimensionnelle des effets d'anisotropie ». Thèse de doctorat ULP, Strasbourg I (2006).
- [6] J.-Y. Bigot, M. Vomir, L. H. F. Andrade, and E. Beaurepaire. *Chem. Phys.* **318**, 137 (2005).
- [7] M. D. Kaufmann. « Magnetization dynamics in all-optical pump-probe experiments: spin wave modes and spin-current damping ». PhD thesis, University of Göttingen (2006).
- [8] T. J. Silva, C. S. Lee, T. M. Crawford, and C. T. Rogers. *J. Appl. Phys.* **85**, 7849 (1999).
- [9] Z. Liu, F. Giesen, X. Zhu, R. D. Sydora, and M. R. Freeman. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 087201 (2007).
- [10] T. H. K. Barron, J. G. Collins, G.K. White. *Adv. Phys.* **29**, 609 (1980).
- [11] F. Vallée. *C. R. Acad. Sci., Ser IV: Phys., Astrophys.* **4**, 1469 (2001).
- [12] J.-Y. Bigot, L. Guidoni, V. Halté. « Coherent spin-lattice interaction in a ferromagnetic metallic film ». *Ultrafast Phenomena XIII*, page 398. Springer Series in Chemical Physics. Springer-Verlag, Berlin (2002).
- [13] A. Laraoui, M. Albrecht, J.-Y. Bigot. *Opt. Lett.* **32**, 936-398 (2007).
- [14] J. Hohlfeld, Th. Gerrits, M. Bilderbeek, Th. Rasing, H. Awano, and N. Ohta. *Phys. Rev. B* **65**, 012413 (2001).
- [15] H.-P. D. Shieh, M. Kryder. *J. Appl. Phys.* **61**, 1109 (1987).
- [16] R. Giles, M. Mansuripur. *J. Magn. Soc. Jpn.* **15**, Suppl. S1, 299 (1991).
- [17] M. Hasegawa, K. Moroga, M. Okada, O. Okada, Y. Hidaka. *J. Magn. Soc. Jpn.* **15**, Suppl. S1, 307 (1991).
- [18] J. Ferré. *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures II*. Topics in Applied Physics. **87**, edited by Hillebrands, B. and Ounadjela, K. Springer-Verlag, Berlin, 127-168

- (2002).
- [19] N.D. Rizzo, T. J. Silva, A.B. Kos. Phys. Rev. Lett. **83**, 4876 (1999).
- [20] Th. Rasing. Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures **II**. Topics in Applied Physics. **87**, edited by Hillebrands, B. & Ounadjela, K. Springer-Verlag, Berlin, 213–252 (2003).
- [21] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing. Phys. Rev. Lett. **99**, 047601 (2007).
- [22] A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov, and Th. Rasing. Nature **435**, 655-657 (2005).
- [23] F. Hansteen, A.V. Kimel, A. Kirilyuk, and Th. Rasing. Phys. Rev. Lett. **95**, 047401 (2005).
- [24] F. Hansteen, A.V. Kimel, A. Kirilyuk, and Th. Rasing. Phys. Rev. B **73**, 014421 (2006).
- [25] L. P. Pitaevskii. Sov. Phys. JETP **12**, 1008 (1961).
- [26] J. P. van der Ziel, P. S. Pershan, and L. D. Malmstrom. Phys. Rev. Lett. **15**, 190 (1965).
- [27] A. Rebei and J. Hohlfeld. « The magneto-optical Barnett effect and spin momentum Transfer », in press.
- [28] E. Beaurepaire, M. Maret, V. Halté, J. C. Merle, A. Daunois and J.-Y. Bigot. Phys. Rev. B **58**, 12134 (1998).

Chapitre IV : Dynamique d'aimantation des nanoparticules magnétiques

Nous avons utilisé la technique pompe sonde résolue en temps dans la configuration Kerr magnéto-optique pour étudier la dynamique d'aimantation induite par laser dans des nanoparticules magnétiques. Au début, nous détaillons le montage expérimental utilisé pour accéder aux trois composantes spatiales de l'aimantation (polaire, longitudinale, transverse). Ensuite nous présentons les résultats obtenus sur des nanoparticules ferromagnétiques de cobalt implantées dans des substrats de SiO₂/Si. Nous discutons l'influence des différents paramètres impliqués dans la dynamique d'aimantation pendant les premières picosecondes après l'excitation optique et responsable de la précession et de la relaxation d'aimantation autour du champ effectif aux temps plus longs. Nous étudions aussi le comportement gyroscopique d'aimantation dans des nanoparticules superparamagnétiques implantées dans des substrats de saphir (Al₂O₃). Enfin, nous explorons l'effet de la taille des nanoparticules en particulier sur l'amortissement de l'aimantation (damping).

IV.1. Montage expérimental

Dans cette partie, nous utilisons la technique pompe sonde résolue en temps pour étudier la dynamique d'aimantation dans des nanoparticules magnétiques. Les impulsions laser femtosecondes d'une durée de 120 fs, centrées à 793 nm sont délivrées par un oscillateur Titane saphir amplifié à 5 kHz décrit dans le chapitre II. Le taux de répétition de l'amplificateur correspond à un retard de 200 μ s entre deux impulsions successives. Ce retard est suffisamment long pour permettre le retour à l'équilibre de la température avec l'environnement qui dans le cas des métaux est de l'ordre de la nanoseconde. Le faisceau laser est alors divisé en deux parties par une lame séparatrice. Le faisceau le plus intense (80 %) est utilisé pour générer la pompe à une longueur d'onde de 396 nm dans un cristal non-linéaire de BBO de 3 mm d'épaisseur. Le faisceau de faible intensité (20 %) est utilisé comme sonde à 793 nm. Le retard optique entre les deux impulsions est contrôlé via un moteur pas à pas d'une résolution de 1 μ m (soit un retard de 2×3.33 fs) et avec un retard maximum d'une nanoseconde. Les deux faisceaux sont alors focalisés sur l'échantillon sur un diamètre de 100 μ m pour la pompe et 50 μ m pour la sonde. Pour accéder aux composantes polaire et longitudinale de l'aimantation, nous avons réalisé des mesures magnéto-optiques avec un large angle d'incidence de la sonde de 53° par rapport à la normale de l'échantillon (figure IV.1). L'aimantation est mesurée par analyse de polarisation (géométrie magnéto-optique Kerr) dans un cube séparateur de polarisation. Pour obtenir des informations sur la dynamique des électrons, nous avons mesuré aussi la transmission et la réflexion différentielles. Les signaux détectés par des photodiodes sont mesurés par détection synchrone via un amplificateur « lock-in » dont le signal de référence de 215 Hz est donné par un modulateur mécanique installé sur le bras de la pompe.

IV.1.1. L'accès expérimental de la trajectoire de l'aimantation [1]

L'idée de mesure des trois composantes de l'aimantation repose sur une configuration spécifique du faisceau sonde incident et aussi du champ magnétique appliqué. Pour cela, comme précisé au paragraphe précédent, la sonde est orientée selon un axe faisant un angle de 53° par rapport l'axe Ox (voir la figure IV.1). Les différentes mesures prises pour des angles complémentaires du champ magnétique extérieur nous donnent la possibilité d'extraire la composante polaire (Pol) et longitudinale (Long) du signal magnéto-optique mesuré et aussi leurs variations différentielles Δ Pol et Δ Long. La direction du champ magnétique statique \mathbf{H} peut changer dans le plan xOy avec un angle ϕ par rapport l'axe Ox en utilisant une platine de

rotation d'une précision de 0.1° . La valeur du champ magnétique est modifiée en déplaçant l'aimant selon l'axe Oz à l'aide d'un moteur pas à pas. La valeur maximale du champ est 4 kOe (au contact de l'échantillon).

Nous considérons le cas d'un matériau magnétique avec un axe de facile aimantation dirigé selon l'axe Oy. Par l'application du champ magnétique avec deux angles complémentaires ϕ et $\pi-\phi$, l'aimantation va s'orienter selon les directions \mathbf{M}_ϕ et $\mathbf{M}_{\pi-\phi}$. Dans la figure IV.1, on peut voir que les projections de directions \mathbf{M}_ϕ et $\mathbf{M}_{\pi-\phi}$ sur l'axe Oy sont égales. A contrario, les projections de l'aimantation sur l'axe Ox ont le même module mais de directions opposées. La direction des composantes polaire, longitudinale et transverse est donnée par les axes Ox, Oy et Oz respectivement et leurs valeurs sont définies par les équations IV.1. La moitié de la somme et la moitié de la différence entre les signaux mesurés aux angles ϕ et $\pi-\phi$ donnent la composante polaire et longitudinale respectivement. De même, pour les mesures prises aux angles ϕ et $-\phi$, on obtient les mêmes composantes (équations IV.1).

$$\begin{aligned}
 Pol &= \frac{S(\phi) - S(\pi - \phi)}{2} = \frac{S(\phi) + S(-\phi)}{2} \\
 Long &= \frac{S(\phi) + S(\pi - \phi)}{2} = \frac{S(\phi) - S(-\phi)}{2}
 \end{aligned}
 \tag{IV.1}$$

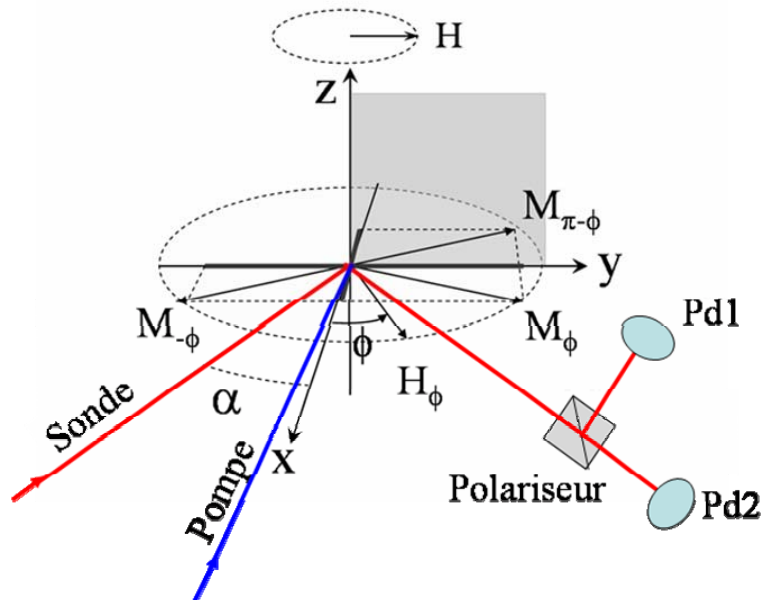


Figure IV.1 : La configuration expérimentale magnéto-optique de mesure pour les trois composantes du vecteur d'aimantation : polaire, longitudinale et transverse [2].

De la même façon, on peut restituer la composante transverse en mesurant le changement de la réflexion sans analyse de polarisation (équation IV.2).

$$Trans = \frac{R(\phi) - R(\pi - \phi)}{2} \quad \text{IV.2}$$

La figure IV.2 représente la variation temporelle de signal polarimétrique Kerr pour trois angles différents du champ magnétique statique : $\phi = 60^\circ$, 120° et -60° dans le cas de nanoparticules de cobalt implantées dans un substrat de SiO_2/Si . On voit bien l'effet de l'angle du champ appliqué sur le signe de la dynamique d'aimantation, et aussi sur l'amplitude du signal mesuré.

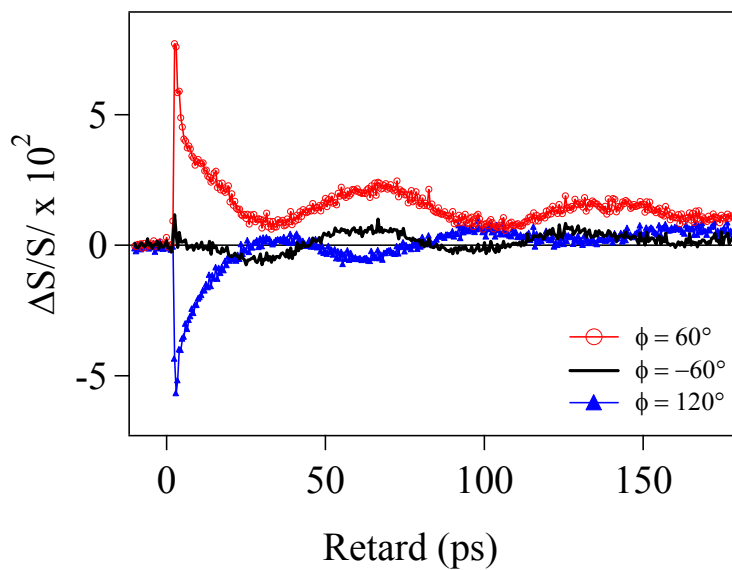


Figure IV.2 : Dynamique de signal polarimétrique Kerr $S(\phi)$ de nanoparticules de cobalt implantées dans SiO_2/Si . Les mesures sont prises pour trois angles différents du champ magnétique extérieur H ($= 2.8$ kOe) $\phi = 60^\circ$ (rouge), -60° (noir), $= 120^\circ$ (bleu). La densité d'excitation est 0.3 mJ.cm^{-2} .

IV.2. Dynamique ultrarapide d'aimantation de nanoparticules ferromagnétiques

Dans cette partie, nous étudions la dynamique d'aimantation de nanoparticules de cobalt implantées dans un substrat de silice (SiO_2/Si) excitées par des impulsions laser intenses. Comme nous avons vu dans le chapitre II, ces particules sont ferromagnétiques à la température ambiante et ont un diamètre moyen de 10 nm. Les variations temporelles de la composante polaire et longitudinale de l'aimantation sont obtenues par la mesure de la variation différentielle de la rotation Kerr pour deux angles complémentaires du champ magnétique 60° et -60° (figure IV.2). La figure IV.3 montre la variation différentielle de la

composante polaire en fonction du retard entre la pompe et la sonde (à gauche) et longitudinale (à droite) pour une densité d'excitation de 0.3 mJ.cm^{-2} . Les signaux sont normalisés par les mesures statiques polaire et longitudinale (Pol et Long). Dans les deux graphes, initialement la dynamique correspond à une diminution ultrarapide de l'aimantation qui se produit après la thermalisation des électrons ($> 200 \text{ fs}$). Cette désaimantation est suivie par une ré-aimantation partielle lors de la relaxation de l'énergie des électrons vers le réseau cristallin avec un temps caractéristique $\sim 0.8 \text{ ps}$. Aux temps plus longs ($> 20 \text{ ps}$), la dynamique des deux composantes montre un comportement oscillatoire associé à un mouvement de précession d'aimantation autour du champ effectif. Ce champ effectif contient le champ appliqué ainsi que le champ d'anisotropie magnétique (magnéto-cristalline et de surface). Cette précession s'amortit assez rapidement en un temps de 120 ps . L'origine de cette dynamique de précession peut être associée soit au changement rapide de l'anisotropie magnéto-cristalline dans les premières picosecondes relié à la variation de la température électronique, soit à la variation temporelle des interactions dipolaires. La phase et la période de la précession dépendent de la direction et l'amplitude du champ magnétique appliqué H . Lorsque l'amplitude du champ diminue de 3.3 kOe à 2.8 kOe , la période de la précession augmente de 67 à 74 ps .

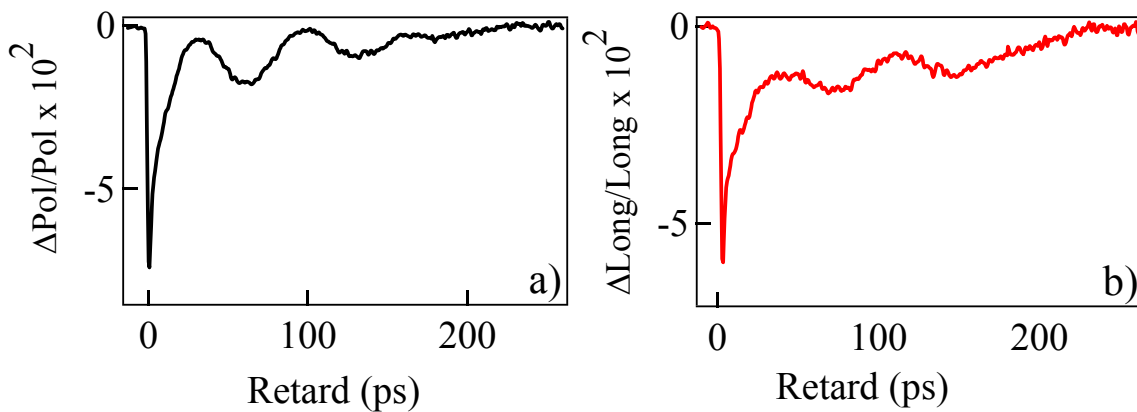


Figure IV.3 : Dynamique d'aimantation de la composante polaire (à gauche), et longitudinale (à droite) pour les particules cobalt de diamètre de 10 nm implantées dans le SiO_2/Si . $H = 2.8 \text{ kOe}$, $I_{\text{pompe}} = 0.3 \text{ mJ.cm}^{-2}$.

La mesure des trois composantes du vecteur d'aimantation dans l'espace nous donne la possibilité de visualiser la trajectoire de l'aimantation en temps réel. Sur la figure IV.4, nous présentons la trajectoire de l'aimantation mesurée dans des conditions similaires à la figure IV.3 dans le plan polaire/longitudinal. Clairement, l'excursion initiale de la trajectoire

correspond à la diminution ultrarapide et la relaxation partielle de l'aimantation, comme nous l'avons discuté dans le paragraphe précédent. Deux boucles associées à la précession d'aimantation sont visibles dans le plan polaire/longitudinal avant la relaxation complète de l'aimantation vers sa position initiale $\sim > 300$ ps (voir zoom au bas de la figure).

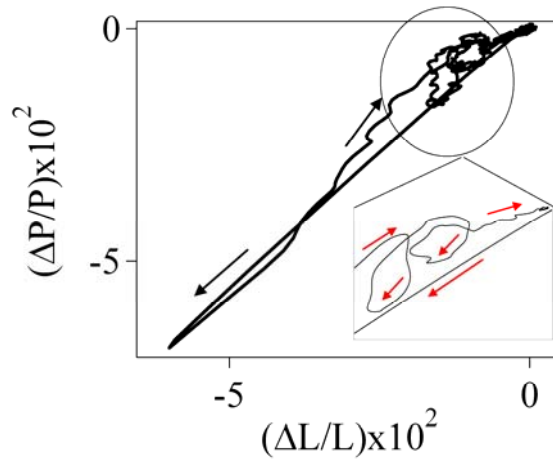


Figure IV.4 : Trajectoire d'aimantation dans le plan longitudinale/polaire. En insert : zoom de deux boucles de précession. Trajectoire d'aimantation dans l'espace 3 D (longitudinale, polaire, transverse).

La figure IV.5 représente la trajectoire du vecteur d'aimantation des nanoparticules de Co/SiO₂/Si dans l'espace tridimensionnel x, y, z correspondant respectivement aux directions polaire, longitudinale et transverse et pour une gamme temporelle de 0 à 400 ps. Ce résultat montre la puissance de notre méthode pour suivre les mécanismes associés à la dynamique d'aimantation dans l'espace et en temps réel.

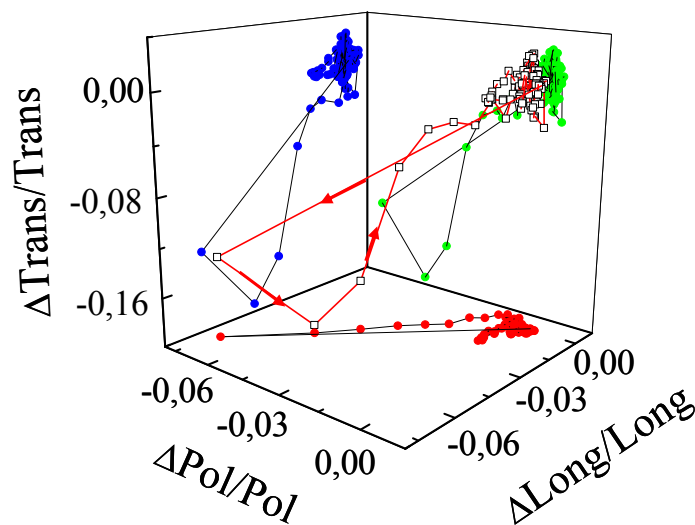


Figure IV.5 : Trajectoire d'aimantation dans l'espace 3 D (longitudinale, polaire, transverse).

IV.2.1. Le rôle de l'anisotropie magnétique

Pour clarifier l'influence de l'anisotropie sur la dynamique d'aimantation dans des nanoparticules ferromagnétiques de $\text{Co/SiO}_2/\text{Si}$, nous avons mesuré la trajectoire de l'aimantation dans le plan longitudinal/polaire pour différentes densités d'excitation laser. Soulignons que les particules ont été implantées presque perpendiculairement par rapport la surface de substrat (l'échantillon est orienté à un angle de 83° par rapport à l'axe du faisceau d'ions). Des mesures des cycles d'hystérèse réalisées par SQUID selon les deux axes parallèle et perpendiculaire par rapport au plan de l'échantillon montrent que l'axe de facile aimantation se trouve dans le plan de l'échantillon. Comme nous montrons sur la figure IV.6.a), le champ magnétique nécessaire pour saturer les particules selon l'axe Oz est de 4 kOe, alors qu'il n'est que de 2 kOe dans le plan yOx de l'échantillon. Deux mécanismes peuvent expliquer cette anisotropie, l'un associé aux probables interactions dipolaires entre particules qui tendraient à rapprocher leur comportement de celui d'un film [3], l'autre lié aux effets d'anisotropie magnéto-cristalline via les interactions spin-orbite. Dans ce cas, si on applique un champ magnétique avec un petit angle par rapport l'axe Oz, le champ effectif H_{eff} ($H_{\text{appliqué}} + H_{\text{anis}}$) va s'orienter selon une direction hors du plan de l'échantillon (figure IV.6.b)). On peut extraire des informations importantes de la trajectoire d'aimantation sur l'influence de l'anisotropie magnétique sur la réorientation initiale de l'aimantation. La figure IV.6.d) présente la trajectoire de l'aimantation dans le plan polaire/longitudinale pour trois intensités laser $I_1 = 0.3 \text{ mJ.cm}^{-2}$, $I_2 = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$, $I_3 = 2 \text{ mJ.cm}^{-2}$. Lorsqu'on augmente l'intensité laser, l'amplitude des deux signaux différentiels polaire et longitudinal augmente après la thermalisation des électrons ($\sim 200 \text{ fs}$). Le temps de relaxation spin-réseau augmente avec la densité d'excitation laser comme le montre la figure IV.6.d) qui présente le signal polaire différentiel pour trois densités d'excitation de la pompe. Ce temps caractéristique varie de 0.85 ps pour I_1 à 3 ps pour I_3 . Cette variation est due à la dépendance de la chaleur spécifique électronique avec la température électronique [4, 5]. Par ailleurs, pour les fortes densités d'excitation laser, on remarque que le rapport signal polaire/longitudinal augmente (de l'ordre de 2 pour I_3). De plus, la composante polaire relaxe plus rapidement que la composante longitudinale. Nous relierons cette différence à la diminution de l'amplitude du champ d'anisotropie magnétique avec l'augmentation de la température électronique. Dans le cas d'une anisotropie magnétique uniaxiale (le cas des nanoparticules de Co), la dépendance en température de l'anisotrope magnéto-cristalline $K(T)$ est donnée analytiquement dans la référence [6] par la relation :

$$K(T) = K(0) \left(\frac{|M(T)|}{M_s} \right)^{10} \quad \text{IV.3}$$

M_s l'aimantation de saturation, la température T étant la température du réseau T_l .

Donc, la diminution du module du champ d'anisotropie après la thermalisation des électrons (> 200 fs) conduit à une réorientation préférentielle du champ effectif vers l'axe polaire (Ox) (figure IV.6b).

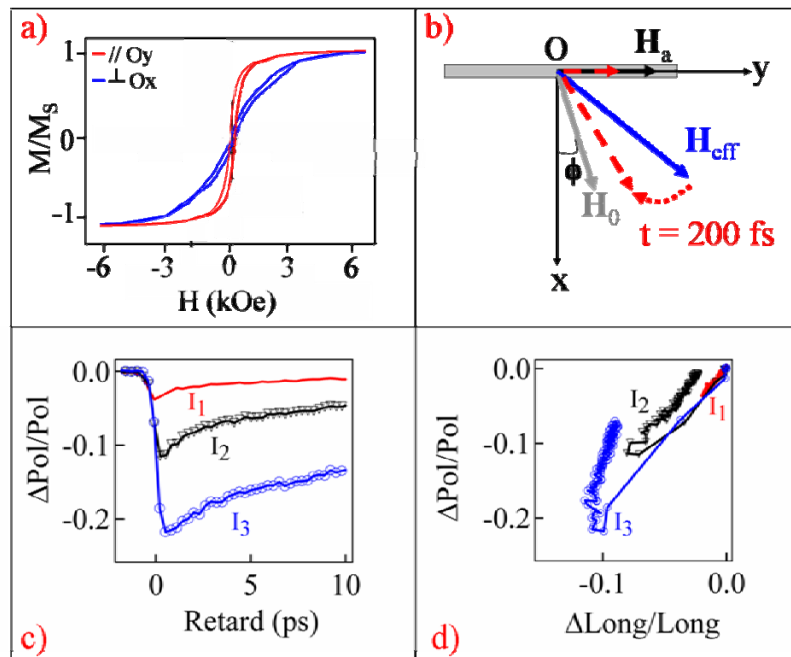


Figure IV.6: a) Cycles d'aimantation normalisés mesurés dans le plan de l'échantillon (rouge), perpendiculaire au plan de l'échantillon (bleu). b) Configuration des différentes composantes du champ effectif dans le cas des nanoparticules. Après absorption de la pompe, une réorientation ultrarapide du champ effectif ($t = \sim 200$ fs). c) Dynamique d'aimantation aux temps courts pour différentes densités d'excitation : $I_1 = 0.3 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (rouge), $I_2 = 1 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (noir) et $I_3 = 2 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (bleu). d) Les trajectoires d'aimantation à 2 D correspondants.

IV.2. 2. Influence de l'intensité du laser sur l'amplitude de la précession

Nous avons étudié dans le paragraphe précédent l'influence de la température électronique sur la réorientation initiale de l'aimantation via le changement dynamique du champ effectif. Ce changement dû à la variation de l'anisotropie soit magnéto-cristalline soit de surface n'affecte pas seulement la direction du champ effectif mais aussi son amplitude. La dépendance de la période de précession avec l'amplitude du champ effectif conduit à une variation de la fréquence et aussi de l'amplitude de la précession en fonction de la température. Pour examiner cet effet, nous avons réalisé des mesures de la dynamique de précession d'aimantation pour plusieurs densités d'excitation laser. Comme le montre la

figure IV.7, les oscillations de la précession de la composante polaire de l'aimantation sont plus claires lorsque la densité d'excitation laser diminue de 6 mJ.cm^{-2} à 1.5 mJ.cm^{-2} . Cependant, pour la plus faible densité d'excitation laser ($I_{\text{pompe}} = 0.75 \text{ mJ.cm}^{-2}$), le signal de précession est difficile à observer en raison du faible rapport signal/bruit. De plus, la fréquence et l'amortissement de ces oscillations ne changent pas beaucoup avec l'intensité laser. Cela plaide en faveur de la diffusion (scattering) avec la surface, assisté par le régime fortement perturbé à l'intensité laser 6 mJ.cm^{-2} (perte de phase des électrons et un renversement de spins plus efficace).

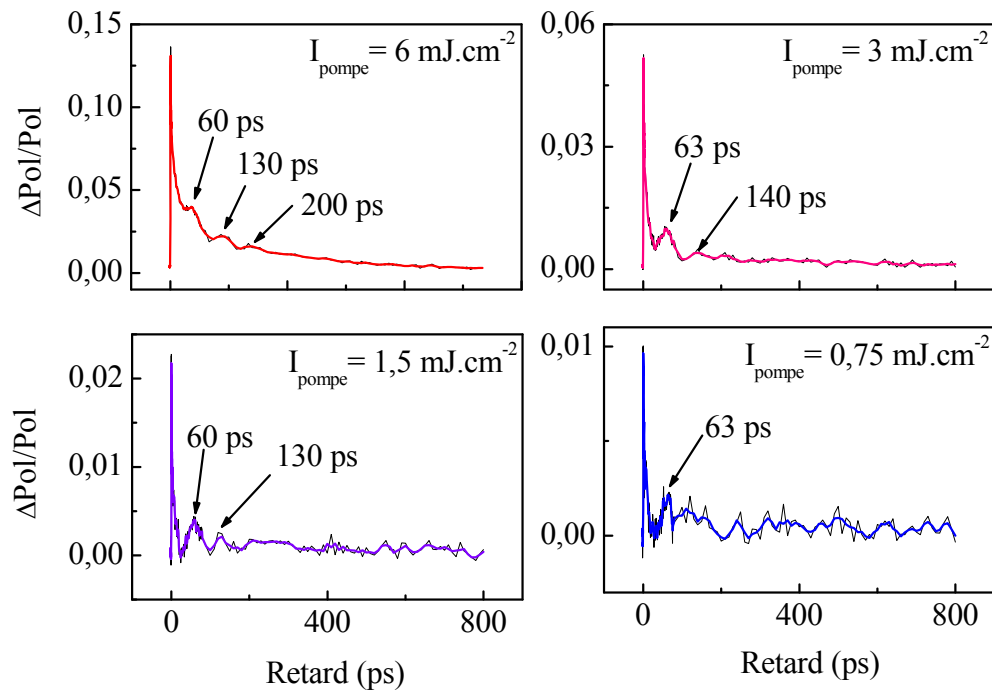


Figure IV. 7 : Variation temporelle de la composante polaire de l'aimantation en fonction de l'intensité du laser dans les particules ferromagnétiques de Co/SiO₂/Si (D = 6.5 nm). a) pour $I_{\text{max}} = 6 \text{ mJ.cm}^{-2}$, b) pour $I_{\text{max}}/2$, c) pour $I_{\text{max}}/4$ et d) pour $I_{\text{max}}/8$.

Ainsi, nous avons montré la performance de la technique de mesure de la trajectoire de l'aimantation dans les trois directions de l'espace et en temps réel pour étudier la précession d'aimantation dans des particules ferromagnétiques. Cependant, dans ce type d'échantillons, nous n'avons pu accéder à la dynamique des électrons. En effet, la forte absorption du substrat de silicium n'a pas permis de mesurer la dynamique de transmission des nanoparticules de cobalt ferromagnétiques. Quant à la réflexion différentielle, elle est également dominée par la réponse du silicium. Nous nous sommes alors intéressés à des nanoparticules implantées dans le saphir (un matériau transparent) dont les propriétés morphologiques et magnétiques diffèrent drastiquement des nanoparticules implantées dans SiO₂/Si [3, 7, 8].

IV.3. Dynamique d'aimantation de nanoparticules superparamagnétiques

IV.3.1. Introduction

Cette partie est consacrée à la dynamique d'aimantation de nanoparticules superparamagnétiques de Cobalt implantées dans le saphir (Al_2O_3). Depuis deux décennies, beaucoup d'études se sont focalisées sur le comportement statistique de l'aimantation (fluctuations de l'aimantation). Spécialement, des travaux ont été réalisés dans le domaine spectral [9], en utilisant différentes techniques comme la spectroscopie Mössbauer, la résonance ferromagnétique et la diffusion des neutrons [10]. Cependant à notre connaissance il n'y a jusqu'ici aucune étude en temps réel du régime dynamique cohérent de particules superparamagnétiques. L'objectif de cette étude expérimentale est de mettre en évidence le caractère gyroscopique d'aimantation précédant les fluctuations superparamagnétiques prédit par Néel et Brown [11, 12]. La trajectoire du vecteur de l'aimantation est induite par des impulsions laser femtosecondes et suivie d'une manière déterministe en employant la configuration pompe sonde magnéto-optique résolue en temps. De plus, la résolution temporelle donnée par la durée des impulsions laser ~ 120 fs nous permet de déterminer les différents paramètres associés à ce mouvement cohérent de l'aimantation (la fréquence de précession ν et le paramètre de damping η). La détermination de ces paramètres permet de calculer la valeur du temps de relaxation de l'aimantation.

Rappelons, que le temps de relaxation d'une particule mono-domaine est donné par le modèle dynamique de Néel Brown (chapitre I) par la forme :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} \exp\left(-\frac{KV}{k_B T}\right) \quad \text{IV.4}$$

K est la constante d'anisotropie magnéto-cristalline. V le volume de la particule, $k_B T$ l'énergie thermique. τ_0 représente le temps de relaxation de Néel, donné par la relation démontrée dans le premier chapitre.

$$\frac{1}{\tau_0} = \frac{2M_s \eta}{(M_s \eta)^2 + \gamma_0^{-2}} \sqrt{\frac{\mu_0 V M_s H_c^3}{2\pi k_B T}} ; H_c = \frac{2K}{\mu_0 M_s} \quad \text{IV.5}$$

M_s est l'aimantation de saturation, η est le facteur de damping de Gilbert et γ_0 est le facteur gyromagnétique .

Dans l'expression du pré-facteur, il apparaît deux termes qui contribuent à τ_0 . Un premier terme cohérent qui contient les paramètres du mouvement gyroscopique η et γ_0 , un deuxième terme incohérent qui contient le rapport entre l'énergie d'anisotropie KV et l'énergie

thermique $k_B T$. Notons que bien que le comportement gyroscopique de l'aimantation soit décrit formellement dans l'expression IV.5, le paramètre τ_0 est assez mal connu, les valeurs publiées dans la littérature variant de 10^{-9} à 10^{-12} s selon le matériau et les conditions expérimentales.

Un schéma de la trajectoire d'aimantation et du potentiel d'énergie d'une particule mono-domaine est présenté dans la figure IV.8. Comme nous avons vu dans le premier chapitre, dans le cas d'une anisotropie uni-axiale, le potentiel d'énergie de la particule possède deux minima θ_1 et θ_2 associés aux états stables de l'aimantation sous champ magnétique extérieur H . La dynamique cohérente de l'aimantation est symbolisée par la trajectoire de l'aimantation dans l'un des deux puits (précession et damping) (fig IV.9 a). La détermination de ν et η associés à la dynamique intra-puit demande des investigations de la trajectoire de l'aimantation à une échelle de temps plus petite que le temps de relaxation τ_0 (10^{-9} - 10^{-12} s). La technique magnéto-optique pompe sonde résolue en temps permet d'obtenir ces informations grâce à la résolution temporelle du système laser (\sim dizaines de femtosecondes) d'une part et à l'accessibilité aux trois composantes spatiales de l'aimantation (section précédente) d'autre part.

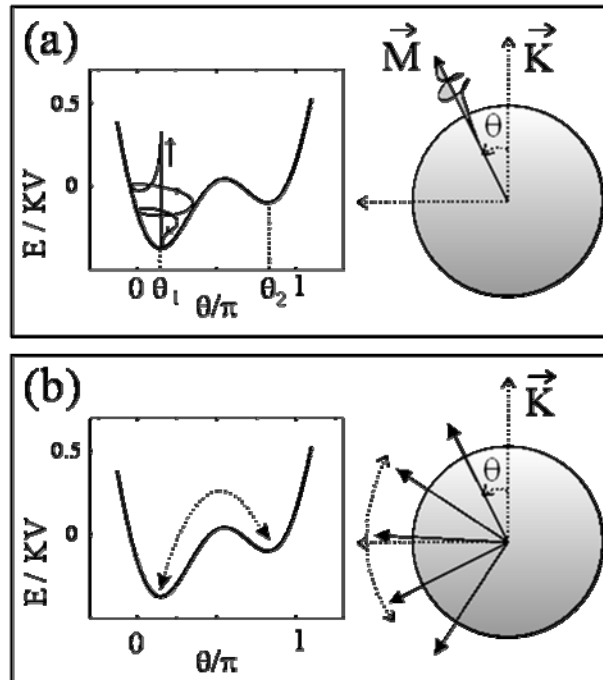


Figure IV.8 : Illustration des fluctuations thermiques et du mouvement gyroscopique de l'aimantation. θ est l'angle entre la direction de l'aimantation \vec{M} et l'axe d'anisotropie \vec{K} . θ_1 et θ_2 sont les deux minima de potentiel.

Une condition essentielle pour accéder à la dynamique cohérente de l'aimantation est de s'affranchir des fluctuations statistiques à travers la barrière d'énergie KV (figure IV.8.b). C'est notamment très important dans le cas d'expériences réalisées avec un taux de répétition laser assez élevé (5 kHz dans notre cas), où le délai entre deux impulsions successives peut être plus long que le temps de fluctuations thermiques. Ainsi, si le système n'a pas relaxé vers le même état initial entre chaque impulsion laser, cela conduit au moyennage de l'aimantation. L'une des méthodes utilisées pour surmonter cet effet est l'application d'un champ magnétique statique H assez élevé pour saturer les nanoparticules dans une direction donnée. Cette méthode permet également d'éliminer les fluctuations spatiales inhérentes à notre mesure statistique sur un grand nombre de nanoparticules. Ainsi, la hauteur de barrière d'énergie entre les deux minimums θ_1 et θ_2 est suffisamment grande de sorte que, entre chaque impulsion du laser, le système revient à son état initial défini par exemple par l'angle θ_1 . En conséquence, le régime temporel exploré concerne seulement la dynamique d'aimantation dans un seul puit en minimisant le facteur exponentiel $\exp(KV/k_B T)$.

IV.3.2. Dynamique de la transmission (des électrons)

Nous commençons par l'étude de la dynamique électronique des nanoparticules de cobalt de diamètre de 4 nm implantées dans le saphir. L'avantage de saphir par rapport au silicium est la possibilité d'avoir des informations sur la dynamique électronique soit par des mesures de transmission soit par des mesures de réflexion, ou les deux simultanément. La figure IV.9 représente la variation de la transmission différentielle en fonction du retard entre la pompe et la sonde aux temps courts (fig IV.9.a)) et aux temps longs (fig IV.9.b)). Les mesures sont prises pour deux densités d'excitation laser $I_1 = 5.1 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (lignes continues) et $I_2 = 1.7 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (cercles ouverts), le facteur de re-normalisation de chaque courbe est indiqué. Nous avons également superposé sur les courbes de la figure IV.9a), le signal de corrélation croisée pompe-sonde normalisé. Plusieurs contributions associées aux différents mécanismes de relaxation électronique participent à la dynamique temporelle de $\Delta T/T$ à l'instar de la dynamique induite par laser femtoseconde dans les films ou les nanoparticules métalliques [13, 14]. Dans un premier temps, les électrons excités au dessus du niveau de Fermi ne sont pas thermalisés. Le processus de thermalisation des électrons n'est pas instantané dans les métaux dû au principe d'exclusion de Pauli et dure $\sim 350 \text{ fs}$. La deuxième étape de la dynamique est l'équilibre entre la température électronique et celle du réseau, un processus qui se produit via les interactions électron-phonon. Comme nous avons discuté dans les sections précédentes, le temps de relaxation électron-phonon τ_{e-1} augmente avec la densité

d'excitation car la chaleur spécifique électronique dépend de la température électronique comme le montre la figure IV.9.c) dans le cas des nanoparticules de cobalt de 4 nm de diamètre. Quand les électrons et le réseau sont en équilibre, l'énergie thermique est transférée vers l'environnement. Selon la nature du milieu environnant, ce processus de relaxation peut se produire en plusieurs étapes. Pour les nanoparticules de cobalt dispersées dans la matrice diélectrique de saphir, le transfert d'énergie entre les particules et la matrice est rapide (~ 7 ps) tandis que le temps de la diffusion thermique globale en dehors de la région spatiale excitée est plus long (~ 730 ps). La composante rapide de la relaxation est reliée au grand rapport surface/volume de la particule favorisant un transfert efficace d'énergie vers la matrice. Des effets analogues ont été observés dans des particules d'argent de différentes tailles co-déposées dans différentes matrices et le temps de relaxation associé a été trouvé dépendant de la chaleur spécifique relative de la particule et de la matrice [15, 16, 17].

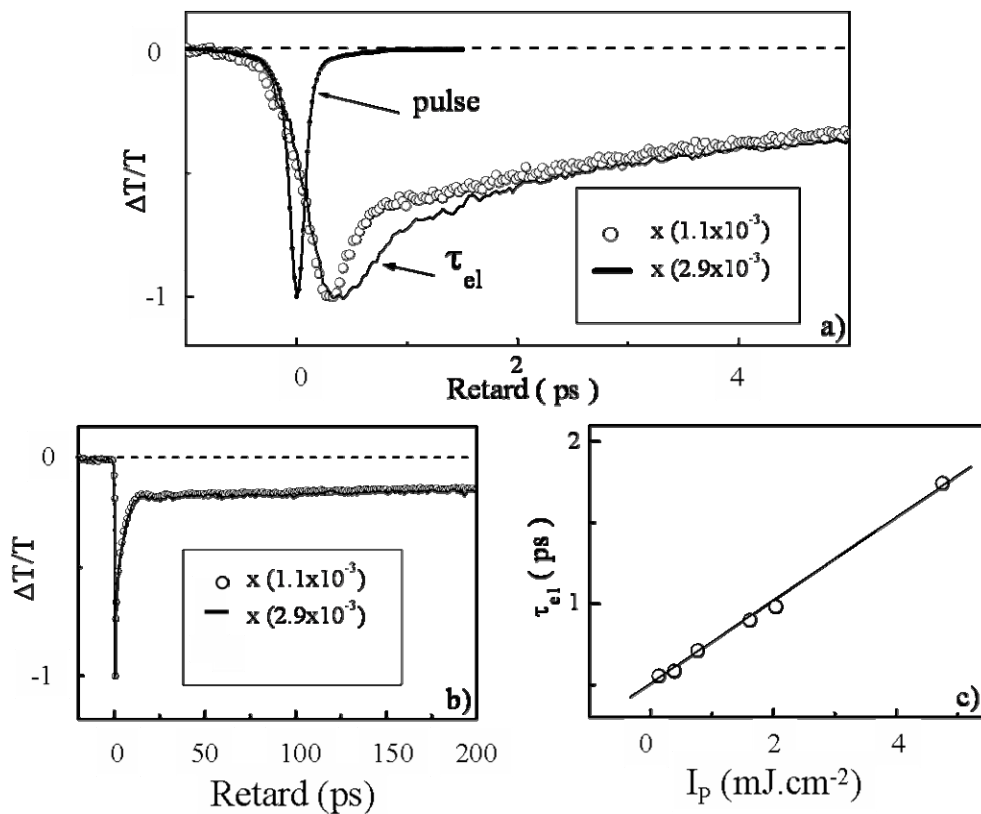


Figure IV.9 : Dynamique de transmission des nanoparticules de Cobalt implantées dans Al₂O₃ (d = 4 nm). a) Dynamique aux temps courts pour deux densités d'excitation laser $I_1 = 5.1 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (lignes continues) et $I_2 = 1.7 \text{ mJ.cm}^{-2}$ (cercles ouverts), corrélation du signal pompe-sonde (150 fs, Symboles). c) Comportement de la dynamique aux temps longs.

IV.3.3. Dynamique ultrarapide d'aimantation

En utilisant la même technique de mesure de la trajectoire d'aimantation que dans le cas des particules ferromagnétiques implantées dans la silice, nous avons étudié des échantillons de nanoparticules super-paramagnétiques de tailles différentes $d = 4$ nm et 2.5 nm décrits au chapitre II implantées dans un substrat de saphir (Al_2O_3).

La nature gyroscopique de la dynamique d'aimantation des particules associée à l'excursion rapide dans le puit de potentiel est présentée dans la figure IV.10. Ce caractère gyroscopique est clairement observé dans la figure IV.10.b) via la projection de la trajectoire de l'aimantation dans le plan longitudinal/polaire avec une boucle de précession rapidement amortie. La figure IV.10.a) montre la dynamique correspondant à la variation différentielle de la composante polaire $\Delta\text{Pol}/\text{Pol}$ et longitudinale $\Delta\text{Long}/\text{Long}$ en fonction du temps. La corrélation entre la dynamique de désaimantation et des électrons apparaît clairement en comparant les figures IV.9.a) et IV.10.a). Initialement, une désaimantation ultrarapide se produit et atteint son maximum pour un retard de ~ 400 fs qui correspond au temps de thermalisation des électrons. Elle est suivie par une ré-aimantation partielle via deux étapes de relaxation. La première étape correspond à la relaxation électron-réseau avec un temps de 1 ps. La deuxième étape est la précession et l'atténuation (damping) de l'aimantation autour du champ effectif. La fréquence de précession mesurée vaut $\nu = 20$ GHz, le temps d'atténuation (damping) est $\eta = 90$ ps. Les mesures ont été réalisées pour deux angles complémentaires du champ magnétique appliqué 60° et -60° par rapport l'axe Ox , l'amplitude du champ est 2.8 kOe.

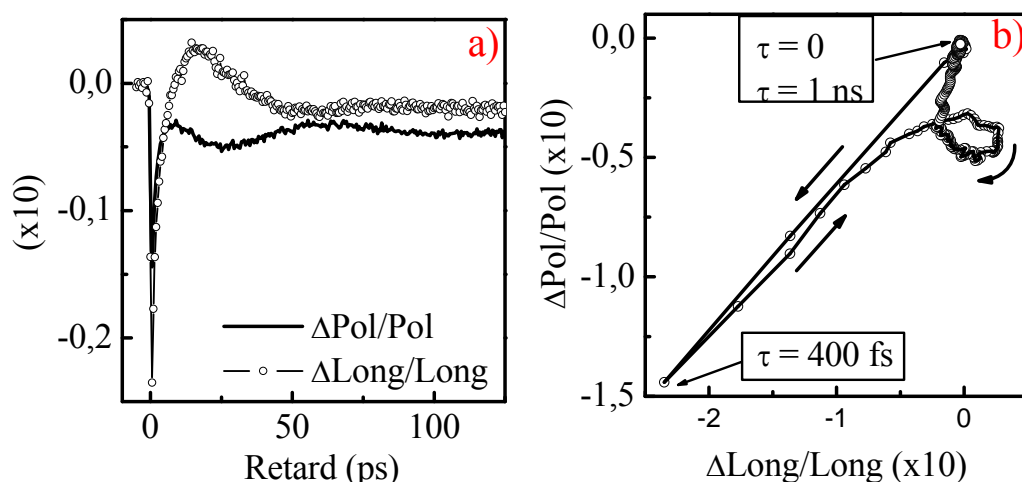


Figure IV.10 : Dynamique d'aimantation de nanoparticules de Co implantées dans le saphir ($d = 4$ nm). a) Dynamique des composantes Kerr polaire (lignes continues) et longitudinale (cercles ouverts). b) Trajectoire d'aimantation dans le plan polaire/longitudinal.

Notons que la fréquence de la précession varie de 14 GHz à 25 GHz lorsque l'amplitude du champ magnétique varie de 2.1 à 3.3 kOe (figure IV.11).

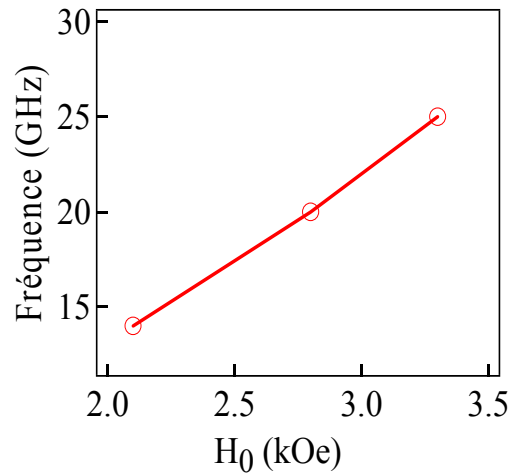


Figure IV.11 : Variation de la fréquence de précession en fonction de l'amplitude du champ magnétique appliqué.

Le changement ultrarapide de la température agit comme une excitation Dirac (δ) de l'aimantation qui induit un changement de module et d'orientation de l'aimantation. Cette réorientation est due à la variation dynamique du champ effectif reliée à la dépendance temporelle de l'anisotropie et aux interactions d'échanges comme il a été montré dans le cas de films de cobalt [18, 19]. On peut faire une analogie entre notre méthode utilisée pour induire la dynamique cohérente de l'aimantation via des impulsions laser femtosecondes et la force fluctuante aléatoire de l'agitation thermique qui agit sur les particules superparamagnétiques. Ainsi, la force aléatoire de type Langevin introduite par Brown dans l'équation de Gilbert pour expliquer l'agitation thermique [12] est remplacée ici par une petite perturbation introduite par l'impulsion optique du laser afin d'induire le même comportement gyroscopique.

En utilisant les valeurs expérimentales mesurées (ν , η) et les constantes magnétiques des particules étudiées M_s , K à la température ambiante, nous pouvons calculer le temps de relaxation à partir de l'équation IV.5.

A la température ambiante (300 K), $M_s = 1.5 \times 10^5 \text{ A.m}^{-1}$ et $K = 0.57 \times 10^5 \text{ J.m}^{-3}$, nous trouvons le temps de relaxation de Néel (le pré-facteur) $\tau_0 = 55 \times 10^{-12} \text{ s}$ avec un terme cohérent de $21 \times 10^{-12} \text{ s}$ et un terme incohérent de 2.6. Dans ce cas, le temps de relaxation τ vaut 0.21 ns, soit un résultat de l'ordre de grandeur des temps mesurés par différentes

techniques [9, 10]. La diminution du diamètre de particules peut mener à des estimations différentes pour le temps de relaxation de Néel τ_0 car les propriétés magnétiques changent aussi (aimantation de saturation, anisotropie magnétique et damping).

La dépendance de la dynamique d'aimantation avec la taille des nanoparticules est évidente dans les particules de cobalt de diamètre de 2.5 nm. Comme le montre la figure IV.12, une diminution ultrarapide de la composante polaire se produit après l'absorption de l'impulsion pompe (pour une densité d'excitation de 6 mJ.cm^{-2}). Cette désaimantation est suivie par une précession de l'aimantation rapidement amortie autour du champ effectif : la période de la précession est 43 ps (soit $\nu = 23 \text{ GHz}$) pour un champ appliqué de 2.8 kOe, le temps d'amortissement η est 60 ps. Dans le prochain paragraphe, nous reviendrons à ce résultat et discuterons l'effet de la taille des particules sur le comportement de la dynamique d'aimantation et en particulier sur le damping.

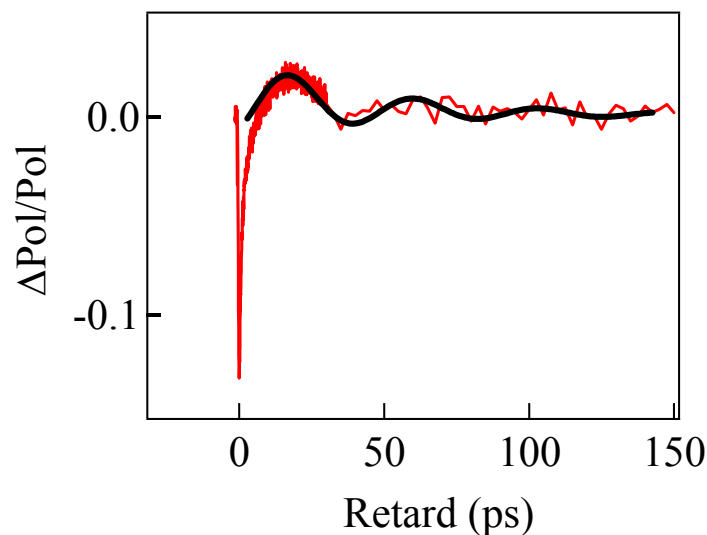


Figure IV.12 : Dynamique ultrarapide de la composante polaire de l'aimantation dans des nanoparticules de Cobalt de diamètre de 2.5 nm.

IV.3.4. Comparaison entre les trajectoires de l'aimantation dans les particules ferro et super-paramagnétiques

Nous avons fait une comparaison entre la dynamique d'aimantation dans les particules superparamagnétiques de $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$ ($d = 4 \text{ nm}$) et les particules ferromagnétiques de $\text{Co}/\text{SiO}_2/\text{Si}$ ($d = 10 \text{ nm}$). Les mesures statiques de SQUID (chapitre II) montrent que les particules implantées dans le saphir ont une anisotropie magnétique perpendiculaire (selon l'axe Ox) tandis que les particules ferromagnétiques ont une anisotropie magnétique planaire

(selon l'axe Oy). Les trajectoires initiales (0 à 30 ps) de l'aimantation dans le plan polaire/longitudinal pour les deux échantillons sont présentées sur la figure IV.13 pour une densité d'excitation laser de 2 mJ.cm^{-2} et un champ magnétique de 2.8 kOe. La désaimantation initiale est présente dans les deux échantillons et se manifeste via la diminution simultanée des signaux polaire et longitudinal pendant les premières centaines de femtosecondes. Cependant, durant la reconstitution partielle du module de l'aimantation, le vecteur de l'aimantation prend un trajet clairement différent pour chaque échantillon. Dans le cas des nanoparticules avec une anisotropie perpendiculaire (Al_2O_3) le signal longitudinal relaxe rapidement (fig IV.13.a)) tandis que pour le cas des nanoparticules avec anisotropie planaire (SiO_2/Si), c'est le signal polaire qui tend à relaxer le plus rapidement (fig IV.13.b)). Ce comportement peut être relié à l'effet de l'anisotropie magnétique (magnéto-cristalline) sur la réorientation initiale de l'aimantation comme nous avons discuté précédemment [18].

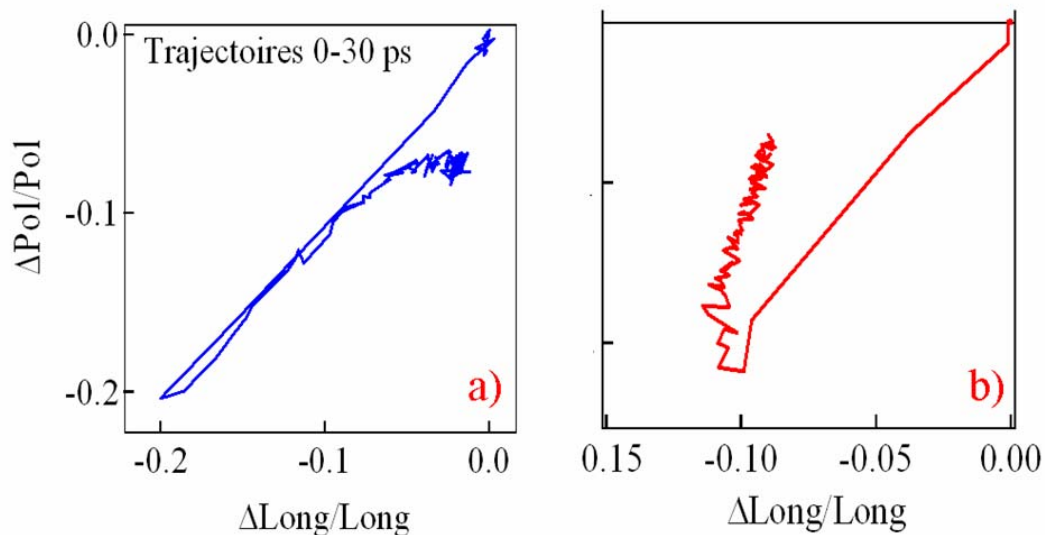


Figure IV.13 : Effets de l'anisotropie magnétique sur la dynamique de l'aimantation. Trajectoires d'aimantation pour une densité d'excitation pompe 2 mJ.cm^{-2} ($H = 2.8 \text{ kOe}$) dans des nanoparticules superparamagnétiques(a), et ferromagnétiques (b).

IV.4. Effet de réduction de taille sur l'amortissement de l'aimantation

Dans cette section, nous examinons l'effet de la réduction de taille de particules sur le facteur d'amortissement (damping). Pour clarifier cet effet, nous avons mesuré et comparé le temps d'atténuation η pour différents échantillons : un film de cobalt S_1 et des particules de cobalt S_2 , S_3 et S_4 et. L'échantillon S_1 est un film de cobalt de 16 nm d'épaisseur épitaxié sur un substrat de saphir, S_2 contient des particules ferromagnétiques de cobalt de diamètre ~ 10 nm implantées dans la silice (SiO_2/Si). Les échantillons S_3 et S_4 contiennent des particules superparamagnétiques de cobalt implantées dans le saphir de diamètre de 4 nm et 2.5 nm respectivement.

Pour des petites fréquences de précession, les constantes d'amortissement de Gilbert α et η sont reliées par l'équation [20] :

$$\alpha = \frac{2}{M_s} \eta \gamma_0 \quad \text{IV.6}$$

$\gamma_0 = 2.4 \times 10^5 \text{ m.A}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ est le facteur gyromagnétique pour le cobalt.

En utilisant les valeurs mesurées de η et des aimantations de saturation M_s de chaque échantillon (film et nanoparticules) nous a permis de calculer la constante d'amortissement α .

Pour S_1 : $\eta_{\text{film}} = 3 \times 10^{-10} \text{ s}$ [1], $\alpha_{\text{film}} = 0.02$ pour $M_{S,\text{film}} = 1.37 \times 10^6 \text{ A.m}^{-1}$.

Pour S_2 : $\eta_{10 \text{ nm}} = 1.2 \times 10^{-10} \text{ s}$, $\alpha_{10 \text{ nm}} = 0.43$ pour $M_{S,10 \text{ nm}} = 1.6 \times 10^5 \text{ A.m}^{-1}$.

Pour S_3 : $\eta_{4 \text{ nm}} = 0.9 \times 10^{-10} \text{ s}$, $\alpha_{4 \text{ nm}} = 0.62$ pour $M_{S,4 \text{ nm}} = 1.5 \times 10^5 \text{ A.m}^{-1}$.

Pour S_4 : $\eta_{2.5 \text{ nm}} = 0.6 \times 10^{-10} \text{ s}$, $\alpha_{2.5 \text{ nm}} = 3$ pour $M_{S,2.5 \text{ nm}} = 4.5 \times 10^4 \text{ A.m}^{-1}$.

A partir de ces mesures, nous observons que la valeur de l'amortissement α est plus importante pour les nanoparticules que pour le film. De plus, elle augmente régulièrement avec la diminution de la taille de particules. Les mécanismes responsables de l'augmentation de l'amortissement (damping) ne sont pas parfaitement clairs pour le moment en raison de la complexité des systèmes étudiés (effet d'interactions dipolaires, anisotropie de surface, dispersion de particules...). Cependant, nos résultats suggèrent que l'interface diélectrique entre métal/substrat joue un rôle important pour atténuer la précession de l'aimantation. Des observations similaires a été reportées dans plusieurs groupes pour des nanoparticules de cobalt et $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ [9, 21, 22]. Respaud et al. [21] ont étudié la résonance ferromagnétique des nanoparticules de cobalt. Les auteurs ont montré que l'amortissement α augmente de 0.3 à 0.55 lorsque le nombre d'atomes par particule diminue de 300 à 150 atomes. Cette augmentation a été expliquée par le réarrangement des directions de spins pendant la

précession (désordre des spins) à l'interface diélectrique particule-matrice. En utilisant la spectroscopie de Mössbauer avec des mesures AC de la susceptibilité magnétique, Dormann et al. [22] ont reporté des valeurs d'amortissement α comprises entre 1 et celle du massif (film) (< 0.1) pour des particules de $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ sans interactions magnétiques. Ils ont utilisé la même explication que celle de Respaud et al. [21]. De plus, ils ont trouvé que dans le cas des particules en forte interaction, les interactions magnétiques dipolaires augmentent le damping en comparaison par rapport au cas des particules sans interaction. L'effet des interactions magnétiques semble diminuer le désordre magnétique à la surface de la particule et introduit de plus des irrégularités additionnelles dans le volume à cause de leurs variations dans l'espace. Ce dernier résultat est contredit par nos mesures c'est-à-dire que l'amortissement n'est pas affecté par les interactions entre particules. L'échantillon S_4 ($d = 2.5$ nm) est implanté dans la même matrice (saphir) que l'échantillon S_3 ($d = 4$ nm) avec une plus faible concentration de cobalt ($3 \cdot 10^{-16}$ at.cm⁻²) qui pourtant exhibe un amortissement plus grand par rapport l'échantillon S_3 (10^{-17} at.cm⁻²).

Ainsi, nos résultats confortent l'interprétation de l'effet de l'interface particule-matrice sur le désordre magnétique comme une source de l'atténuation de la précession de l'aimantation dans les nanoparticules mono-domaines de cobalt [23].

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude expérimentale détaillée de la dynamique d'aimantation mesurée dans des nanoparticules ferromagnétiques et superparamagnétiques de différentes tailles, en utilisant des impulsions laser femtosecondes. L'avantage de notre technique de mesures est qu'elle permet de suivre en temps réel la trajectoire d'aimantation dans les trois directions de l'espace (longitudinale, polaire et transverse) après l'excitation optique. Les mesures ont notamment mis en évidence la désaimantation ultrarapide, la précession et l'amortissement de l'aimantation autour du champ effectif. L'étude de la réorientation initiale de l'aimantation en fonction de l'intensité du laser, du champ magnétique et de la nature du substrat nous a permis d'obtenir la signature de la variation de l'anisotropie magnétique en fonction du temps.

Pour les nanoparticules de diamètre $d \leq 4$ nm, nous avons montré le caractère gyroscopique de l'aimantation précédant les fluctuations superparamagnétiques prédit par Néel [11]. Ce caractère n'a jusqu'à présent pas été observé en temps réel en raison de l'échelle de temps très brève associée au temps relaxation de l'aimantation τ ($\sim 10^{-12}$). Nous avons discuté ces observations expérimentales dans le contexte du modèle dynamique de Brown [12] dans lequel les différents paramètres τ_0 (préfacteur dans la dynamique d'aimantation), $1/\gamma_0 H_c$ (période de précession) et η (damping) peuvent prendre les mêmes valeurs (centaines de picosecondes). Les mesures de transmission et réflexion différentielles sur des nanoparticules de cobalt implantées dans le saphir nous ont permis de corréler la dynamique ultrarapide de désaimantation à la dynamique électronique dans ces particules. De plus, nous avons mis en évidence que la relaxation électron-phonon caractéristique de la dynamique ultrarapide des métaux est suivie d'un autre type de relaxation associée au transfert d'énergie de la particule vers la matrice diélectrique.

Enfin, nous avons exploré l'effet de la réduction de taille des particules sur la trajectoire associée au mouvement gyroscopique de l'aimantation. Les résultats obtenus montrent que le facteur d'amortissement (damping) devient plus grand lorsque le diamètre diminue. De plus, celui-ci ne paraît pas sensible à la densité de concentration en particules. Ainsi, nous pensons que cet effet est très probablement lié au désordre magnétique à la interface particule-matrice en particulier dans le cas des particules de petites tailles.

Références bibliographiques du chapitre IV

- [1] M. Vomir, L.H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 237601 (2005).
- [2] M. Vomir. « Trajectoire d'aimantation induite par des impulsions laser femtosecondes : Etude tridimensionnelle d'anisotropie ». Thèse de doctorat, université de Louis Pasteur (ULP), Strasbourg (2006).
- [3] Céline D'Orleans. « Elaboration par implantation ionique de nanoparticules de cobalt dans la silice et modifications de leurs propriétés sous irradiation d'électrons et d'ions de haute énergie ». Thèse de doctorat ULP, Strasbourg (2003).
- [4] F. Vallée. *C. R. Acad. Sci., Ser IV: Phys., Astrophys.* **4**, 1469 (2001).
- [5] J.-Y. Bigot. *C. R. Acad. Sci., Ser IV: Phys., Astrophys.* **2**, 1483 (2001).
- [6] A.H. Morrish. « *The Physical Principles of Magnetism* », John Wiley and Sons, New York, (1965).
- [7] O. Cíntora-González. « Structure et propriétés magnétiques de nanoparticules de métaux de transition élaborées par implantation ionique dans des verres de silice ». Thèse de doctorat ULP, Strasbourg (2000).
- [8] C. Mraques, M. M. Cruz, R.C. da Silva, E. Alves. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **175-177**, 500-504 (2001).
- [9] J. L. Dormann, D. Fiorani, E. Tronc. *Advances in Chemical Physics*, V 8, Edited by I. Prigogine and Stuart A. Rice. ISBN 0-471- 16285 (1997).
- [10] M. F. Hansen, F. Bodker, S. Morup, K. Lefmann, K. N Clausen, and P.-A. Lindgard. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4910 (1997).
- [11] L. Néel. *Ann. Geophys.* **5**, 99 (1949).
- [12] W. F. Brown, *Phys. Rev.* **130**, 1677 (1963).
- [13] P. M. Echenique, J. M. Pitarke, E. V. Chulkov and A. Rubio. *Chem. Phys.* **251**, 1 (2000).
- [14] H. E. Elsayed-Ali, T. B. Norris, M. A. Pessot, G. A. Mourou. *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1212 (1987).
- [15] M. Nisoli, S. Stagira, S. De Silvestri, A. Stella, P. Tognini, P. Cheyssac, R. Kofman. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3575 (1997).
- [16] V. Halté, J.-Y. Bigot, B. Palpant, M. Broyer, B. Prével, and A. Pérez. *Appl. Phys. Lett.* **75**, 3799 (1999).
- [17] V. Halté. « Dynamique femtoseconde des populations électroniques dans des

- nanoparticules d'argent ». Thèse de doctorat ULP, Strasbourg (1998).
- [18] J.-Y. Bigot, M. Vomir, L.H. F. Andrade, and E. Beaurepaire. *Chem. Phys.* **318**, 137 (2005).
- [19] M. Vomir, L.H. F. Andrade, E. Beaurepaire, M. Albrecht, and J.-Y. Bigot. *J. Appl. Phys.* **99**, 08A501 (2006).
- [20] T. J. Silva, C. S. Lee, T. M. Crawford, and C. T. Rogers, *J. Appl. Phys.* **85**, 7849 (1999).
- [21] M. Respaud, M. Goiran, J. M. Broto, F. H. Yang, T. Ould Ely, C. Amiens, and B. Chaudret, *Phys. Rev. B* **59**, R3934 (1999).
- [22] J. L. Dormann, F. D'Orazio, F. Lucari, E. Tronc, P. Prené, J. P. Jolivet, D. Fiorani, R. Cherkaoui, and M. Noguès. *Phys. Rev. B* **53**, 14 291 (1996).
- [23] L. H. F. Andrade, A. Laraoui, M. Vomir, D. Muller, J.-P. Stoquert, C. Estournès, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 127401 (2006).

Conclusion générale et perspectives

Dans ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés à la dynamique d'aimantation de nanostructures magnétiques excitées par des impulsions laser femtosecondes. Deux principaux objectifs ont été poursuivis. D'une part, nous avons étudié le caractère gyroscopique de la dynamique d'aimantation de nanoparticules magnétiques monodomaines lorsqu'elles sont dans un régime super-paramagnétique. D'autre part, nous avons étudié les mécanismes de désaimantation et de renversement d'aimantation induits par laser dans des plots ferromagnétiques individuels et dans des films.

En premier lieu, nous avons étudié la dynamique d'aimantation dans des plots ferromagnétiques individuels de CoPt_3 et de Permalloy ($\text{Ni}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}$). Pour cela nous avons développé un microscope Kerr magnéto-optique confocal permettant de réaliser des expériences résolues en temps à l'échelle d'une centaine de femtosecondes et avec une résolution spatiale de 300 nm [1]. Dans le cas des plots de CoPt_3 (diamètre de 1 μm), les résultats obtenus montrent une désaimantation ultrarapide immédiatement après l'absorption de l'impulsion pompe ~ 150 fs. Cette désaimantation est suivie par une ré-aimantation partielle via les mécanismes de relaxation spin-réseau (quelques ps) et une ré-aimantation totale via la diffusion de chaleur vers l'extérieur (centaines ps). Dans le cas des plots individuels de permalloy, l'aimantation entreprend un mouvement de précession amorti autour du champ effectif. Nous avons étudié l'influence de l'intensité laser sur le temps de relaxation spin-réseau et sur la période de la précession d'aimantation [2]. Cette dépendance est reliée à l'augmentation de la chaleur spécifique électronique, à la diminution du module de l'aimantation et de l'anisotropie magnétique (magnéto-cristalline ou de forme) avec l'élévation de la température électronique et du réseau. De plus nous avons observé une légère dépendance de la dynamique d'aimantation avec le diamètre des plots surtout dans les plots de Py. Lorsque le diamètre de plot diminue, le temps d'amortissement de l'aimantation (damping) augmente. Nous attribuons cet effet soit à l'augmentation de l'anisotropie magnétique avec la diminution de diamètre de plot soit à l'inhomogénéité de surface introduite durant durant la fabrication des plots par lithographie électronique. En ce qui concerne la dynamique électronique, nous avons observé des ondes acoustiques liées aux vibrations des phonons dont la période dépend essentiellement de l'épaisseur de film (plot) [3]. Notre configuration expérimentale nous donne également la possibilité d'imager la

dynamique spatio-temporelle de l'aimantation d'un plot unique pour un retard fixe entre la pompe et la sonde comme l'expansion spatiale de la désaimantation [4].

Ensuite, nous nous sommes intéressés aux mécanismes de renversement induits par des impulsions laser intenses ($\geq 4 \text{ mJ.cm}^{-2}$). Pour réaliser cette étude, nous avons développé une technique originale d'imagerie différentielle nommée MOPPI (Magneto-Optical Pump Probe Imaging) permettant d'étudier le renversement de l'aimantation d'un plot individuel de CoPt_3 et dans des films ferromagnétiques de CoPt (alliages et multicouches) [5]. L'étude de l'influence de différents paramètres sur le renversement d'aimantation dans les films de CoPt nous a permis de distinguer deux types de renversement : un renversement en présence d'un petit champ magnétique qui dépend essentiellement de l'intensité laser et de l'amplitude du champ magnétique, un renversement à une intensité typique de 4 mJ.cm^{-2} et pour $H = 0$ qui dépend de la nature cristalline du film (dans les multicouches de CoPt/Verre). Nous avons attribué ce dernier type de renversement au champ magnétique dipolaire local en présence des grains cristallins. Enfin, nous avons étudié la structure spatiale des films (alliage de CoPt_3 /saphir, et multicouches de CoPt/verre) désaimantés par des impulsions laser avec le microscope à force magnétique (MFM). Pour les deux types de films, des domaines magnétiques apparaissent dans les régions excitées par laser. La structure de ces domaines dépend beaucoup de l'intensité laser ainsi que de la nature du substrat. Dans le cas des multicouches de CoPt/verre lorsque l'intensité laser augmente, on passe d'une structure monodomaine d'aimantation renversée (taille caractéristique de 300 nm) à une structure multi-domaines vraisemblablement déterminée par les défauts cristallins (« pinning » magnétique).

Dans un deuxième temps, nous nous sommes intéressés à la dynamique d'aimantation d'une assemblée de nanoparticules ferromagnétiques et super-paramagnétiques de différentes tailles, en utilisant des impulsions laser femtosecondes. Nous avons étudiés deux types d'échantillons fabriqués par implantation ionique, le premier échantillon contient des nanoparticules implantées dans des substrats de silice Si / SiO_2 . Ces particules de diamètre $d = 10 \text{ nm}$ possèdent un comportement ferromagnétique à température ambiante et le deuxième échantillon contient des particules implantées dans des substrats de Saphir (Al_2O_3) de diamètre variant de 2.5 nm à 4 nm. Ces particules ont un caractère super-paramagnétique à température ambiante. La méthode de mesure consiste en des expériences pompe-sonde magnéto-optiques Kerr en présence d'un champ magnétique statique. Nous avons utilisé une technique polarimétrique qui permet de mesurer la dynamique d'aimantation dans les trois

directions de l'espace (longitudinale, polaire et transverse) après l'excitation optique ($100 \text{ fs} < t < 1 \text{ ns}$) [6]. Les mesures ont notamment mis en évidence la désaimantation ultrarapide, la précession et l'amortissement de l'aimantation autour du champ effectif. L'étude de la réorientation initiale de l'aimantation en fonction de l'intensité du laser, du champ magnétique et de la nature du substrat nous a permis d'obtenir la signature de la variation de l'anisotropie magnétique en fonction du temps. Pour les nanoparticules de diamètre $d \leq 4 \text{ nm}$, nous avons montré le caractère gyroscopique de l'aimantation précédant les fluctuations superparamagnétiques prédit par Néel [7]. Ce caractère n'a jusqu'à présent pas été observé en temps réel en raison de l'échelle de temps très brève associée au temps de relaxation de l'aimantation τ ($\sim 10^{-9}$ à 10^{-12}). Nous avons discuté ces observations expérimentales dans le contexte du modèle dynamique de Brown [8] dans lequel les différents paramètres τ_0 (préfacteur dans la dynamique d'aimantation), $1/\gamma_0 H_c$ (période de précession) et η (damping) peuvent prendre les mêmes valeurs (centaines de picosecondes). Les mesures de transmission et réflexion différentielles sur des nanoparticules de cobalt implantées dans le saphir nous ont permis de corrélérer la dynamique ultrarapide de désaimantation à la dynamique électronique dans ces particules. De plus, nous avons mis en évidence que la relaxation électron-phonon caractéristique de la dynamique ultrarapide des métaux est suivie d'un autre type de relaxation associée au transfert d'énergie de la particule vers la matrice diélectrique. Enfin, nous avons exploré l'effet de la réduction de taille des particules sur la trajectoire associée au mouvement gyroscopique de l'aimantation. Les résultats obtenus montrent que le facteur d'amortissement devient plus grand lorsque le diamètre diminue. De plus, celui-ci ne paraît pas sensible à la densité de concentration en particules (effet des interactions dipolaires). Ainsi, nous pensons que cet effet est très probablement lié au désordre magnétique à la interface particule-matrice en particulier dans le cas des particules de petites tailles [7].

Donc, dans ce travail de thèse nous avons réussi à combiner les deux avantages de la photonique de spin (résolution spatiale et temporelle) pour étudier la dynamique d'aimantation de nanostructures magnétiques. Ces résultats offrent la possibilité de manipuler l'aimantation dans la gamme allant de quelques centaines Gigahertz à quelques Téràhertz et de donner des informations utiles pour réaliser des nanostructures opérant éventuellement à de telles fréquences.

Ces résultats expérimentaux ouvrent un certain nombre de perspectives :

- Une première série de mesures très intéressante concernera la dynamique d'aimantation de nanoparticules magnétiques dont la distance inter-particules et la distribution de taille de particules sont très bien contrôlées et connues. Cela permet de mettre en évidence l'effet d'interactions dipolaires magnétiques et de réduction de la taille des particules sur la dynamique d'aimantation (fréquence de précession, damping). Une étude détaillée de la réponse magnétique collective d'assemblées de nanoparticules de cobalt auto-organisées soit dans des films de nanocristaux (auto-organisation à 2D) [9] soit dans des supra-cristaux (3D) [10] est en cours. Ce travail se fait dans le cadre d'une collaboration avec l'équipe de M.-P. Piléni du laboratoire LM2N où sont élaborés ces échantillons de nanoparticules de cobalt par voie chimique.
- Une deuxième série de mesures consistera à explorer la possibilité d'adresser des nanostructures magnétiques dans une gamme de temps très rapide (de 100 fs à centaines ps). Une manière de procéder consiste à utiliser des impulsions de champ magnétique qui peuvent induire un renversement d'une manière précessionnelle de l'aimantation [11, 12]. Cependant, il est difficile de produire des impulsions de champ magnétique extrêmement brèves (~ 100 fs) et intenses (~ 1 Tesla). Une autre façon de procéder est d'utiliser des impulsions laser femtosecondes. Surtout très récemment, le groupe de Th. Rasing à l'université de Nijmegen a montré la possibilité de renverser l'aimantation d'un film ferromagnétique de GdCoFe avec des impulsions laser polarisées circulairement (gauche ou droite) en absence du champ magnétique extérieur [13]. D'une manière plus générale, il s'agit d'étudier l'influence du moment angulaire des photons sur le renversement de l'aimantation. Plus important, il est essentiel de mesurer la dynamique de renversement d'aimantation afin de comprendre si elle se produit de manière précessionnelle ou purement cohérente pendant un temps comparable à l'excitation laser.
- Enfin, une étude théorique détaillée sera nécessaire pour comprendre les processus physiques impliqués à la désaimantation ultrarapide observée expérimentalement dans des films magnétiques excités par des impulsions laser femtosecondes [14, 15]. La question posée est de savoir si la dynamique initiale des spins résulte seulement de l'augmentation de la température des électrons lorsqu'ils sont thermalisés. Il est

probable que l'aimantation diminue avec l'augmentation de la température électronique en l'absence d'interactions (échange d'énergie) avec le réseau. Des modélisations basées sur cette idée ont commencé en collaboration avec l'équipe du Prof. P. A. Hervieux (IPCMS) en utilisant la méthode de la densité d'état locale de spins dépendante du temps (TDLSDA) et le modèle simple de Stoner avec une fonction de corrélation qui dépend de la température ($X\text{-corr}(T)$). Une autre voie plausible consistera à développer un modèle théorique introduisant l'effet de la variation des interactions d'échanges dépendant du temps pendant la redistribution des électrons non thermalisés vers une distribution de Fermi chaude.

Références de la conclusion générale et perspectives

- [1] A. Laraoui, M. Albrecht, J.-Y. Bigot. *Opt. Lett.* **32**, 936-398 (2007).
- [2] A. Laraoui, J. Vénuat, V. Halté, M. Albrecht, E. Beaurepaire, J.-Y. Bigot. *J. Appl. Phys.* **101**, 09C105-1 (2007).
- [3] J.-Y. Bigot, A. Laraoui, J. Vénuat, M. Vomir, E. Beaurepaire. *Proceeding of 15th International Conference on Ultrafast Phenomena, Pacific Grove/CA, USA, July 30 – August 4, 2006 in Ultrafast Phenomena XV*, eds. P. Corkum (et al.), (Springer Verlag Series in Chemical Physics, 88), p. 662-664 (2007).
- [4] A. Laraoui, V. Halté, M. Vomir, J. Vénuat, M. Albrecht, E. Beaurepaire, J.-Y. Bigot. *Eur. Phys. J. D* **43**, 251-253 (2007).
- [5] J.-Y. Bigot, A. Laraoui, E. Beaurepaire, M. Vomir. «Spin photonics microscopy: Writing and imaging magnetic domains with femtosecond laser pulses », soumis.
- [6] M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 237601 (2005).
- [7] L.H.F. Andrade, A. Laraoui, M. Vomir, D. Muller, J.-P. Stoquert, C. Estournès, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 127401 (2006).
- [8] W. F. Brown. *J. Appl. Phys.* **34**, 1319 (1963).
- [9] V. Russier, C. Petit and M.P. Pileni. *J. Appl. Physics* **93**, 10001 (2003); C. Petit, V. Russier and M.P. Pileni. *J. Phys. Chem. B* **107**, 10333 (2003).
- [10] V. Germain and M.P. Pileni. *Advanced materials* **17**, 1424 (2005).
- [11] T. Gerrits, H. van der Berg, J. Hohlfeld, L. Bar, and Th. Rasing. *Nature* **418**, 509 (2002).
- [12] I. Tudosa, C. Stamm, A. B. Kashuba, F. King, H. C. Siegmann, J. Stöhr, G. Ju, B. Lu, and D. Weller. *Nature* **428**, 831 (2004).
- [13] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 047601 (2007).
- [14] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
- [15] L. Guidoni, E. Beaurepaire, et J.-Y. Bigot. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 017401 (2002).

Liste des communications

Articles:

- [1] V. Halté, L. H. F. Andrade, A. Laraoui, M. Vomir, and J.-Y. Bigot. «Ultrafast coherent spin dynamics in magnetic nanoparticles », à soumettre.
- [2] A. Laraoui, J. Vénuat, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. « Laser induced ultrafast spin dynamics and magnetization switching in CoPt nanostructures », à soumettre.
- [3] J.-Y. Bigot, A. Laraoui, E. Beaurepaire, M. Vomir. « Spin photonics microscopy: Writing and imaging magnetic domains with femtosecond laser pulses ». Soumis.
- [4] A. Laraoui, J. Vénuat, V. Halté, M. Albrecht, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. *J. Appl. Phys.* **101**, 09C105-1 (2007).
- [5] A. Laraoui, V. Halté, M. Vomir, J. Vénuat, M. Albrecht, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. *Eur. Phys. J. D* **43**, 251-253 (2007).
- [6] A. Laraoui, M. Albrecht, J.-Y. Bigot. *Opt. Lett.* **32**, 936-398 (2007).
- [7] L.H.F. Andrade, A. Laraoui, M. Vomir, D. Muller, J.-P. Stoquert, C. Estournès, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. *Phy. Rev. Lett.* **97**, 127401 (2006).

Proceedings:

- [1] A. Laraoui, M. Vomir, E. Beaurepaire, J.-Y. Bigot. « Femtosecond imaging of the spin dynamics of CoPt nanostructures ». International Quantum Electronics Conference (IQEC). Munich, Germany. À paraître à IEEE CHF.
- [2] J.-Y. Bigot, A. Laraoui, J. Vénuat, M. Vomir, E. Beaurepaire. « Time resolved magneto-optical microscopy of individual ferromagnetic dots », 15th International Conference on Ultrafast Phenomena, Pacific Grove/CA, USA, July 30- August 4, 2006 in *Ultrafast Phenomena XV*, eds. P. Corkum, (et al.), (Springer Verlag Series in Chemical Physics, 88), p. 662-664 (2007).

Communications orales:

- [1] Femtosecond imaging of the spin dynamics of CoPt nanostructures. CLEO Europe- IQEC 2007. June 17th- 22nd, 2007. Munich, Germany. « Invité »

- [2] Ultrafast magneto-optical Kerr microscopy: Spin dynamics in individual ferromagnetic dots. 11th Louis Néel Colloque, Mars 11th- 16th, 2007. Lyon, France
- [3] Dynamique femtoseconde d'aimantation de nanostructures magnétiques. 26 Juin, 2006. IPCMS, Strasbourg. France

Communications sélectionnées par affiche:

- [1] Time-resolved magneto-optical imaging of magnetic domains written in CoPt films with femtosecond laser pulses. Optique Grenoble 2007, July 2- 5th, 2007. Grenoble, France
- [2] Study of individual ferromagnetic dots with femtosecond optical pulses. 10th Joint MMM/Intermag Conference. 7th- 11th, 2007. Baltimore-Maryland, USA.
- [3] Ultrafast spin dynamics of individual ferromagnetic dots. 3rd TMN (Trends in Materials and Nanosciences) Conference, November 2006. Strasbourg. France.
- [4] Femtosecond Spin Dynamics of a single CoPt₃ dot. 13th ISSPIC Conference, July 23rd - 28th, 2006. Göteborg, Sweden.
- [5] Dynamique femtoseconde d'aimantation de plots uniques de CoPt₃. 7^{ème} journées des phénomènes ultra-rapides. 5-7 décembre 2005, Villeneuve d'Ascq (Lille) France.

Participations dans des écoles internationales:

- [1] International School on Modern problems of spin dynamics. October 5th - 9th 2006, Strasbourg. France.
- [2] Spring School on Nanomagnetism and Spintronics, Mai 17th - June 3rd, 2005. Cargese (la Corse), France .

Résumé :

La thèse traite d'un point de vue expérimental la dynamique d'aimantation induite par laser femtoseconde de nanostructures magnétiques. En premier lieu, nous nous sommes intéressés à la dynamique de spins dans des plots ferromagnétiques individuels de CoPt₃ et de permalloy (le diamètre varie de 0.25 à 30 μm). Le montage expérimental consiste en des mesures magnéto-optique Kerr pompe sonde en géométrie confocale (la résolution spatiale est 300 nm ; la résolution temporelle est 150 fs). Nous avons montré que la dynamique d'aimantation dépend fortement de la densité d'excitation laser notamment le temps de relaxation spin-réseau et la fréquence de précession. Nous avons également étudié l'expansion spatiale de la désaimantation dans un plot individuel. De plus, nous avons développé une technique d'imagerie résolue en temps permettant d'étudier le renversement d'aimantation dans des films et plots individuels de CoPt. Nous avons exploré l'effet des différents paramètres : intensité laser, champ magnétique appliqué, et la nature cristalline du substrat (alliage, multicouches) sur le renversement d'aimantation. Enfin, nous avons étudié par microscope à force magnétique la structure des domaines magnétiques induite par laser.

Nous avons également étudié la dynamique cohérente d'aimantation de nanoparticules magnétiques (le diamètre moyen varie de 2 à 10 nm) excitées par des impulsions laser. L'analyse de la trajectoire d'aimantation dans les trois directions de l'espace (polaire, longitudinal, transverse) après l'excitation optique (> 120 fs) nous a permis de mettre en évidence la désaimantation ultrarapide (~ 200 fs), le mouvement gyroscopique de l'aimantation (précession et l'amortissement de l'aimantation) qui précède les fluctuations super-paramagnétiques. Nous avons exploré le rôle de l'anisotropie magnétique sur la réorientation initiale de l'aimantation et nous avons montré que le damping augmente avec la diminution de la taille de particules.

Mots clés :

Impulsions laser femtosecondes, Effet Kerr Magnéto-Optique, Femtomagnétisme, Microscope confocal, Plots ferromagnétiques, Cobalt Platine, Permalloy, Renversement d'aimantation, Microscope à Force Magnétique, Nanoparticules magnétiques, Superparamagnétisme.

Abstract:

The thesis deals with experimental studies of the laser induced spin dynamics in magnetic nanostructures. First, we studied the spin dynamics of individual ferromagnetic discs of CoPt₃ and permalloy (the diameter vary from 0.25 μm to 30 μm). The experimental set-up consists in time resolved Kerr magneto-optical pump probe measurements in the confocal geometry (the spatial resolution is 300 nm; the temporal resolution is 150 fs). We showed that the spin dynamics depends strongly on the pump intensity particularly the spin-lattice time relaxation and the frequency of magnetization precession. We also studied the spatial expansion of the demagnetisation in a single dot. Additionally, we developed a powerful technique named Magneto-Optical Pump Probe Imaging (MOPPI) used for studying the magnetization switching in CoPt films and in individual dots. We explored the influence of different parameters: the laser intensity, the external static magnetic field, and the crystalline character of the sample (alloy, multilayer) on the magnetization switching. Finally, we performed Magnetic Force Microscopy imaging of the laser induced magnetic domains.

We also studied the coherent spin dynamics of magnetic nanoparticles (the average diameter varies from 2 nm to 10 nm) excited with femtosecond laser pulses. The analysis of the three spatial components of the magnetization (polar, longitudinal, and transverse) after the optical excitation (> 120 fs) brings useful information about the ultrafast demagnetization, the gyroscopic motion (precession and damping of the magnetization) that precedes the super-paramagnetic fluctuations. We explored the influence of the magnetic anisotropy on the ultrafast reorientation of the magnetization and we demonstrated that the damping increases when the diameter of particles decreases.

Key words:

Femtosecond laser pulses, Magneto-Optical Kerr Effect, Femtomagnetism, Confocal microscopy, Ferromagnetic dots, Cobalt Platinum, Permalloy, Magnetization switching, Magnetic Force Microscopy, Magnetic nanoparticles, Superparamagnetism.