



Université de Strasbourg

Institut de Physique et Chimie des matériaux de Strasbourg

THESE DE DOCTORAT

Présentée pour l'obtention du titre de

**Docteur de l'Université de Strasbourg**

Discipline : Physique de la matière condensée

Par

Hélène Vonesch

# Magnéto-optique ultra-rapide cohérente

Soutenue le 19 décembre 2011 devant le jury composé de :

Pr. Jean-François ROCH	Rapporteur externe
Pr. Bruno PALPANT	Rapporteur externe
Pr. Claude DELALANDE	Examineur externe
Pr. Paul-Antoine HERVIEUX	Examineur interne
Dr. Jean-Yves BIGOT	Directeur de thèse



*A Vincent et Sarah,*



# Remerciements

Je remercie Marc Drillon de m'avoir accueillie à l'IPCMS pour effectuer ce travail de thèse.

Je remercie Jean-François Roch, Bruno Palpant, Claude Delalande et Paul-Antoine Hervieux d'avoir accepté de juger mon travail. Ce fut un grand honneur pour moi. Je vous suis reconnaissante aussi pour la qualité de vos enseignements dont j'ai eu la chance de bénéficier.

Un immense merci à Jean-Yves Bigot pour toutes les explications théoriques et expérimentales au cours de ces trois années de thèse, ainsi que pour les excellentes conditions matérielles de travail. J'ai apprécié votre rigueur et je suis impressionnée par votre travail. Merci Jean-Yves pour votre patience et votre humour.

Merci à toute l'équipe de physiciens passionnés qui m'ont accueillie dans le groupe Femtomag. Merci Mircea, pour les techniques expérimentales que tu m'as enseignées, pour ton encadrement et pour les milliers de questions auxquelles tu as répondu. Merci Marie pour tes conseils avisés, ton efficacité, pour l'aide aux répétitions et pour les bons moments passés à Phoenix. Tu as toute mon admiration. Merci Michèle d'avoir été disponible pour tous mes problèmes expérimentaux, pour tes explications, ta gentillesse et ton amitié. C'était un grand plaisir de travailler avec toi. Merci Valérie pour tes conseils et toutes les réponses que tu as pu apporter à mes questions. Merci Amani et Hasan pour nos discussions, nos fous rires et nos interrogations : nous avons été une bonne équipe pour surmonter les difficultés du travail de thèse et je suis heureuse de nos projets réussis. Tous mes vœux de succès à Monica, Jiwan et Ahmed : merci pour votre gentillesse ! A vous tous, je souhaite de beaux résultats.

Un grand merci également à Paul-Antoine Hervieux et Yannick Hinschberger pour nos discussions sur la magnéto-optique ultra-rapide qui m'ont beaucoup aidées.

Merci à Jean-Louis Gallani, Bertrand Donnio et Romain Greget pour le travail commun sur les nanoparticules d'or. J'ai beaucoup apprécié de travailler avec vous.

Merci à tous les doctorants du DON et des autres départements pour leur bonne humeur : Yannick (valeurux paladin de l'axiome frühstückien, je vois poindre le Graal relativiste. Terme de Darwin : prends garde toi !), Jean, Deborah, Bertrand, Sacha, Laureen, Emel, Piotr, Marcelina, Rafal, Stéphane, Thomas et Thomas, Matthias, Wojciech, Thibaut ...

Merci à l'ensemble des personnes avec lesquelles j'ai travaillé au DON ces trois dernières années. En particulier, merci à Stefan Haacke, Estelle Brunette, Isabelle Kitzinger, Virginie Stortz-Kippeurt. Merci à l'ensemble du personnel de l'atelier. Merci aussi à Béatrice Masson, Sophie Siegel, Veronique Werner, Dominique Hebling, un merci particulièrement amical à Jeannine Drivon ainsi qu'à tous les membres de l'IPCMS que j'ai côtoyés.

Merci à l'ensemble du service informatique qui a toujours été particulièrement serviable : Christine Tugene, qui m'a beaucoup aidé pour la programmation, Dominique Quince,

Xavier Ledoux, Hubert Hollender et Fabien Muller.

Merci à tous les capoeiristes en particulier à Marc Ziegler pour les bons moments de capoeira, les déjeuners du vendredi et la bonne humeur. Merci au groupe d'improvisation des Zambigus, aux charmes et aux délirs de Jean-Edouard, de Davida, d'Hélène . . .

Merci à toute ma famille en particulier à mes grands-mères pour leur générosité et leur esprit. Merci Mam pour ton accueil toujours chaleureux. Merci à celui qui ensoleille ma vie et à nos deux petits rayons rigolos.



## Résumé

### Femtomagnétisme

C'est en 1996 qu'a été mesurée pour la première fois la variation ultra-rapide de l'aimantation d'un film fin ferromagnétique suite à une impulsion femtoseconde [1]. Ce phénomène a ouvert la voie à un nouveau domaine de la physique intitulé femtomagnétisme. Il promet des applications technologiques dans le domaine du stockage de l'information et a déjà permis des avancées importantes au niveau fondamental.

La dynamique électronique ultra-rapide est l'objet d'intenses recherches depuis les années 90 [2], [3]. En effet, après interaction avec une impulsion femtoseconde, les électrons sont mis hors-équilibre et interagissent par collisions électrons-électrons et électrons-phonons. La dynamique électronique peut alors être décrite, de manière phénoménologique, par quatre bains en interaction : la distribution électronique athermale, la distribution électronique thermalisée, le bain de phonons et éventuellement le substrat. Le cas le plus simple se produit lorsqu'en quelques centaines de femtosecondes les électrons, à la suite de leurs collisions mutuelles, obéissent à une distribution de Fermi-Dirac de température plus élevée que la température initiale, et lorsque cette thermalisation est suivie d'une interaction avec les phonons du réseau puis avec le substrat. Ces couplages permettent au système "électrons + phonons" de se thermaliser en l'espace de quelques picosecondes puis de revenir à l'équilibre en 1 ns environ.

La dynamique de l'aimantation est relativement bien comprise après quelques picosecondes : elle peut alors être modélisée par les échanges thermiques entre spins et réseau. A cette échelle de temps, en fonction du champ magnétique appliqué et de l'anisotropie du matériau, l'aimantation macroscopique effectue un mouvement de précession pendant quelques centaines de picosecondes.

Concernant, les "temps courts", avant la thermalisation des électrons et des spins, l'origine de la désaimantation n'a pas encore trouvé de consensus au sein de la communauté scientifique. En effet, actuellement, différents mécanismes de désaimantation sont envisagés : un processus d'interaction spin-orbite [4], une variation ultra-rapide de l'anisotropie magnéto-cristalline [5], l'interaction cohérente entre spins et photons [6], l'effet Faraday inverse qui désigne la variation de l'aimantation d'un matériau à l'ordre deux en champ laser excitateur [7]. Sont également envisagés : la diffusion électron-magnon [8], le transport de spin superdiffusif [9], la diffusion de type Elliott-Yaffet des spins et des phonons [10] ou la diffusion de type Elliott-Yaffet entre électrons, régie par l'échange Coulombien [11].

Différents types de mesures de dynamique d'aimantation ultra-rapide existent : elles sont toutes basées sur la technique pompe-sonde qui permet d'atteindre une résolution fonction de la durée des impulsions considérées. Il s'agit de mesurer la dynamique d'aimantation en fonction du délai entre une impulsion intense dite "pompe" et une seconde impulsion peu intense dite "sonde". Les impulsions utilisées peuvent appartenir au spectre visible, ultra-violet, infra-rouge ou X donnant ainsi accès à différentes informations sur un même phénomène. Pour des échantillons ferromagnétiques, l'accès à la dynamique d'aimantation à partir de ces mesures de type optique, est obtenu par dichroïsme circulaire magnétique, par effet Kerr et Faraday ou par photoémission résolue en temps polarisée en spin.



## Effets magnéto-optiques linéaires

Les effets magnéto-optiques découverts par Kerr et Faraday ont été compris d'un point de vue formel à partir de 1932 avec le travail de Hulme. Il a été le premier à déterminer l'importance de l'interaction spin-orbite pour relier les effets magnétiques à la mobilité des électrons et donc aux propriétés optiques. La structure de bande des métaux dans les effets magnéto-optiques a été introduite par Argyres en 1955 en considérant un Hamiltonien à un électron perturbé par l'interaction spin-orbite et par l'interaction avec le potentiel vecteur du champ laser [12].

Bennett et Stern, en 1965 [13], ont retrouvé le résultat d'Argyres en se basant sur l'énergie absorbée par un matériaux pour différentes polarisations. Ces résultats ont été confirmés dans les années 90 avec des calculs de structure de bande plus performants [14].

## Effets magnéto-optique non-linéaires : modélisation d'effets magnéto-optiques ultra-rapides cohérents.

La partie théorique de ce travail de thèse a pour but de tester deux hypothèses dans le cadre d'un modèle très simple : celui de huit niveaux issus de la structure fine de l'atome d'Hydrogène. Ces huit niveaux subissent l'effet Zeeman pour introduire de manière simple un champ magnétique similaire au champ magnétique d'échange existant dans les matériaux ferromagnétiques. Nous avons dans un premier temps voulu vérifier la possibilité d'une réponse magnéto-optique cohérente telle qu'elle a été mesurée dans la publication [6]. Nous avons également comparé la réponse magnéto-optique à la dynamique de l'aimantation et enfin, nous avons examiné la contribution magnéto-optique cohérente de termes relativistes supplémentaires dans l'Hamiltonien d'interaction avec le champ laser.

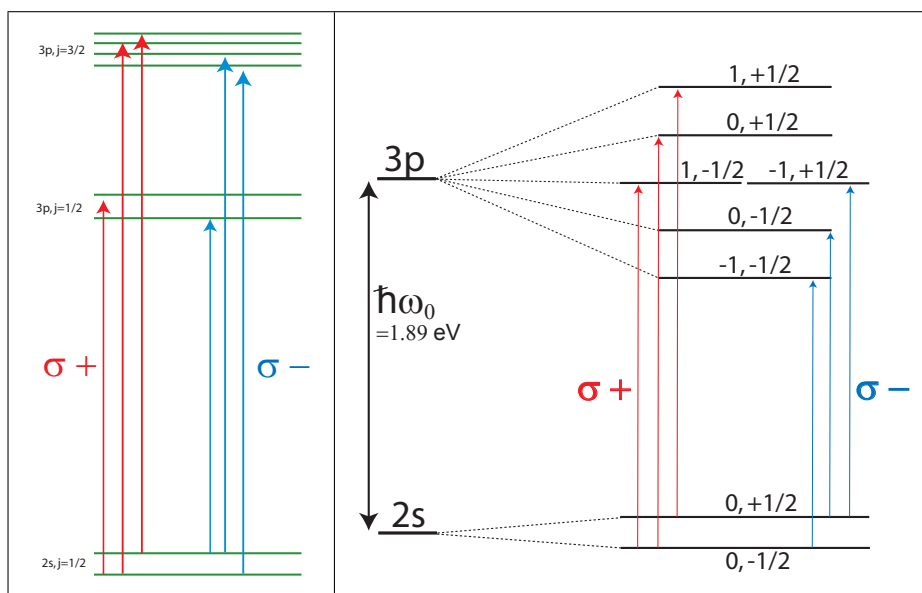


FIG. 1 – Configurations considérées dans l'atome d'Hydrogène : à gauche en champ magnétique faible, à droite en champ magnétique fort.  $\sigma_{\pm}$  correspond aux polarisations circulaires droite et gauche dans le plan orthogonal à l'axe de quantification.

La notion de signal pompe-sonde cohérent est bien connue depuis les travaux de C. Brito-Cruz et al. [15] dans le cadre d'un système à deux niveaux décrit dans le formalisme de la matrice densité où les éléments diagonaux de la matrice densité décroissent exponentiellement avec un temps  $T_1$  et les éléments non-diagonaux relaxent avec le temps caractéristique  $T_2$ . Ils ont montré que, dans une expérience pompe-sonde, trois termes contribuent au signal optique d'ordre trois. Ces trois termes apparaissent naturellement lorsque la réponse optique non-linéaire est écrite temporellement au lieu de l'écriture fréquentielle la plus usitée. On constate que la succession

temporelle des deux champs pompe  $E_p$ ,  $E_p^*$  et du champ électrique sonde  $E_s$ , à l'origine de la polarisation d'ordre trois, se décompose en considérant les instants  $t_1 \leq t_2 \leq t_3$  :

- $E_p(t_1)E_p^*(t_2)E_s(t_3)$  et  $E_p^*(t_1)E_p(t_2)E_s(t_3)$  : terme dit "de population". Il est maximal pour des délais pompe-sonde positifs et décroît exponentiellement avec une durée caractéristique  $T_1$ .
- $E_s(t_1)E_p^*(t_2)E_p(t_3)$  : terme dit "de pump-perturbed free induction decay". Ce terme, maximal pour des délais pompe-sonde négatifs, est non nul durant un temps caractéristique de la durée de l'impulsion et de  $T_2$ .
- $E_p^*(t_1)E_s(t_2)E_p(t_3)$  : terme dit "de pump-polarization coupling". Ce terme est non nul pour des délais pompe-sonde proches de zéro et est caractérisé par la durée de l'impulsion et de  $T_2$ .

Les deux derniers termes requièrent, par le biais de  $T_2$ , que le système garde la mémoire de la phase d'une première impulsion par rapport à l'impulsion qui suit. Ils sont à ce titre appelés termes cohérents. Résoudre la dynamique magnéto-optique cohérente nécessite des impulsions d'une durée inférieure ou égale à l'ordre de grandeur du temps de vie des cohérences  $T_2$ . Un signal magnéto-optique cohérent a été mesuré pour la première fois dans notre équipe en 2009 [6].

Dans le cadre de notre modèle simple, nous avons pu calculer la rotation magnéto-optique induite à l'ordre trois par les trois termes pompe-sonde. Nous avons comparé la dynamique ultra-rapide d'ordre trois calculée pour la rotation et l'ellipticité à la dynamique des spins et du moment orbital. Ce travail est au cœur de la recherche actuelle au niveau international [16][17].

Nous avons également étudié l'ordre de grandeur de la contribution à la rotation magnéto-optique de l'Hamiltonien d'interaction issu du développement de Foldy-Wouthuysen à l'ordre deux en  $1/m$ . Ce développement fait apparaître l'interaction spin-orbite avec le champ du laser et non pas seulement l'interaction spin-orbite avec le champ électrique des ions. Nous avons montré que dans le cas de l'Hydrogène, ces termes ont un effet négligeable sur la rotation magnéto-optique d'ordre trois. L'interaction entre le moment canonique et le potentiel vecteur du laser domine la réponse magnéto-optique non-linéaire ultra-rapide.

## Partie expérimentale

D'autres configurations d'expériences de mélange à quatre ondes permettent d'avoir accès spécifiquement aux dynamiques cohérentes et aux dynamiques de population, telle la configuration à trois faisceaux schématisée ci-dessous pour laquelle nous avons mesuré la dynamique magnéto-optique ultra-rapide.

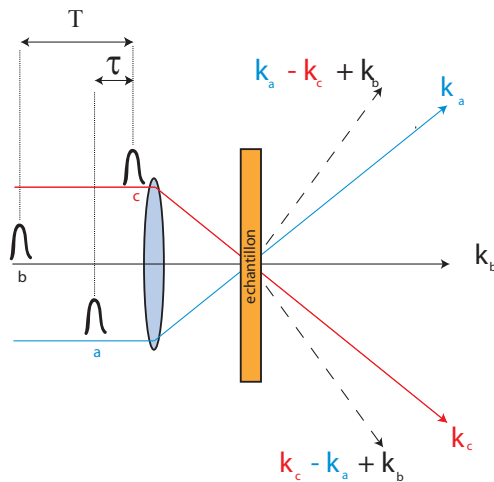


FIG. 2 – Configuration à trois faisceaux. Le signal de mélange d'onde peut être détecté dans les deux directions  $\pm k_a \mp k_b + k_c$ .

Afin d'illustrer la partie théorique montrant l'existence d'un signal magnéto-optique cohérent, nous avons effectué ces mesures sur un échantillon de  $(GdTmPrBi)_3(FeGa)_5O_{12}$  d'épaisseur 7 microns. Ce type d'échantillon a pour particularité de présenter une réponse magnéto-optique cohérente très importante à une longueur d'onde de 800 nm due à sa réponse magnéto-optique importante au-delà de 580 nm. L'expérience est menée à l'aide d'impulsions de durée 47 fs. La mesure de la rotation magnéto-optique a été effectuée à l'aide d'un pont de polarisation. De manière prévisible, nous n'avons pas pu résoudre la dynamique magnéto-optique cohérente pour laquelle des impulsions de l'ordre du temps de cohérence électronique sont requises (moins de 10 fs dans un métal). Nous avons pu montrer cependant que ce montage donne un accès direct à la dynamique ultra-rapide de l'aimantation en mesurant la précession de l'aimantation, ainsi que de distinguer la réponse magnéto-optique cohérente (variation de  $\tau$ ) et celle des populations (variation de T).

## Conclusion

Nous avons confirmé la possibilité d'un signal magnéto-optique cohérent au niveau théorique dans le cas d'un modèle simple à huit niveaux issus de l'atome d'Hydrogène. Nous avons démontré expérimentalement la possibilité de retrouver la dynamique d'aimantation à l'aide d'une configuration à trois impulsions. Celle-ci promet, à l'aide d'impulsions plus courtes, de révéler la dynamique magnéto-optique cohérente. Ce travail est novateur dans le sens où il établit un pont entre deux domaines qui se sont jusqu'à présent ignorés : le domaine de l'optique cohérente et de la dynamique d'aimantation ultra-rapide. La compréhension des effets magnéto-optiques cohérents promet des avancées au niveau fondamental et des applications technologiques puisqu'elle laisse envisager un contrôle cohérent de l'aimantation dans des matériaux ferromagnétiques.

## Références du résumé

- [1] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel. *Physical Review Letters*, 76(22) :4250, May 1996.
- [2] W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom, and J. Bokor. Electron thermalization in gold. *Physical Review B*, 46(20) :13592–13595, November 1992.
- [3] Rogier H. M. Groeneveld, Rudolf Sprik, and Ad Lagendijk. Femtosecond spectroscopy of electron-electron and electron-phonon energy relaxation in ag and au. *Physical Review B*, 51(17) :11433–11445, May 1995.
- [4] G. P. Zhang and W. Huebner. Laser-Induced ultrafast demagnetization in ferromagnetic metals. *Physical Review Letters*, 85(14) :3025, October 2000.
- [5] C. Boeglin, E. Beaurepaire, V. Halte, V. Lopez-Flores, C. Stamm, N. Pontius, H. A. Durr, and J.-Y. Bigot. Distinguishing the ultrafast dynamics of spin and orbital moments in solids. *Nature*, 465(7297) :458–461, May 2010.
- [6] Jean-Yves Bigot, Mircea Vomir, and Eric Beaurepaire. Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses. *Nat Phys*, 5(7) :515–520, 2009.
- [7] Andrei Kirilyuk, Alexey V. Kimel, and Theo Rasing. Ultrafast optical manipulation of magnetic order. *Rev. Mod. Phys.*, 82 :2731–2784, Sep 2010.

- [8] E. Carpene, E. Mancini, C. Dallera, M. Brenna, E. Puppini, and S. De Silvestri. Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron films. *Phys. Rev. B*, 78 :174422, Nov 2008.
- [9] M. Battiato, K. Carva, and P. M. Oppeneer. Superdiffusive spin transport as a mechanism of ultrafast demagnetization. *Physical Review Letters*, 105(2) :027203, July 2010.
- [10] B. Koopmans, J. J. M. Ruigrok, F. Dalla Longa, and W. J. M. de Jonge. Unifying ultrafast magnetization dynamics. *Physical Review Letters*, 95(26) :267207, December 2005.
- [11] Michael Krauß, Tobias Roth, Sabine Alebrand, Daniel Steil, Mirko Cinchetti, Martin Aeschlimann, and Hans Christian Schneider. Ultrafast demagnetization of ferromagnetic transition metals : The role of the coulomb interaction. *Phys. Rev. B*, 80 :180407, Nov 2009.
- [12] Petros N. Argyres. Theory of the faraday and kerr effects in ferromagnetics. *Physical Review*, 97(2) :334, January 1955.
- [13] Herbert S. Bennett and Edward A. Stern. Faraday effect in solids. *Phys. Rev.*, 137(2A) :A448–A461, Jan 1965.
- [14] P. M. Oppeneer, V. N. Antonov, T. Kraft, H. Eschrig, A. N. Yaresko, and A. Y. Perlov. Calculated magneto-optical Kerr spectra of  $XPt_3$  compounds ( $X = V, Cr, Mn, Fe$  and  $Co$ ). *Journal of Physics Condensed Matter*, 8 :5769–5780, July 1996.
- [15] C.H. Brito Cruz, J.P. Gordon, P.C. Becker, R.L. Fork, and C.V. Shank. Dynamics of spectral hole burning. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 24(2) :261–269, February 1988.
- [16] G. P. Zhang, W. Hubner, Georgios Lefkidis, Yihua Bai, and Thomas F. George. Paradigm of the time-resolved magneto-optical kerr effect for femtosecond magnetism. *Nat Phys*, 5(7) :499–502, July 2009.
- [17] Karel Carva, Marco Battiato, and Peter M. Oppeneer. Is the controversy over femtosecond magneto-optics really solved? *Nature Physics*, 7 :665–665, September 2011.

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Dynamique d'aimantation ultra-rapide</b>	<b>2</b>
1.1	Introduction . . . . .	2
1.2	Origine du ferromagnétisme . . . . .	3
1.3	Direction de l'aimantation . . . . .	5
1.4	Magnéto-optique linéaire : définition des effets Kerr et Faraday . . . . .	7
1.5	Magnéto-optique : origine microscopique des Effets Kerr et Faraday . . . . .	8
1.5.1	Approche de Hulme - 1932 . . . . .	8
1.5.2	Approche de Argyres - 1955 . . . . .	8
1.5.3	Approche de Bennett et Stern - 1965 . . . . .	10
1.5.4	Synthèse des effets magnéto-optiques dans les métaux de transition	12
1.5.5	Calcul de la rotation magnéto-optique à partir du tenseur de conductivité . . . . .	13
1.6	Procédures expérimentales . . . . .	14
1.7	Dynamique des charges et de l'aimantation . . . . .	15
1.7.1	Dynamique des charges . . . . .	15
1.7.2	Dynamique des spins . . . . .	18
1.7.3	Dynamiques cohérentes . . . . .	20
1.8	Objectifs de la thèse . . . . .	23
<b>2</b>	<b>Etude de l'Hamiltonien d'interaction relativiste dans le cas de l'atome d'Hydrogène</b>	<b>24</b>
2.1	Transformation de Foldy-Wouthuysen . . . . .	25
2.2	Ajout de termes supplémentaires à l'Hamiltonien utilisé dans la littérature pour décrire l'effet Faraday . . . . .	26
2.3	Types d'interactions contenues dans l'Hamiltonien relativiste . . . . .	27
2.4	Modèle à huit niveaux en champ magnétique faible . . . . .	30
2.5	Modèle à huit niveaux en champ magnétique fort . . . . .	33
2.6	Effet magnétique . . . . .	36
2.7	Dynamique de J, L et S . . . . .	37
<b>3</b>	<b>Modélisation des signaux magnéto-optiques cohérents dans deux configurations de mélange à quatre ondes</b>	<b>39</b>
3.1	Equations d'évolution de la matrice densité . . . . .	39
3.1.1	Méthode . . . . .	39
3.1.2	Application au cas du système à huit niveaux. . . . .	41
3.2	Calcul de la matrice densité à l'ordre trois . . . . .	42
3.3	Notion de réseau transitoire . . . . .	44
3.4	Champ rayonné par un milieu non-linéaire fin et peu absorbant . . . . .	45
3.5	La configuration pompe-sonde . . . . .	48

3.5.1	Origine des différents termes pour la polarisation non-linéaire pompe-sonde . . . . .	48
3.5.2	Principe d'une mesure pompe-sonde. . . . .	49
3.5.3	Illustration numérique des termes pompe-sonde . . . . .	50
3.6	La configuration en "réseau transitoire" à trois impulsions . . . . .	50
3.6.1	Description . . . . .	51
3.6.2	Principe d'une mesure en configuration de réseau transitoire à trois faisceaux. . . . .	52
3.6.3	Illustration numérique de la configuration de réseau transitoire à trois faisceaux. . . . .	53
3.7	Modification de la polarisation du champ rayonné : rotation et ellipticité . . . . .	55
3.7.1	Approche géométrique de la rotation et de l'ellipticité . . . . .	56
3.7.2	Approche expérimentale de la rotation et de l'ellipticité à l'aide d'un pont de polarisation . . . . .	58
<b>4</b>	<b>Résultats de la modélisation numérique</b>	<b>64</b>
4.1	Introduction . . . . .	64
4.2	Résultats numériques pour la configuration pompe-sonde en champ magnétique faible . . . . .	66
4.2.1	Intensité du signal rayonné en fonction du désaccord . . . . .	66
4.2.2	Effet de l'interaction issue du développement de Foldy-Wouthuysen . . . . .	66
4.2.3	Effet de la largeur des niveaux et du désaccord sur le signal magnéto-optique . . . . .	67
4.2.4	Dynamique de l'aimantation en champ magnétique faible . . . . .	70
4.3	Résultats numériques pour la configuration pompe-sonde en champ fort . . . . .	73
4.3.1	Effet magnéto-optiques des termes relativistes supplémentaires issus du développement de Foldy-Wouthuysen . . . . .	73
4.3.2	Etude de l'intensité, de la rotation et de l'ellipticité à différents délais pompe-sonde . . . . .	74
4.3.3	Dynamique de l'aimantation en champ magnétique fort . . . . .	75
4.4	Conclusion et perspectives des modélisations numériques . . . . .	78
<b>5</b>	<b>Partie expérimentale</b>	<b>79</b>
5.1	Echantillon . . . . .	79
5.2	Montage expérimental . . . . .	82
5.3	Résultats expérimentaux . . . . .	84
5.4	Résultats numériques pour la configuration en réseau transitoire à trois faisceaux . . . . .	89
5.4.1	Terme cohérent . . . . .	90
5.4.2	Terme de population . . . . .	91
5.5	Conclusion de la partie expérimentale . . . . .	92
<b>Appendices</b>		
<b>A</b>	<b>L'atome d'Hydrogène et quelques rappels de mécanique quantique</b>	<b>95</b>
A.1	Hamiltonien de l'atome d'Hydrogène . . . . .	95
A.2	Structure fine de l'atome d'Hydrogène . . . . .	98
A.3	Effet Zeeman . . . . .	99
A.4	Transitions dipolaires électriques . . . . .	99
A.5	Transitions dipolaires magnétiques . . . . .	100
A.6	Calcul des transitions en champ faible en jauge de Coulomb . . . . .	100

A.7	Calcul des transitions en champ fort en jauge de Coulomb . . . . .	103
A.8	Opérateurs vectoriels . . . . .	105
<b>B</b>	<b>Formalisme de Liouville : relaxations et solution analytique au 3<sup>e</sup> ordre</b>	<b>106</b>
B.1	Relaxation transverses . . . . .	106
B.2	Relaxation longitudinales . . . . .	106
B.3	Solution analytique pour le mélange d'ondes avec des impulsions de Dirac et une polarisation linéaire. Cas du système à 8 niveaux. . . . .	107
B.4	Principe du code . . . . .	109

# Chapitre 1

## Dynamique d'aimantation ultra-rapide

### 1.1 Introduction

L'application principale des études de dynamique d'aimantation est l'élaboration de nouveaux matériaux et de nouvelles technologies pour le stockage de données. L'objectif est de lire et d'écrire d'avantage d'information, plus rapidement, en consommant moins d'énergie. Dans cette perspective, les recherches visent à remplacer nos disques durs actuels dans lesquels l'écriture d'informations nécessite l'application de champs magnétiques ainsi que des éléments tournants, relativement instables et fragiles.

Un premier exemple de ces développements technologiques est le domaine de la spinttronique, basée sur l'effet de magnéto-résistance géante (GMR). Découverte en 1988, la GMR est utilisée dans les têtes de lecture de nos disques durs [18], [19]. Ce phénomène se produit dans des films minces ferromagnétiques séparés par une fine couche non-ferromagnétique : il s'agit d'une modification de la résistance de la multicouche en fonction de l'alignement de l'aimantation des couches ferromagnétiques. La lecture des bits informatiques revient alors à la mesure d'une résistance : elle est ainsi fortement accélérée par rapport aux technologies antérieures. Un projet de tête de lecture et d'écriture baptisé "racetrack memory" a été développé dans le groupe de Stuart Parkin à IBM. Il repose également sur le principe de la GMR et permettrait d'écrire et de lire des informations à l'aide de courants polarisés en spin conduits par des fils d'or nanométriques.

Un second axe de recherche, pour accélérer l'écriture et la lecture de données, ainsi que pour augmenter les densités de stockage, consiste à utiliser des impulsions lasers femtosecondes pour modifier l'aimantation de métaux ferromagnétiques. Ainsi, A. Laraoui et al. ont pu, en 2007, désaimanter des plots de  $CoPt_3$  de  $1 \mu m$  à l'échelle de la durée d'impulsion de 180 fs qu'ils ont utilisée [20].

Stanciu et al. ont montré le retournement d'aimantation sur GdFeCo en fonction de la polarisation circulaire droite ou gauche de l'impulsion laser [21]. Ils suggèrent que cette dépendance en polarisation prouve qu'il s'agit d'un phénomène cohérent : l'effet devrait donc se produire en principe pendant la durée de vie des cohérence électroniques estimée dans GdFeCo à 200 fs. L'avantage de cette technique est qu'elle ne fait pas appel à un champ magnétique statique qui ralentirait considérablement l'écriture.

Le domaine de la dynamique d'aimantation ultra-rapide est né dans les années 90 avec de premières expériences à l'aide d'impulsions picosecondes [22], [23]. Les premières mesures de dynamique d'aimantation avec des impulsions lasers femtosecondes ont été réalisées en 1996 à Strasbourg à l'aide d'impulsions de 60 fs sur un film de nickel [1]. Dans cette



expérience pompe-sonde, l'effet Kerr est utilisé pour sonder la dynamique de l'aimantation après une excitation importante du système (électrons + spins).

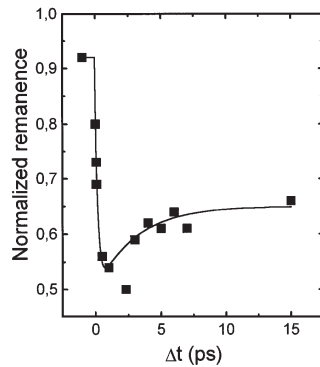


FIG. 1.1 – Dynamique d'aimantation mesurée par effet Kerr [1].

Ces travaux pionniers ont engendré d'importants efforts de recherche au niveau des applications et de la compréhension fondamentale des phénomènes physiques à l'origine de la désaimantation. Ce domaine est au croisement de plusieurs champs de recherche : le magnétisme, les effets magnéto-optiques, l'optique non-linéaire et les phénomènes ultrarapides. Cette diversité explique que de nombreuses questions se posent encore aujourd'hui notamment au sujet de l'interaction exacte entre photons et spins dans les matériaux ferromagnétiques. En particulier, dans ce travail de thèse nous nous intéresserons à la mesure d'effets de l'interaction cohérente entre photons, spins et électrons à l'aide d'expériences pompe-sonde magnéto-optiques.

Dans ce premier chapitre d'introduction au domaine du femtomagnétisme, je détaillerai d'abord quels paramètres influent sur l'aimantation d'un matériau magnétique. J'aborderai ensuite l'origine des effets magnéto-optiques. Je décrirai dans une dernière partie les procédures expérimentales et la dynamique des charges et des spins après interaction avec une impulsion femtoseconde.

## 1.2 Origine du ferromagnétisme

Le ferromagnétisme désigne la capacité de certains matériaux à avoir une aimantation non nulle même en l'absence de champ magnétique appliqué, les moments magnétiques étant alignés parallèlement. Le fer, le nickel, le cobalt, le gadolinium et le dysprosium sont ferromagnétiques. Leurs alliages et certaines autres substances peuvent également avoir des propriétés ferromagnétiques. L'aimantation de ces matériaux s'annule au-delà de la température de Curie. Ils sont en général composés de domaines magnétiques qui avec l'application d'un champ magnétique faible peuvent conduire à une aimantation importante.

La première description phénoménologique du comportement de l'aimantation est due à P. Weiss. Il a supposé que chaque moment magnétique d'un matériau ferromagnétique interagit avec un champ magnétique effectif, dit "moléculaire", résultant de l'effet de tous les autres moments magnétiques du matériau [24]. En supposant que le champ moléculaire est proportionnel à l'aimantation il a pu modéliser la température de Curie et le comportement paramagnétique. En prenant en compte l'aspect collectif du ferromagnétisme, il a mis en lumière l'extrême complexité du phénomène : nous nous contenterons pour la

suite de présenter deux modèles simples permettant d'aborder les résultats expérimentaux. Nous présenterons l'interaction d'échange qui est adaptée à des spins localisés et le modèle de Stoner, approprié pour les systèmes d'électrons délocalisés.

## Interaction d'échange

Cette théorie, développée par Heisenberg en 1928 permet de prendre en compte l'interaction électrostatique de deux électrons tout en tenant compte de leur nature de fermion [25].

Considérons deux électrons de noyaux a et b possédant les électrons 1 et 2. L'Hamiltonien de ce système est :

$$H = \frac{e^2}{r_{ab}} + \frac{e^2}{r_{12}} - \frac{e^2}{r_{1b}} - \frac{e^2}{r_{2a}} \quad (1.1)$$

En supposant que le moment orbital des électrons est nul, les fonctions propres de cet Hamiltonien  $\Psi$  peuvent s'écrire comme le produit de la fonction d'onde pour un électron sans spin  $\Phi(r)$  et du spin  $\chi$  :  $\Psi = \Phi(r)\chi$ . Le caractère antisymétrique de  $\Psi$  donne alors lieu à deux types de fonctions propres : de type singulet et triplet. Le spin total  $\mathbf{S} = \mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2$  correspond aux valeurs propres  $s=1$  et  $s_z = 0, \pm 1$  de  $\mathbf{S}^2$  et  $S_z$  pour la fonction d'onde triplet. Pour la fonction d'onde singulet  $s=0$  et  $s_z = 0$ .

$$\Psi_{singulet} = A[\Phi_a(r_1)\Phi_b(r_2) + \Phi_a(r_2)\Phi_b(r_1)][\chi_\alpha(1)\chi_\beta(2) - \chi_\alpha(2)\chi_\beta(1)] \quad (1.2)$$

$$\Psi_{triplet} = B[\Phi_a(r_1)\Phi_b(r_2) - \Phi_a(r_2)\Phi_b(r_1)] \begin{vmatrix} [\chi_\alpha(1)\chi_\alpha(2)] \\ [\chi_\alpha(1)\chi_\beta(2) + \chi_\alpha(2)\chi_\beta(1)] \\ [\chi_\beta(1)\chi_\beta(2)] \end{vmatrix} \quad (1.3)$$

Les énergies de ces états sont :

$$E_{triplet} = B^2(K_{12} + J_{12}) \quad (1.4)$$

$$E_{singulet} = A^2(K_{12} - J_{12}) \quad (1.5)$$

Avec :

$$K_{12} = \int dv_1 dv_2 \Phi_a^*(r_1)\Phi_b^*(r_2)H\Phi_a(r_1)\Phi_b(r_2) \quad (1.6)$$

$$J_{12} = \int dv_1 dv_2 \Phi_a^*(r_1)\Phi_b^*(r_2)H\Phi_a(r_2)\Phi_b(r_1) \quad (1.7)$$

L'énergie de ces états peut se réécrire  $E = K - \frac{1}{2}J_{12} - 2J_{12}\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$ , c'est pourquoi l'Hamiltonien d'échange pour deux atomes ayant chacun un électron s'écrit en général  $H_{ij} = -2J_{ij}\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$  bien que l'interaction d'échange soit due à une interaction électrostatique.

Nous présenterons au chapitre 5, p.79 un échantillon ferrimagnétique dont les propriétés magnétiques peuvent être expliquées par une interaction d'échange antiferromagnétique entre deux sous-réseaux de moments magnétiques différents ; dans ce cas, l'intégrale d'échange est négative et tend à aligner les moments magnétiques anti-parallèlement.

## Modèle de Stoner

Ce modèle prend en compte la structure de bande de métaux ferromagnétiques : il est bien adapté pour le nickel par exemple [26]. En effet la délocalisation des électrons dans les métaux peut rendre incomplet l'application du modèle d'Heisenberg décrit précédemment. Il a été constaté expérimentalement que les métaux ferromagnétiques (Fe, Gd, Ni, Co) possèdent un nombre fractionnaire d'électrons portant l'aimantation : la quantité  $n_{eff} = \frac{M(0K)}{N\mu_B}$  n'est pas entière comme on pourrait s'y attendre en considérant l'interaction d'échange. Elle est donnée par l'aimantation volumique à 0K  $M(0K)$  et le nombre volumique d'atomes considérés  $N$ . Ceci est dû au fait que les électrons des métaux de transition de la 4e période se répartissent sur les bandes 4s et 3d mais seul les électrons 3d contribuent à l'aimantation [27]. Il est donc bien nécessaire de considérer la structure de bande pour décrire l'aimantation de ces matériaux ferromagnétiques.

Le modèle de Stoner est basé sur trois hypothèses :

1. La bande 3d est parabolique au niveau de Fermi.
2. L'énergie  $E_{\pm}$  d'un électron de spin parallèle (+) ou antiparallèle (-) à l'aimantation  $M$  est calculée dans le champ moléculaire  $E_{\pm} = \pm N_w M \mu_B$  avec  $N_w$  la constante d'interaction avec le champ moléculaire.
3. La distribution électronique obéit à la distribution de Fermi-Dirac :  $f(E_{\pm}, T) = \frac{1}{1 + e^{\frac{E_{\pm}}{k_B T}}}$

Ainsi l'aimantation totale correspond au magnéton de Bohr multiplié par la différence entre le nombre d'électrons portant un spin parallèle et antiparallèle à l'aimantation :

$$M(T) = \mu_B \int [f(E_+, T) - f(E_-, T)] \frac{\rho(E)}{2V} dE \quad (1.8)$$

Ici  $\rho(E)$  décrit la densité d'états et  $V$  le volume considéré. Cette théorie permet de modéliser la dépendance de l'aimantation en fonction de la température. Elle fournit aussi un critère qualitatif pour estimer les propriétés ferromagnétiques d'un métal en fonction de la densité d'états au niveau de Fermi  $\rho(E_F)$  et de l'intégrale d'échange  $I$  : si  $\rho(E_F)I > 1$  alors le métal considéré a des propriétés ferromagnétiques. Cependant elle prédit une température de Curie trop élevée car elle néglige les fluctuations de spins : des approches plus développées combinent les aspects itinérants du modèle de Stoner et localisés du modèle de Heisenberg [28], [29].

### 1.3 Direction de l'aimantation

Nous venons d'expliquer l'origine de l'aimantation dans les matériaux ferromagnétiques à l'aide de l'interaction d'échange, et comment l'appliquer à un métal ferromagnétique. Nous examinerons dans cette section comment expliquer l'apparition dans un échantillon cristallin d'une direction de facile aimantation. Celle-ci peut être déterminée en calculant le minimum d'énergie libre du système à l'aide du modèle de Stoner-Wohlfahrt [30].

## Anisotropie magnéto-cristalline

Expérimentalement, on constate que l'aimantation s'aligne préférentiellement sur certains axes cristallographiques, ceci indépendamment de la forme de l'échantillon. A cette anisotropie nous pouvons associer une énergie libre : il s'agit, à température constante, du travail à fournir pour modifier la direction de l'aimantation. Dans le cas d'un cristal cubique l'énergie libre d'anisotropie magnéto-cristalline s'écrit en fonction des angles  $\alpha_x, \alpha_y, \alpha_z$  définis à la figure 1.2 :

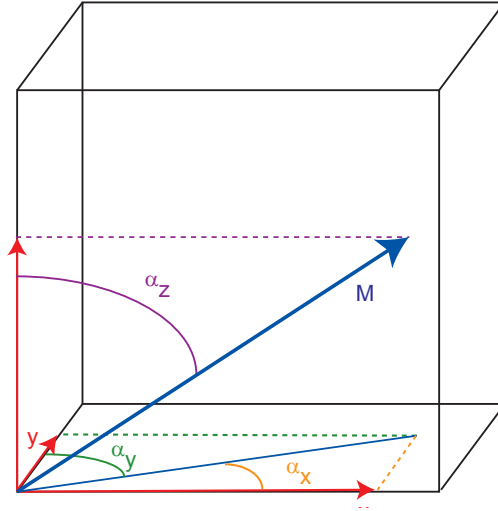


FIG. 1.2 – Définition des angles nécessaires pour l'écriture de l'énergie magnéto-cristalline dans un cristal cubique.

$$F = K_1 [\cos(\alpha_x)^2 \cos(\alpha_y)^2 + \cos(\alpha_x)^2 \cos(\alpha_z)^2 + \cos(\alpha_y)^2 \cos(\alpha_z)^2] \quad (1.9)$$

$$+ K_2 \cos(\alpha_x)^2 \cos(\alpha_y)^2 \cos(\alpha_z)^2 \quad (1.10)$$

L'origine microscopique de ce terme réside dans l'interaction spin-orbite : les fonctions d'ondes orbitales reflètent la structure cristalline qu'elles couplent aux spins via l'interaction spin-orbite [31]. Ainsi la constante d'anisotropie  $K_1$  peut être écrite en fonction de l'intégrale d'échange  $J_e$ , de la constante de couplage spin-orbite  $\lambda$  et de l'écart d'énergie dû au couplage spin-orbite  $\Delta E$  :

$$K_1 \approx J_e \left( \frac{\lambda}{\Delta E} \right)^4 \quad (1.11)$$

## Anisotropie de forme

La forme de l'échantillon considéré intervient dans la direction préférentielle d'aimantation suite à des interactions dipolaires magnétiques à longue distance. Pour un film fin, l'anisotropie de forme placera l'axe de facile aimantation dans le plan de l'échantillon. Si l'on souhaite un film fin ayant une anisotropie perpendiculaire au film, il faut utiliser un matériau dont le couplage spin-orbite est suffisamment important pour que  $K_1$  puisse contrebalancer l'anisotropie de forme. L'échantillon étudié dans la publication [5] en est un exemple.

## Interaction Zeeman

L'interaction entre le champ magnétique appliqué  $\mathbf{B}$  et l'aimantation est décrite par l'interaction Zeeman pour le moment magnétique  $\mathbf{m}_i$  porté par chaque électron  $i$  :

$$E_{zeeman} = \sum_i -\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{B} \quad (1.12)$$

Elle a tendance à aligner les moments magnétiques parallèlement au champ magnétique appliqué.

La direction de l'aimantation due aux trois types d'énergies citées ci-dessus nous permettra de comprendre l'origine de la précession ultra-rapide dont le principe et les mesures expérimentales seront décrits aux sections 1.7.2, page 19 et 5.3, page 87. Nous n'aurons pas besoin de considérer la structure en domaines magnétiques dans les mesures que nous décrirons. Les expériences sont toujours effectuées sous un champ magnétique suffisant pour saturer l'aimantation, c'est-à-dire que toutes les zones de l'échantillon correspondent à une même direction d'aimantation.

## 1.4 Magnéto-optique linéaire : définition des effets Kerr et Faraday

Une onde électromagnétique interagit avec un matériau en étant partiellement réfléchi et transmise. A partir d'une onde incidente polarisée linéairement, les ondes transmises et réfléchies sont en général polarisées elliptiquement, le grand axe de l'ellipse ayant subi une rotation par rapport à la polarisation incidente. Les effets Kerr et Faraday magnéto-optiques décrivent les changements de polarisation dus à l'aimantation du matériau. L'effet Kerr désigne la modification de la polarisation réfléchi tandis que l'effet Faraday s'applique à l'onde transmise.

Une description classique des effets magnéto-optiques est obtenue en considérant un électron lié (oscillateur harmonique) évoluant dans un champ magnétique statique sous l'effet de la force de Lorentz et interagissant avec un champ électrique oscillant. L'expression de la polarisation de l'atome permet de calculer le tenseur susceptibilité  $[\chi]$  :

$$\mathbf{P} = \epsilon_0[\chi]\mathbf{E} \quad (1.13)$$

Ce modèle classique de Voigt permet d'exprimer le tenseur diélectrique dont le terme d'anisotropie  $\frac{\chi_{xy}}{1+\chi_{zz}}$  est proportionnel au champ magnétique appliqué selon  $z$  [32] :

$$[\epsilon] = \epsilon_0(1 + [\chi]) = n^2 \begin{bmatrix} 1 + \frac{\chi_{xx} - \chi_{zz}}{1 + \chi_{zz}} & -i \frac{\chi_{xy}}{1 + \chi_{zz}} & 0 \\ i \frac{\chi_{xy}}{1 + \chi_{zz}} & 1 + \frac{\chi_{xx} - \chi_{zz}}{1 + \chi_{zz}} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (1.14)$$

Au vu de l'ordre de grandeur de la rotation et de l'ellipticité magnéto-optiques mesurées dans des matériaux ferromagnétiques, le champ magnétique nécessaire pour produire ces effets magnéto-optiques est très important : Voigt l'a estimé à  $10^6 - 10^7$  Oe. Il s'agit de l'ordre de grandeur du champ moléculaire de Weiss, toutefois celui-ci ne peut pas être à l'origine d'un déplacement des électrons et donc de propriétés optiques : il faut invoquer l'interaction spin-orbite pour pouvoir expliquer l'origine des effets Kerr et Faraday.

## 1.5 Magnéto-optique : origine microscopique des Effets Kerr et Faraday

Les mesures magnéto-optiques permettent de remonter à l'aimantation d'un matériau à partir des modifications de polarisation qu'il induit. Depuis les années 90, on distingue les effets opto-magnétiques qui désignent la modification de l'aimantation spécifiquement en fonction de la polarisation de la lumière incidente : il s'agit d'un effet non-linéaire en champ électrique laser. Les mesures de dynamique d'aimantation ultra-rapide que nous présenterons correspondent à la fois à un phénomène opto-magnétique puisqu'elles perturbent l'aimantation et à un phénomène magnéto-optique car la polarisation du rayonnement émis donne accès à l'aimantation.

### 1.5.1 Approche de Hulme - 1932

Hulme propose en premier d'introduire l'interaction spin-orbite pour expliquer les effets magnéto-optiques [33]. En effet l'Hamiltonien spin-orbite, dans sa forme la plus générale :

$$H_{spin-orbite} = \frac{q}{2m^2c^2} \mathbf{S} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}) \quad (1.15)$$

relie les propriétés de mobilité des électrons (à travers leur moment  $\mathbf{p}$ ) aux propriétés magnétiques (à travers le spin  $\mathbf{S}$ ).

### 1.5.2 Approche de Argyres - 1955

#### Méthode

Argyres prend en compte l'interaction spin-orbite dans la structure de bande des matériaux dans le calcul des éléments de tenseur non-diagonaux de la conductivité et de la polarisabilité [12], [34]. Les équations de Maxwell permettent alors d'en déduire la rotation et l'ellipticité Faraday. Considérons l'Hamiltonien à un électron suivant, où  $U$  représente le potentiel électrique dû aux autres électrons et aux ions :

$$\begin{aligned} H &= \frac{1}{2m} [\mathbf{p} - q\mathbf{A}_L(r)]^2 - qU(r) + \frac{q}{2m^2c^2} \mathbf{S} \cdot [-\nabla U(r) \wedge \mathbf{p}] & (1.16) \\ &\simeq \frac{1}{2m} \mathbf{p}^2 - qU(r) & \text{noté } H_0 \\ &\quad + \frac{q}{2m^2c^2} \mathbf{S} \cdot [-\nabla U(r) \wedge \mathbf{p}] & \text{noté } H' \\ &\quad - \frac{q}{m} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_L(r) & \text{noté } H'' \end{aligned}$$

$H_0$  désigne l'énergie cinétique et potentielle de l'électron dans le potentiel ionique.  $H'$  désigne l'énergie de couplage spin-orbite avec le potentiel ionique et  $H''$  décrit l'interaction avec le laser. Ici aucun champ magnétique statique appliqué n'est considéré, l'interaction Zeeman n'est donc pas à prendre en compte.

La méthode d'Argyres consiste à considérer  $H'$  et  $H''$  comme des perturbations à  $H_0$ . Il calcule alors la densité de courant due à chacune des perturbations. En particulier, il distingue la densité de courant due au couplage spin-orbite dite "polarisée en spin" et

celle qui n'inclut pas de couplage spin-orbite dite "non-polarisée en spin". L'auteur en déduit les conductivités respectivement "polarisée en spin" et "non-polarisée en spin". En considérant un cristal cubique et après quelques simplifications, le tenseur de conductivité est formé de la conductivité "polarisée en spin" qui est non-diagonale et de la conductivité "non-polarisée en spin", diagonale.

### Quelques détails de calcul :

$H_0$  a pour fonctions propres les fonctions de Bloch  $\psi_n$

$H_0 + H'$  a pour fonctions propres  $\phi_{\lambda s}$  d'énergie  $\hbar\omega_{\lambda}^s$ .  $s$  désigne le spin  $\pm 1$  et  $\lambda$  désigne les autres nombres quantiques.

$H''$  est alors traité comme une perturbation dépendant du temps. Au premier ordre, la fonction d'onde perturbée vaut :

$$\Psi_{\lambda s} = \phi_{\lambda s} e^{-i\omega_{\lambda}^s t} + \sum_{\lambda' \sigma} a_{\lambda \lambda'}^{s \sigma} \phi_{\lambda' \sigma} e^{-i\omega_{\lambda'}^{\sigma} t} \quad (1.17)$$

Le coefficient  $a_{\lambda \lambda'}^{s \sigma}$  correspond à la quantité usuelle en théorie des perturbations dépendant du temps :

$$a_{\lambda \lambda'}^{s \sigma} = \frac{-i}{\hbar} \int_0^t \langle \phi_{\lambda' \sigma} | H'' | \phi_{\lambda s} \rangle e^{i(\omega_{\lambda'}^{\sigma} - \omega_{\lambda}^s) t} \quad (1.18)$$

A partir de ce système l'auteur calcule le courant de probabilité associé à chaque électron :

$$\mathbf{j} = \frac{-q}{m} \Re \{ \Psi^* [ \frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{q}{m} \mathbf{A}_L ] \Psi \} \quad (1.19)$$

L'expression de  $\mathbf{j}$  est relativement longue et il est inutile de la développer ici. La prochaine étape de calcul consiste à réécrire les fonctions d'onde  $\phi_{\lambda s}$  en se rappelant que  $H'$  est une perturbation pour  $H_0$ . Avec la théorie des perturbations ne dépendant pas du temps au premier ordre,  $\phi_{\lambda s}$  se réécrit :

$$\phi_{\lambda s} = \psi_n \alpha(s) + \sum_{m \neq n} \frac{\langle \psi_m \alpha(s) | H' | \psi_n \alpha(s) \rangle}{E_m - E_n} \psi_m \quad (1.20)$$

Ici  $\alpha$  est la fonction propre associée à la matrice de Pauli  $\sigma_z$ . En insérant l'expression de  $\phi_{\lambda s}$  dans les équations 1.17, puis 1.19, l'expression de  $\mathbf{j}$  devient une somme de contributions :

$$\begin{aligned} \mathbf{j} = & \mathbf{j}^0 \text{ contribution de } \psi_n^* \psi_n \\ & + \mathbf{j}^1 \text{ contribution de } \langle \psi_m \alpha(s) | H' | \psi_n \alpha(s) \rangle \end{aligned} \quad (1.21)$$

Toutes les contributions  $\mathbf{j}^1$  contiennent le couplage spin-orbite et sont dites "polarisées en spin". Ce sont elles qui relient les propriétés magnétiques du métal aux propriétés optiques. Les contributions  $\mathbf{j}^0$  ne contiennent pas de couplage spin-orbite et sont dites "non polarisées en spin".  $\mathbf{j}$  est la somme d'un terme dépendant du potentiel vecteur  $\mathbf{A}$  et

d'un terme dépendant de  $\frac{\partial A}{\partial t}$ . Le premier donne la conductivité, le second la polarisabilité. La conductivité non diagonale correspond à la conductivité issue des termes  $\mathbf{j}^1$  provenant du couplage spin-orbite.

Finalement, l'article d'Argyres montre que l'effet Faraday provient de la contribution

$$\sum_{m \neq n} \langle \psi_m \alpha(s) | \mathbf{S} \cdot [-\nabla U(r) \wedge \mathbf{p}] | \psi_n \alpha(s) \rangle$$

aux fonctions d'onde de Bloch non perturbées. Dans cette théorie qui s'applique pour des matériaux ferromagnétiques, il n'y a pas besoin de champ magnétique pour expliquer l'effet Faraday. Au contraire, si le matériau considéré n'est pas ferromagnétique, il faut introduire un champ magnétique statique comme le présentent Bennett et Stern, mais le principe de la théorie reste le même.

### 1.5.3 Approche de Bennett et Stern - 1965

La réponse des électrons à une onde électromagnétique peut être décrite dans l'espace réciproque par le tenseur de conductivité  $\sigma_{ij}(\mathbf{k}, \omega)$ . Pour des longueurs d'onde allant de l'infra-rouge jusqu'à l'ultra-violet, les longueurs d'onde dans les matériaux sont bien plus importantes que les distantes interatomiques, on peut donc approximer  $\mathbf{k} \simeq \mathbf{0}$  et calculer  $\sigma_{ij}(\mathbf{0}, \omega)$ . Par ailleurs le tenseur de conductivité peut être développé à l'ordre 1 en champ magnétique H appliqué si celui-ci est suffisamment faible :

$$[\sigma] = \begin{bmatrix} \sigma_{xx}^{(0)} & \sigma_{xy}^{(1)} H & 0 \\ -\sigma_{xy}^{(1)} H & \sigma_{xx}^{(0)} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (1.22)$$

La conductivité correspond à la fonction réponse de la densité de courant suite à une excitation des électrons par un champ électrique oscillant. Les parties réelles  $\sigma_{1ij}$  et imaginaires  $\sigma_{2ij}$  de la conductivité peuvent donc être reliées par les formules de Kramers-Kronig où P désigne la partie principale de Cauchy :

$$\begin{aligned} \sigma_{1ij}(k, \omega) &= \frac{2}{\pi} P \int_0^\infty \frac{\omega' \sigma_{2ij}(k, \omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \\ \sigma_{2ij}(k, \omega) &= -\frac{2}{\pi} \omega P \int_0^\infty \frac{\sigma_{1ij}(k, \omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \end{aligned} \quad (1.23)$$

La puissance P absorbée par des charges soumises à un champ  $\mathbf{E}$  et générant la densité de courant  $\mathbf{j}$  vaut :

$$P = \frac{1}{2} \int \Re[\mathbf{j}^* \cdot \mathbf{E}] dV$$

Alors la puissance absorbée pour des champs électriques circulaires + ou circulaires - vaut :

$$P_{\pm} = \frac{1}{2} V E^2 [\sigma_{1xx} \mp \sigma_{2xy}]$$



Elle est reliée à la puissance absorbée par l'ensemble des processus quantiques i d'énergie comprise dans  $[\hbar\omega, \hbar(\omega + d\omega)]$  :

$$Pd\omega = \hbar\omega \sum_i W_i$$

Le calcul de Bennett et Stern consiste à déterminer la probabilité de transition en fonction de la polarisation de l'onde électromagnétique  $W_{\text{état initial} \rightarrow \text{état final}}^{\text{polar}}$  pour en déduire le tenseur de conductivité. Pour cela, ils considèrent un électron en interaction avec le rayonnement en jauge de Coulomb ( $U_L = 0$  et  $\mathbf{A}_L$  est transverse de même direction que  $\mathbf{E}_L$  qui est une onde plane) dans l'approximation semi-classique. L'électron est également soumis à un potentiel vecteur statique  $\mathbf{A}_M$ . L'Hamiltonien total est la somme de l'Hamiltonien  $H_0$  en l'absence de couplage avec le laser, et de l'Hamiltonien d'interaction avec le rayonnement  $H_{int}$  :

$$H = H_0 + H_{int}$$

$H_0$  contient l'énergie cinétique, l'énergie de chaque électron dans le potentiel ionique, l'énergie d'interaction Coulombienne entre les N électrons, et enfin du couplage spin-orbite entre le champ électrique des ions, les spins et le moment des électrons [35] :

$$H_0 = \frac{1}{2m}[\mathbf{p} - q\mathbf{A}_M(r)]^2 + V_{ions}(r) + V_{Coulombien} + \frac{q}{2m^2c^2}\mathbf{S} \cdot [-\nabla U_{ions} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_M)] \quad (1.24)$$

L'Hamiltonien d'interaction dépend de la quantité de mouvement  $\mathbf{\Pi}$  :

$$\begin{aligned} H_{int} &= -\frac{q}{m}\mathbf{\Pi} \cdot \mathbf{A}_L \\ \mathbf{\Pi} &= \frac{m}{i\hbar}[\mathbf{r}, H_0] \\ &= \mathbf{p} - q\mathbf{A}_M(r) + \frac{q^2}{2m^2c^2}\mathbf{S} \wedge \nabla U_{ions}(r) \end{aligned} \quad (1.25)$$

Les probabilités de transition d'un état  $\alpha$  vers un état  $\beta$  en fonction de la polarisation du laser s'expriment en fonction de  $\Pi^\pm = \Pi_x \pm i\Pi_y$  et de  $\omega_{\beta\alpha}$ , qui désigne la pulsation associée à la différence d'énergie des niveaux  $f$  et  $i$  :

$$W_{fi}^\pm = \frac{\pi E^* E q^2}{4\hbar m \omega^2} \left[ |\langle f|\Pi^\mp|i\rangle|^2 \delta(\hbar\omega_{fi} + \hbar\omega) + |\langle f|\Pi^\mp|i\rangle|^2 \delta(\hbar\omega_{fi} - \hbar\omega) \right] \quad (1.26)$$

La conductivité complexe non-diagonale pour  $\omega > 0$  vaut alors :

$$\begin{aligned} \sigma_{1xy} &= \frac{q^2}{2\hbar m^2 V} \sum_{i,f} f(\epsilon_i)[1 - f(\epsilon_f)] \left[ \frac{|\langle f|\Pi^-|i\rangle|^2}{\omega_{fi}^2 - \omega^2} - \frac{|\langle f|\Pi^+|i\rangle|^2}{\omega_{fi}^2 - \omega^2} \right] \\ \sigma_{2xy} &= \frac{q^2 \pi}{4\hbar \omega m^2 V} \sum_{i,f} f(\epsilon_i)[1 - f(\epsilon_f)] \left[ |\langle f|\Pi^-|i\rangle|^2 - |\langle f|\Pi^+|i\rangle|^2 \right] \delta(\hbar\omega_{fi} - \hbar\omega) \end{aligned} \quad (1.27)$$

### 1.5.4 Synthèse des effets magnéto-optiques dans les métaux de transition

Nous avons présenté deux méthodes permettant de calculer le tenseur de conductivité à partir des propriétés microscopiques du matériau considéré :

1. Le calcul explicite de  $\mathbf{j} = \frac{-q}{m} \Re \Psi^* [\frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{q}{m} \mathbf{A} + \frac{\hbar}{4mc^2} \mathbf{S} \wedge \nabla V] \Psi$  suivi de l'identification des coefficients des champs électriques et magnétiques avec le tenseur de conductivité. Il s'agit de la méthode introduite par Argyres.
2. Le calcul des probabilités de transition pour en déduire la puissance absorbée ainsi que le tenseur de conductivité. C'est l'approche de Bennett et Stern.

Dans un métal de transition l'interaction dipolaire ne rend possible que les transitions de la bande d vers la bande p. Dans le cas d'un métal ferromagnétique, la figure 1.3 ci-dessous montre les transitions induites par un laser polarisé circulairement. A gauche sont schématisées les transitions pour un spin up et au milieu, pour un spin down. La figure de droite représente le spectre résultant de ce dichroïsme circulaire. Elles sont extraites de la référence [36].

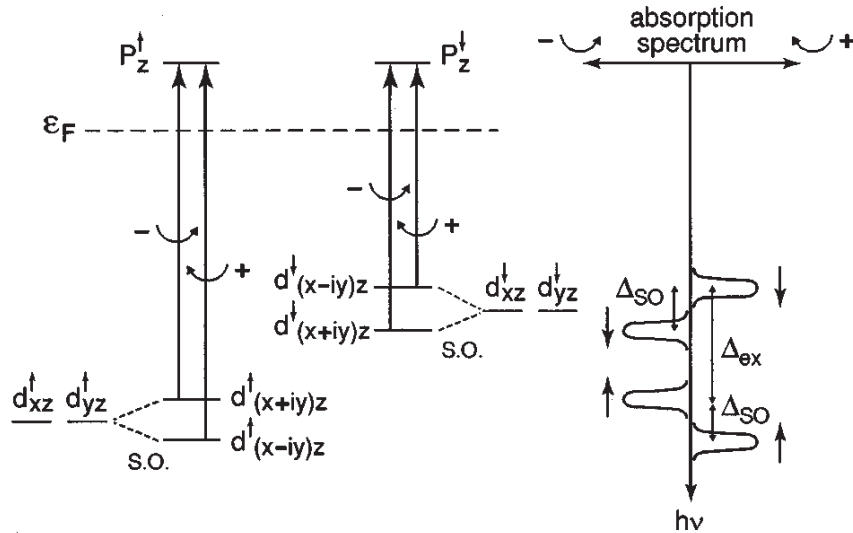


FIG. 1.3 – Schéma des niveaux d'énergie pour un solide ferromagnétique montrant les transitions dipolaires électriques pour la lumière polarisée circulairement droite et gauche. Le spectre d'absorption en fonction de l'énergie des photons  $\hbar\omega$  est indiqué à droite.

La figure 1.4 est similaire à la figure 1 dans le cas d'un matériau paramagnétique sans champ moléculaire de Weiss ni champ magnétique appliqué : nous constatons qu'aucun effet magnéto-optique n'apparaît.

En magnéto-optique linéaire, l'étude d'un électron dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique montre que les transitions dominantes sont des transitions sans retournement de spins : sans spin-flips. On peut distinguer les transitions des spins up et des spins down : la conductivité non diagonale reflète ainsi la population initiale de spins, c'est-à-dire l'aimantation du matériau, sans la perturber. Ce signal magnéto-optique statique est bien proportionnel à l'aimantation du matériaux. En considérant que les termes de spin-flip sont négligeables dans l'Hamiltonien d'interaction on peut considérer que la mesure magnéto-optique statique ne perturbe pas l'aimantation. Le Gall a formalisé les effets magnéto-optiques dans le cadre de la seconde quantification [37].

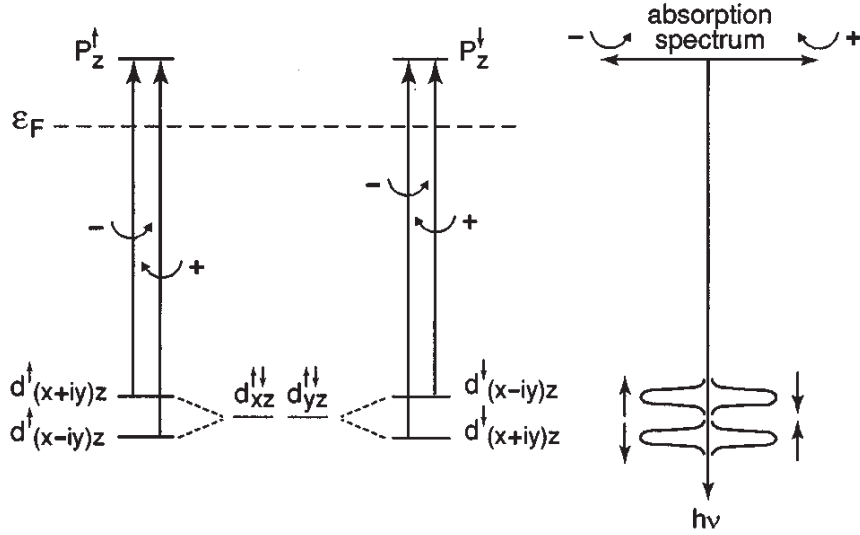


FIG. 1.4 – Idem que figure 1.3 dans le cas d'un matériau paramagnétique.

Nous verrons dans les sections suivantes comment, dans un système à un électron, une mesure magnéto-optique non-linéaire peut perturber l'aimantation du système à l'ordre deux et donner une information sur cette perturbation à l'ordre trois.

Une autre approche consiste à considérer plusieurs électrons et à prendre en compte leur couplage électrostatique (qui donne lieu à l'interaction d'échange) [38], [39]. Dans le cas de deux électrons, des niveaux singulets et triplets se forment et les règles de sélection dipolaires électriques évoluent en conséquence. Elles dépendent en fait du type de couplage prédominant dans le système :  $\mathbf{L} - \mathbf{L}$  ou  $\mathbf{J} - \mathbf{J}$ . Ici  $\mathbf{L} = \mathbf{L}_1 + \mathbf{L}_2$  et  $\mathbf{J} = \mathbf{J}_1 + \mathbf{J}_2$ , les indices correspondants aux deux électrons [40]. Les règles de transition dipolaires électriques dans un système multiplet peuvent conduire à une modification de l'aimantation à l'ordre un en perturbation du laser [4], [41].

### 1.5.5 Calcul de la rotation magnéto-optique à partir du tenseur de conductivité

Pour une polarisation circulaire + ou - (correspondant aux polarisations circulaires droite et gauche) le champ électrique et la densité de courant induit s'écrivent [42], [13] :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\pm} &= E(\omega)[\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y]e^{-i\omega t} \\ \mathbf{j}_{\pm} &= [\sigma_{xx} \pm i\sigma_{xy}]\mathbf{E}_{\pm} = [\sigma_{\pm}]\mathbf{E}_{\pm} \end{aligned} \quad (1.28)$$

Par ailleurs la densité de courant est reliée au vecteur déplacement électrique  $\mathbf{D}$  :

$$\mathbf{j} = -\frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} = -i\omega\epsilon_0(1 + \chi)\mathbf{E}$$

L'indice optique complexe pour une onde polarisée circulairement s'écrit :

$$\begin{aligned} \tilde{n} &= n + i\kappa \\ \tilde{n}^2 &= 1 + \chi \end{aligned} \quad (1.29)$$

D'où le lien entre l'indice optique complexe et la conductivité :

$$(n_{\pm} + i\kappa_{\pm})^2 = \frac{i\sigma_{\pm}}{\epsilon_0\omega}$$

Après traversée du matériaux d'épaisseur  $d$ , deux ondes circulaires  $+$  et  $-$ , de pulsation  $\omega$ , voyant chacune l'indice  $n_+$  et  $n_-$  ont pour expression :

$$\mathbf{E}_+ = E \begin{bmatrix} \cos(\omega t + \frac{\omega n_+ d}{c}) \\ \sin(\omega t + \frac{\omega n_+ d}{c}) \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{E}_- = E \begin{bmatrix} \cos(\omega t + \frac{\omega n_- d}{c}) \\ -\sin(\omega t + \frac{\omega n_- d}{c}) \end{bmatrix}$$

La rotation induite par le déphasage des composantes selon  $e_x$  et  $e_y$  de l'onde résultante vaut :  $\theta = \frac{\omega d}{2c}(n_+ - n_-)$ . Ainsi la rotation Faraday d'une onde électromagnétique transmise par un échantillon soumis à un champ magnétique faible  $H$  vaut [13] :

$$\theta_{trans} = -\frac{2\pi}{c|\tilde{n}_{H=0}|^2} [\kappa_{H=0}\sigma_{2xy}^{(1)} + n_{H=0}\sigma_{1xy}^{(1)}] \cdot d \cdot H \quad (1.30)$$

Dans notre approche à un atome, nous ne considérons pas d'effet de propagation, la biréfringence (due à la partie réelle de l'indice optique) n'est donc pas modélisée. Nous ne considérons que la polarisation du champ rayonné à la suite de l'absorption du champ incident (due à la partie imaginaire de l'indice optique).

## 1.6 Procédures expérimentales

Afin d'avoir accès à des dynamiques à l'échelle de la femtoseconde, il faut remplacer les systèmes de détection électroniques usuels par des techniques d'optique non-linéaire de type pompe-sonde. En effet les meilleures résolutions temporelles pour les caméras à balayage de fente sont de l'ordre de 2 ps alors que les techniques pompe-sonde sont limitées principalement par la durée des impulsions. Les configurations de type pompe-sonde consistent à faire varier le délai entre deux impulsions ultra-rapides. Pour chaque délai, le signal non-linéaire rayonné par le matériau à la suite de son interaction avec les deux impulsions est intégré pendant le temps d'acquisition des détecteurs électroniques conventionnels (photodiode, caméra, photomultiplicateur, détecteur de Mott dans le cas de photo-emission polarisée en spin ...).

Les effets optiques non-linéaires étudiés sont en général d'ordre deux ou trois. La génération de second harmonique permet plus spécifiquement d'étudier la dynamique de l'aimantation aux surface et interfaces où l'éventuelle symétrie d'inversion est brisée. Concernant les effets d'ordre trois, ils sont extrêmement variés en fonction de la configuration expérimentale choisie. Ainsi la technique pompe-sonde correspond à la détection du signal dans la direction de la sonde. Elle mélange la réponse cohérente, aux temps courts et la réponse des populations, aux temps longs.

Le spectre de la pompe et de la sonde sont très importants pour interpréter les résultats par rapport à la structure de bande du matériau étudié : dans le visible, l'IR et X, le même phénomène aura des dynamiques différentes.

## 1.7 Dynamique des charges et de l'aimantation

### 1.7.1 Dynamique des charges

Si l'impulsion excitatrice est suffisamment courte, comme c'est le cas dans une expérience pompe-sonde femtoseconde, les électrons peuvent acquérir une température différente du réseau. Après l'impulsion excitatrice, la distribution électronique correspond à une distribution perturbée évoluant au cours du temps sous l'effet des collisions électrons-électrons et électrons-phonons. La notion de température ne peut être définie qu'à partir de l'instant où l'on retrouve une distribution électronique de Fermi-Dirac. La température électronique est d'abord supérieure à la température initiale puis décroît à la suite de l'interaction entre les électrons et le réseau comme indiqué dans la figure 1.5.

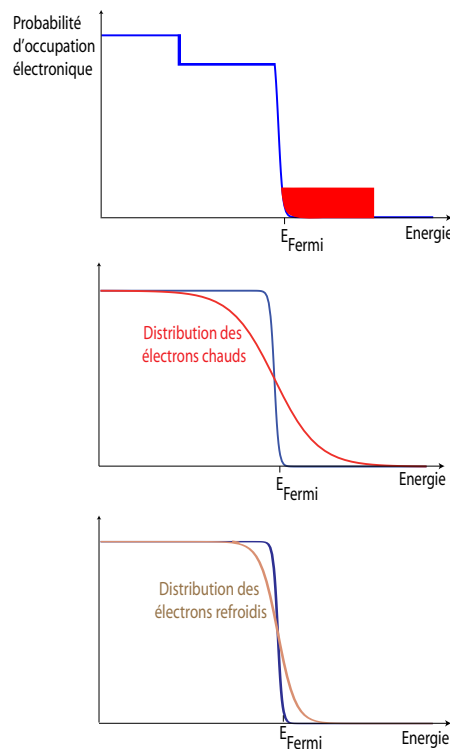


FIG. 1.5 – Evolution de la distribution électronique avant et après la thermalisation.

Deux échelles de temps interviennent dans la dynamique ultra-rapide des électrons : le régime athermal lorsque la distribution électronique ne peut pas être décrite par une distribution de Fermi-Dirac et le régime thermal où une température est associée à la distribution électronique.

#### Modèle à deux températures

Le modèle le plus simple pour décrire la dynamique des charges après leur thermalisation est le modèle phénoménologique "à deux températures" ou 2TM. Il s'agit de modéliser le flux de chaleur entre électrons et réseau après excitation du matériau par une impulsion laser intense dépendant du temps. On associe deux températures  $T_e$  et  $T_l$  aux électrons et au réseau que l'on décrit par deux bains en interaction.

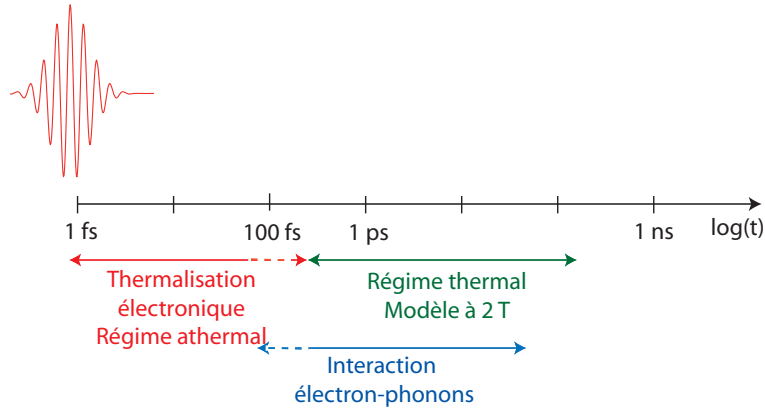


FIG. 1.6 – Deux échelles de temps pour la dynamique électronique : le régime athermal et le régime thermal. Le modèle à deux températures n’est valable que lorsque les électrons sont thermalisés.

La variation d’énergie de chaque bain correspond à l’énergie perdue par transport diffusif, au transfert d’énergie électron-réseau et à l’énergie reçue de l’impulsion laser [3]. Ecrivons l’équation de la chaleur pour les bains d’électrons et le réseau de températures respectives  $T_e$  et  $T_l$  :

$$\begin{aligned} C_v^e \frac{dT_e}{dt} &= \nabla(K\nabla T) - H(T_e, T_l) + P(t) \\ C_v^l \frac{dT_l}{dt} &= H(T_e, T_l) \end{aligned} \quad (1.31)$$

avec :

$$\begin{aligned} C_v^e, C_v^l &: \text{Chaleurs spécifiques volumiques des électrons et du réseau.} \\ K &: \text{Conductivité thermique.} \\ H &: \text{Taux de transfert d’énergie des électrons vers le réseau.} \\ P &: \text{Puissance reçue du laser.} \end{aligned} \quad (1.32)$$

Cette équation est valable si le laser n’agit directement que sur le bain électronique : ainsi  $T_e \geq T_l$  après l’impulsion. Nous considérons également que la température de chaque bain est homogène si la diffusion et le transport ballistique sont négligeables. Pour un échantillon d’argent de 45 nm, le temps caractéristique de transport diffusif est de 50 fs tandis que pour le transport ballistique il est de 30 fs. Avec une durée d’impulsions inférieur ou égale à ces ordres de grandeur, la température ne peut pas être considérée comme homogène.

Enfin, la température initiale du réseau est celle du milieu environnant donnée par exemple par un thermomètre accolé à l’échantillon : on estime que les variations de température du réseau sont faibles par rapport aux variations de température électronique. La capacité calorifique des phonons domine :  $C_v^l \gg C_v^e$ . La capacité calorifique des électrons s’écrit  $C_v^e = \gamma T_e = \frac{2\pi^2}{3} k_B^2 T_e g(E_F)$ .

En régime de faible excitation, le couplage électron-phonon dépend de la valeur de la

température du réseau par rapport à la température de Debye  $T_D$  :

$$\begin{aligned} H(T_e, T_l) &\propto T_L^4 [T_e - T_l] && \text{Si } T_l \ll T_D \\ H(T_e, T_l) &\propto G_{el} [T_e - T_l] && \text{Si } T_l \geq T_D \end{aligned} \quad (1.33)$$

$G_{el}$  désigne la constante d'interaction entre électrons et réseau.

La solution de l'équation 1.31 est une évolution exponentielle décroissante de la température et de l'énergie électroniques. Cette dernière possède la durée caractéristique de décroissance  $\tau_E = \frac{2\pi^2 k_B^2 g(E_F)(T_e^2 - T_l^2)}{6H(T_e, T_l)}$  qui dépend du matériau, de la température du réseau et de l'intensité de l'excitation. La validité de ce modèle est vérifiée en comparant la durée caractéristique de cette décroissance à la durée mesurée expérimentalement par exemple sur le signal de réflectivité différentielle : il ne s'applique que lorsque les électrons sont parfaitement thermalisés à l'instant où débute la relaxation vers le réseau. En particulier à faible température et faible excitation le principe d'exclusion de Pauli ralentit les collisions électron-électron et donc la thermalisation électronique. Il faut alors intégrer la dynamique du système électronique hors équilibre comme indiqué dans la section suivante.

## Modèle athermal

Depuis les années 1990 d'importantes recherches ont été menées pour développer un modèle valable avant la thermalisation des électrons, intégrant la contribution des électrons non-thermalisés à la réponse optique de métaux nobles [2], [43], [3], [44].

Il s'agit de décrire l'évolution de la distribution des électrons hors équilibre à travers l'équation de Boltzmann 1.34. Notons  $\epsilon$  l'écart d'énergie à l'énergie de Fermi et  $n(\epsilon, t)$  l'écart de la distribution électronique à la distribution de Fermi-Dirac initiale. Les processus qui interviennent sont la diffusion électron-électron, la diffusion électron-phonon et la perturbation induite par l'impulsion laser. Dans cette écriture toutes les grandeurs sont homogènes spatialement. L'évolution de tout le système s'écrit alors [45], [46] :

$$\frac{\partial n(\epsilon, t)}{\partial t} = \left(\frac{\partial n(\epsilon, t)}{\partial t}\right)_{e-e} + \left(\frac{\partial n(\epsilon, t)}{\partial t}\right)_{e-ph} + \left(\frac{\partial n(\epsilon, t)}{\partial t}\right)_{source} \quad (1.34)$$

$$C_v^e \frac{dT_e}{dt} = -G_{el}(T_e - T_l) + \left(\frac{\partial n(\epsilon, t)}{\partial t}\right)_{e-e} \quad (1.35)$$

$$C_v^l \frac{dT_l}{dt} = G_{el}(T_e - T_l) + \left(\frac{\partial n(\epsilon, t)}{\partial t}\right)_{e-ph} \quad (1.36)$$

$\left(\frac{\partial n(\epsilon, t)}{\partial t}\right)_{source}$  désigne la densité d'énergie lumineuse absorbée par le matériau considéré. Dans le cas de métaux nobles, le taux de variation de la distribution électronique dû aux collisions électrons-électrons se calcule en considérant les états électroniques créés et disparus au cours d'une collision [47], [48], [49] :

$$\left(\frac{\partial n(\epsilon, t)}{\partial t}\right)_{e-e} = -\frac{n(\epsilon, t)}{\tau_0(E_F/\epsilon)^2} + \frac{6}{\tau_0 E_F^2} \int_{\epsilon}^{\infty} (\epsilon' - \epsilon) f(\epsilon', t) d\epsilon' \quad (1.37)$$

$$(1.38)$$

$\tau_0$  représente la durée de vie de l'électron excité s'il n'y avait pas le principe d'exclusion de Pauli pour limiter l'espace des phases disponible.  $\tau_0(E_F/\epsilon)^2$  est décrit dans le cadre de la

théorie des liquides de Fermi qui permet d'évaluer l'effet des interactions électron-électron [50]

Le taux de variation de la distribution électronique dû aux collisions électrons-phonons correspond approximativement à l'émission spontanée. Nous négligeons ici l'absorption et l'émission stimulée d'un phonon. Ici  $\dot{q}$  désigne le taux de transfert des électrons vers le réseau [51].

$$\left(\frac{\partial n(\epsilon, t)}{\partial t}\right)_{e-ph} \approx -\dot{q} \frac{n(\epsilon, t)}{\tau_0 E_F} \quad (1.39)$$

## 1.7.2 Dynamique des spins

### Modèle à trois bains

La première modélisation de la dynamique ultra-rapide de l'aimantation a été une extension du 2TM à un modèle phénoménologique à trois bains : les spins, les électrons et le réseau [1]. Sur la base des approximations utilisées dans le modèle à deux températures et en associant une température  $T_s$  à la distribution de spins, trois équations d'évolution apparaissent :

$$C_v^e \frac{dT_e}{dt} = -G_{el}(T_e - T_l) - G_{es}(T_e - T_l) + P(t) \quad (1.40)$$

$$C_s^s \frac{dT_s}{dt} = -G_{sl}(T_s - T_l) - G_{es}(T_s - T_e) \quad (1.41)$$

$$C_v^l \frac{dT_l}{dt} = -G_{el}(T_l - T_e) - G_{sl}(T_l - T_s)$$

$G_{sl}$  désigne la constante d'interaction spin-réseau.

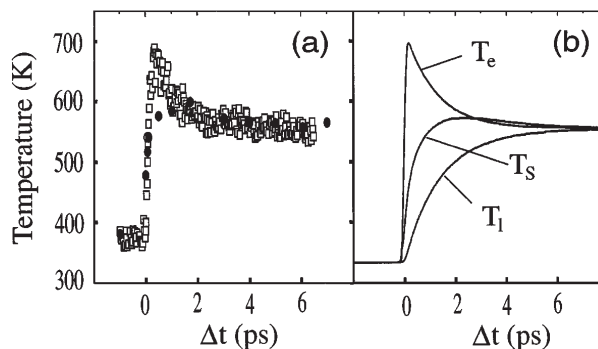


FIG. 1.7 – Températures électroniques et de spin obtenues à partir de mesures expérimentales sur un film de Nickel (température de Curie 631 K) d'épaisseur 22 nm protégé par 100 nm de  $MgF_2$  (a). Calcul des températures de spin, électroniques, et du réseau à l'aide du modèle à trois températures (b). Figure extraite de la référence [1].

### Processus à l'origine de la modification d'aimantation

La désaimantation se produit pendant la thermalisation des électrons et la redistribution des quasiparticules autour du niveau de Fermi. Guidoni et al. ont montré que, dans



le régime de faible excitation, la dynamique des spins est conduite par la température électronique [52]. Quels sont les processus physiques à l'origine de la désaimantation ?

- En 2005, Koopmans et al. ont proposé un mécanisme de retournement des spins par diffusion avec les phonons : il s'agit d'un processus de type Elliott-Yafet [10]. En 2010, ils ont interprété les mesures de Stamm et al. par ce mécanisme qu'ils ont intégré dans un modèle à trois températures "microscopique" [53]. Ce processus ne permet cependant pas d'expliquer la dépendance en polarisation de la dynamique d'aimantation [54].
- En 2007, Stamm et al. ont montré par des mesures de XMCD que le transfert de moment angulaire des spins vers le réseau pouvait se produire en 120 fs car ils ont observé une augmentation de la localisation électronique dans cette gamme de temps [55].
- La désaimantation ultra-rapide au premier ordre est déterminée par la structure de bande comprenant l'interaction spin-orbite [56], [4], [41]. Ce modèle a été critiqué parce que le moment angulaire des photons ne semble pas suffisant pour induire la désaimantation [57].
- Un modèle où les quasiparticules excitées obéissent au modèle de Stoner, tout en appliquant la théorie d'Heisenberg pour les autres particules a été proposé par Scholl et al. [29] et J.-Y. Bigot [45].
- La diffusion électrons-magnons pourrait être à l'origine du retournement des spins. Carpenne et al. ont mesuré la dynamique d'aimantation de films fins de fer et ont montré que la dynamique ne correspondait pas à un processus de type électrons-phonons mais plutôt à une diffusion électron-magnon pendant 100 fs suivie d'un mécanisme de type Elliott-Yaffett en l'espace d'une picoseconde [58].
- Krauß et al. ont proposé un mécanisme d'échange coulombien entre électrons, similaire au processus d'Elliott-Yaffet à l'exception qu'il ne prend pas en compte les phonons, pour expliquer la désaimantation ultra-rapide dans des films de Co et Ni. Ils ne considéraient pas de bain de phonons dans leur modèle [11].
- Dans les semi-conducteurs, Cywinski et al. ont proposé un mécanisme d'échange  $sp-d$  : la désaimantation ultra-rapide proviendrait d'un transfert de spin des électrons  $d$  localisés vers les électrons de conduction  $sp$  [59].
- Battiato et al. ont proposé un modèle de transport superdiffusif pour les électrons polarisés en spin qui subissent des collisions électrons-électrons après leur excitation par le laser [9].
- Bigot et al. ont souligné l'importance des effets cohérents entre photons, électrons et spins pour comprendre la dynamique d'aimantation [6].

Cette liste montre que le débat autour de l'origine de la désaimantation reste vif et que les phénomènes physiques en jeu sont probablement de plusieurs types.

## Précession

L'aimantation peut précesser autour du champ magnétique effectif avec une période de quelques picosecondes et un amortissement de l'ordre de la centaine de picosecondes. Le comportement de l'aimantation est similaire au spin des noyaux en résonance magnétique nucléaire avec la différence qu'elle ne nécessite pas de champ magnétique tournant. Le mouvement de précession de l'aimantation  $\mathbf{M}_L = \frac{-e}{2m_e}\mathbf{L} = \gamma\mathbf{L}$  et  $\mathbf{M}_S = \frac{-e}{m_e}\mathbf{S} = 2\gamma\mathbf{S}$  autour du champ effectif s'obtient en écrivant l'équation d'évolution des moments cinétiques  $\mathbf{L}$  et  $\mathbf{S}$ .  $\gamma$  désigne le rapport gyromagnétique.

$$\begin{aligned}\frac{d\mathbf{L}}{dt} &= \mathbf{L} \wedge \mathbf{B}_{eff} \\ \frac{d\mathbf{M}_L}{dt} &= \gamma \mathbf{M}_L \wedge \mathbf{B}_{eff}\end{aligned}\tag{1.42}$$

De même :

$$\frac{d\mathbf{M}_S}{dt} = 2\gamma \mathbf{M}_S \wedge \mathbf{B}_{eff}$$

Dans ces équations, le module et la projection de  $\mathbf{M}$  sur l'axe de  $\mathbf{B}_{eff}$  sont constants : nous obtenons donc un mouvement de précession autour du champ effectif tant que le moment magnétique n'est pas parallèle au champ magnétique effectif. Dans un système réel, il faut ajouter un terme d'amortissement du mouvement de précession afin qu'aux temps longs, l'aimantation retrouve sa position d'équilibre. Si l'amortissement de la précession est identique pour  $M_x$ ,  $M_y$  et  $M_z$  on obtient l'équation de Landau-Lifshitz Gilbert 1.43 pour laquelle  $\mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0}$ . Soit  $\mathbf{e}_z$  l'axe du champ magnétique effectif.

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma \mathbf{M} \wedge \mathbf{H}_{eff} - \frac{\alpha}{|\mathbf{M}|} \mathbf{M} \wedge \frac{d\mathbf{M}}{dt}$$

Le champ effectif dans le matériau  $\mathbf{H}_{eff}$  dépend du champ appliqué, de l'anisotropie magnéto-cristalline et du champ démagnétisant : par conséquent  $\mathbf{H}_{eff}$  dépend du temps lorsque l'aimantation varie dans le temps. La résolution de l'équation du mouvement à l'échelle de la picoseconde est donc complexe et les phénomènes observés sont spécifiques à chaque structure étudiée en fonction de l'ordre de grandeur du champ appliqué, de l'anisotropie magnéto-cristalline et du champ démagnétisant. M. Vomir et al. [60] ont modélisé la précession avec un amortissement spécifique à chaque composante considérée : ce sont les équations de Bloch dans lesquelles ils ont ajouté un terme source pour la désaimantation, proportionnel à l'impulsion laser. Dans des films de Cobalt les auteurs ont montré que c'est l'anisotropie magnéto-cristalline qui est principalement responsable du mouvement de précession, gouverné par la température électronique [61].

Les équations de Bloch permettent d'associer un amortissement spécifique à la composante de l'aimantation parallèle au champ effectif initial et aux composantes orthogonales :

$$\frac{dM_x}{dt} = \gamma M_y H_{eff} - \frac{M_x}{T_{trans}}\tag{1.43}$$

$$\frac{dM_y}{dt} = -\gamma M_x H_{eff} - \frac{M_y}{T_{trans}}\tag{1.44}$$

$$\frac{dM_z}{dt} = -\frac{M_z^0 - M_z}{T_{long}}\tag{1.45}$$

L'amortissement de la précession est dû à l'interaction spin-phonon sauf près de la température de Curie où des interactions à longue portée génèrent une population de spins longuement hors équilibre [62], [63].

### 1.7.3 Dynamiques cohérentes

#### Dynamique pendant la cohérence des électrons

Au-delà de la question de l'origine de la modification de l'aimantation, nous savons que les électrons interagissent de manière cohérente avec une impulsion ultra-rapide ce qui aboutit

à une signature expérimentale aux temps courts. La dynamique électronique cohérente est bien décrite dans le formalisme de la matrice densité. Des mesures de mélange d'ondes permettent d'y avoir accès à l'aide de la configuration pompe-sonde, de configurations à trois faisceaux, d'écho de photon, etc... Le débat est vif autour de la dynamique de l'aimantation et en particulier de la dynamique des spins : interagissent-ils de manière cohérente avec l'impulsion ultra-rapide ?

Pour répondre à cette question J.-Y. Bigot et al. [6] ont mesuré la réponse magnéto-optique cohérente de films de nickel et de  $CoPt_3$ . La contribution optique cohérente a été obtenue à partir de mesures prises avec pompe et sonde parallèles (indice  $0^\circ$ ) et avec pompe et sonde perpendiculaires (indice  $90^\circ$ ) en calculant :

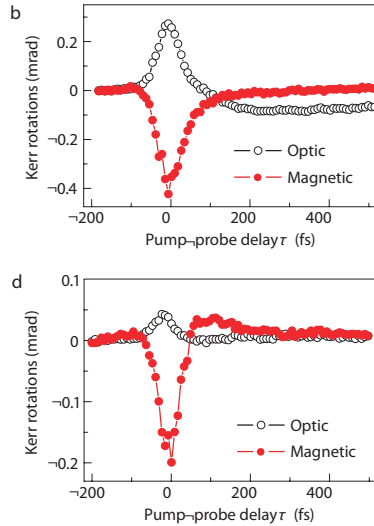


FIG. 1.8 – Rotation optique et magnéto-optique cohérente dans la configuration Kerr (en réflexion)[6] b : Nickel, d :  $CoPt_3$ .

$$\left. \frac{\Delta\theta}{\theta} \right|_{optique} = \left[ \frac{\Delta\theta}{\theta} +H + \frac{\Delta\theta}{\theta} -H \right]_{0^\circ} - \left[ \frac{\Delta\theta}{\theta} +H + \frac{\Delta\theta}{\theta} -H \right]_{90^\circ} \quad (1.46)$$

La différentiation par rapport à la polarisation des faisceaux pompe et sonde permet d'annuler la dynamique des populations électroniques. En effet celles-ci sont présentes pour les deux polarisations, alors que la dynamique cohérente est non-nulle seulement lorsque pompe et sonde sont polarisées parallèlement. La polarisation du matériau induite par la première impulsion peut alors se coupler à la polarisation de la seconde impulsion.

La contribution magnéto-optique cohérente a été obtenue en effectuant une double différentiation, par rapport au champ magnétique et par rapport à la polarisation des impulsions :

$$\left. \frac{\Delta\theta}{\theta} \right|_{magneto-optique} = \left[ \frac{\Delta\theta}{\theta} +H - \frac{\Delta\theta}{\theta} -H \right]_{0^\circ} - \left[ \frac{\Delta\theta}{\theta} +H - \frac{\Delta\theta}{\theta} -H \right]_{90^\circ} \quad (1.47)$$

Cette approche est novatrice. Cependant pour avoir accès à la dynamique cohérente, des impulsions plus courtes que les impulsions de 47 fs utilisées dans ces mesures sont nécessaires, la cohérence électronique étant estimée à 10 fs. Les mesures magnéto-optiques cohérentes correspondent ici à une convolution de la réponse cohérente du système et de la durée de l'impulsion.

## Dynamique cohérente de la précession

Kimel et al. [64] puis Hansteen et al. [65] ont montré la possibilité d'induire une précession dont la phase dépend de la polarisation circulaire droite ou gauche de l'impulsion pompe. Ils ont montré également que l'axe de polarisation linéaire de l'impulsion pompe modifie la phase de la précession. Cette dépendance de la phase de la précession avec la polarisation de l'impulsion pompe est attribuée à une interaction cohérente entre les photons et les spins. Pour cela la précession doit débuter pendant l'interaction avec le laser comme l'ont montré Bigot et al. : l'impulsion laser modifie directement le module de l'aimantation, ce qui influe sur l'anisotropie de forme et initialise le mouvement de précession [61]. La figure ci-dessous montre la précession obtenue dans un échantillon de  $DyFeO_3$  d'anisotropie très importante puisque la période de précession est très courte. L'échelle de temps ne permet toutefois pas de voir la réponse magnéto-optique durant l'impulsion laser de durée 200 fs. Pendant cette durée les électrons ont le temps d'interagir pour débiter le processus de thermalisation.

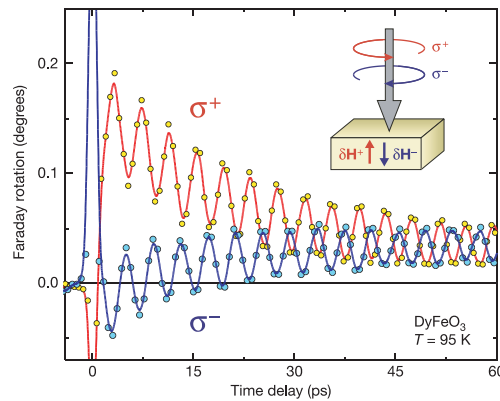


FIG. 1.9 – Précession obtenue pour deux polarisations circulaires droite et gauche de l'impulsion pompe [64].

Kimel et al. décrivent cette interaction cohérente par le modèle phénoménologique de l'effet Faraday inverse : il correspond à un champ magnétique et une aimantation statique créés par le champ laser à l'ordre deux en champ électrique du laser [66], [67]. Il s'agit d'un effet non-linéaire en champ électrique du laser qui ne dépend pas du champ magnétique du laser. A l'origine, cette théorie a été développée avec des lasers non impulsionnels et correspond à une interaction de type Raman entre un état fondamental (1) de spin donné, un état excité ayant un couplage spin-orbite important et un 2<sup>e</sup> état fondamental de spin inversé par rapport à l'état (1). Cette transition Raman permet un retournement du spin à l'ordre deux en champ laser. Elle dépend fortement de la fréquence du laser par rapport à la fréquence de transition. L'aimantation statique dans ce modèle s'écrit :

$$M(0) = \frac{\chi}{16\pi} [E(\omega)E^*(\omega)]$$

Dans cette formule l'aimantation à l'ordre deux est donnée en fonction de la pulsation  $\omega$ . Récemment, la validité de cette approche a été étudiée dans le cas d'impulsions optiques ultra-rapides [68].

Notre approche avec un modèle hydrogénoïde a consisté à calculer la réponse du système aux ordres un, deux et trois du champ électrique laser. Nous obtenons une aimantation à l'ordre deux en fonction du délai pompe-sonde qui est due aux populations de la matrice densité. Elles décroissent exponentiellement pendant  $T_1$  : l'aimantation dynamique que

nous avons calculée est donc non-nulle également après le passage de l'impulsion, à la différence du modèle de l'effet Faraday inverse. Sans calculer de précession, nous retrouvons le fait que l'aimantation générée à l'ordre deux dépend directement de la polarisation du laser. En fonction de la polarisation, ce ne sont pas les mêmes transitions qui sont excitées : l'efficacité de la génération de population à l'ordre deux en est affectée et donc également l'aimantation.

Au vu des débats actuels [16],[17] pour comprendre la dynamique de l'aimantation aux temps courts, notre approche consistant à calculer la fonction réponse magnéto-optique temporelle en considérant les différentes séquences d'impulsions possibles aux temps courts s'avère totalement justifiée.

## 1.8 Objectifs de la thèse

L'objectif principal de la thèse a été de modéliser le signal magnéto-optique correspondant aux termes pompe-sonde cohérents. Il s'agissait également d'évaluer la dynamique de l'aimantation associée et l'effet des termes relativistes supplémentaires issus de la transformation de Foldy-Wouthuysen.

Nous voulions également valider expérimentalement la mesure de la dynamique d'aimantation à l'aide d'une configuration à trois faisceaux. Aux temps longs nous avons mesuré la dynamique de l'aimantation de grenats ferrimagnétiques. Aux temps courts, cette configuration "en réseau transitoire" permet d'avoir accès directement à la contribution magnéto-optique cohérente ce que ne permet pas une expérience pompe-sonde. Cependant, les impulsions utilisées doivent être suffisamment courtes pour résoudre la dynamique cohérente associée à l'aimantation. De manière prévisible, les mesures expérimentales effectuées à l'aide d'impulsions de 47 fs ne permettent pas de résoudre cette dynamique : des impulsions plus courtes promettent des avancées importantes pour la compréhension des effets magnéto-optiques cohérents.

Dans le domaine du femtomagnétisme les phénomènes magnéto-optiques cohérents aux temps courts sont encore très peu étudiés. C'est un axe de recherche au croisement de l'optique ultra-rapide, de la physique des phénomènes cohérents, du magnétisme et de la magnéto-optique. Devant la complexité du sujet, notre approche avec un modèle atomique simple se justifie dans la mesure où il s'agit d'un travail qui pose les premières pierres de l'étude des effets magnéto-optiques cohérents. Ce travail ouvre des perspectives de recherche théorique pour adapter notre approche à des structures magnétiques, de recherches expérimentales pour interpréter les mesures magnéto-optiques avec des impulsions de quelques femtosecondes voire attosecondes, d'applications technologiques puisqu'il laisse envisager un contrôle cohérent de l'aimantation par des impulsions lasers à l'échelle de la femtoseconde.

# Chapitre 2

## Etude de l'Hamiltonien d'interaction relativiste dans le cas de l'atome d'Hydrogène

L'objectif de ce travail théorique est de modéliser un signal magnéto-optique ultra-rapide cohérent. Étant donnée la complexité du problème, nous nous placerons dans le cas simple de huit niveaux issus de l'atome d'Hydrogène. A la lumière de la dynamique magnéto-optique ultra-rapide obtenue nous commenterons les mesures expérimentales de signaux magnéto-optiques cohérents obtenues avec des films fins de métaux ferromagnétiques tels que le Nickel et  $CoPt_3$  [6]. Nous calculerons la réponse magnéto-optique à partir de l'Hamiltonien utilisé par H. Bennett et al. [13]. Nous nous placerons dans deux cas limites : le cas de l'interaction Zeeman faible devant le couplage spin-orbite, et le cas de l'interaction Zeeman forte devant le couplage spin-orbite. La perspective de ces deux approches est d'aborder des systèmes plus réalistes au niveau magnétique, dans lesquels apparaît une levée de dégénérescence supplémentaire due au champ moléculaire de Weiss.

Afin de tester la possibilité d'un couplage cohérent issu du développement de Foldy-Wouthuysen proposé par J.-Y. Bigot et al. [6], nous ajouterons à cet Hamiltonien "usuel" des effets magnéto-optiques le couplage spin-orbite avec le champ électrique du laser issu de l'Hamiltonien relativiste de Dirac pour un électron développé à l'ordre deux en  $\frac{1}{m}$ . Il s'agit d'un couplage entre le champ laser femtoseconde  $\mathbf{E}_L$ , le spin de l'électron  $\mathbf{S}$ , et son moment cinétique  $\mathbf{p}$  :

$$H_{spin-orbite} = \frac{q}{2m^2c^2} \mathbf{S} \cdot (\mathbf{E}_L \wedge \mathbf{p}) \quad (2.1)$$

Afin d'évaluer la possibilité d'un signal magnéto-optique ultra-rapide cohérent, nous emploierons la méthode développée par C. Brito Cruz et al. [15] : ces auteurs ont formalisé le calcul d'un signal pompe-sonde optique à partir d'un système à deux niveaux perturbé par un Hamiltonien dipolaire électrique.

Nous nous placerons dans le cas d'impulsions laser se propageant parallèlement au champ magnétique statique appliqué selon  $\mathbf{e}_z$  et polarisées dans le plan  $(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y)$  perpendiculaire. Nous calculerons la polarisation du rayonnement émis à l'ordre trois et nous en déduirons la rotation et l'ellipticité magnéto-optiques ultra-rapides. Il s'agit d'un calcul de dichroïsme circulaire pour un atome : il ne prend pas en compte de biréfringence pendant la propagation dans un film et ne modélise donc qu'une partie de la rotation Faraday.

Dans ce chapitre je présenterai d'abord la transformation de Foldy-Wouthuysen. Je décrirai le système quantique choisi et j'évaluerai les éléments de la matrice d'interaction relativiste dans deux cas : lorsque l'interaction Zeeman est faible devant l'interaction spin-orbite et lorsque c'est l'interaction Zeeman qui est prédominante.

## 2.1 Transformation de Foldy-Wouthuysen

Cette section a été rédigée avec les références bibliographiques suivantes : [69], [70], [71], [72], [73]. L'Hamiltonien de Dirac  $H$  pour un électron soumis au potentiel vecteur  $\mathbf{A}$  et au potentiel électrique  $U$  extérieurs repose sur le postulat que deux matrices de dimension 4  $\boldsymbol{\alpha}$  et  $\beta$  existent telles que :

$$H = c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) + mc^2\beta + qU \quad (2.2)$$

$\boldsymbol{\alpha}$  et  $\beta$  s'écrivent de la manière suivante en fonction des matrices de Pauli  $\boldsymbol{\sigma}$ , et de la matrice identité  $2 \times 2$  notée  $\mathbf{1}$  :

$$\boldsymbol{\alpha} = \begin{pmatrix} 0 & \boldsymbol{\sigma} \\ \boldsymbol{\sigma} & 0 \end{pmatrix} \quad \beta = \begin{pmatrix} \mathbf{1} & 0 \\ 0 & -\mathbf{1} \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

A haute énergie l'équation de Dirac possède deux solutions couplées correspondant à l'électron et au positron qui disparaît à basse énergie dans l'approximation non-relativiste. Dans ce contexte, la transformation de Foldy-Wouthuysen permet avantageusement de séparer les équations des deux particules tout en conservant le caractère relativiste de l'équation de Dirac. Par exemple, l'ordre trois en  $\frac{1}{m}$  de l'Hamiltonien de Dirac transformé de Foldy-Wouthuysen est écrit dans l'équation 2.4 [74]. Nous ne prenons pas en compte ici l'énergie du champ électromagnétique et notons  $\boldsymbol{\pi} = \mathbf{p} - q\mathbf{A}$ .

$$H = mc^2 + \frac{1}{2m}\boldsymbol{\pi}^2 - \frac{1}{8m^3c^2}\boldsymbol{\pi}^4 + qU - \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2}\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E} - \frac{q}{m}\mathbf{S} \cdot \mathbf{B} \quad (2.4)$$

$$- \frac{q}{4m^2c^2}\mathbf{S} \cdot [\mathbf{E} \wedge \boldsymbol{\pi} - \boldsymbol{\pi} \wedge \mathbf{E}] - \frac{q^2}{2m^3c^2}(\mathbf{S} \cdot \mathbf{B})^2 + \frac{q}{2m^3c^2}[\boldsymbol{\pi}^2(\mathbf{S} \cdot \mathbf{B}) + (\mathbf{S} \cdot \mathbf{B})\boldsymbol{\pi}^2] + O(m^{-4})$$

En prenant en compte la dépendance temporelle des champs extérieurs, à l'ordre trois en  $\frac{1}{m}$ , les termes suivants apparaissent dans  $H$  [71] :

$$H' = -\frac{q\hbar^2}{16m^3c^4}[\boldsymbol{\pi} \cdot \frac{\partial}{\partial t}\mathbf{E} - \frac{\partial}{\partial t}\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\pi}] - \frac{iq\hbar}{8m^3c^4}\mathbf{S} \cdot [\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{E} \wedge \boldsymbol{\pi} - \boldsymbol{\pi} \wedge \frac{\partial}{\partial t}\mathbf{E}]$$

Les ordres quatre et cinq en  $\frac{1}{m}$  ont été calculés récemment [75]. Pour la suite des calculs, nous ne considérerons que l'ordre deux en  $\frac{1}{m}$  qui correspond à l'équation de Pauli pour un électron dans un champ électromagnétique et négligerons les contributions de la dérivée temporelle de  $\mathbf{E}$ . Nous considérerons donc l'Hamiltonien suivant :

$$H = mc^2 + \frac{1}{2m}(\mathbf{p} - q\mathbf{A})^2 + qU - \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2}\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E} - \frac{q}{m}\mathbf{S} \cdot \mathbf{B} \quad (2.5)$$

$$- \frac{q}{4m^2c^2}\mathbf{S} \cdot [2\mathbf{E} \wedge \mathbf{p} + i\hbar\boldsymbol{\nabla} \wedge \mathbf{E} - 2q\mathbf{E} \wedge \mathbf{A}]$$

Dans l'équation 2.5, nous reconnaissons les termes suivants :

L'énergie de masse :	$mc^2$	(2.6)
Le terme d'énergie cinétique :	$\frac{1}{2m}(\mathbf{p} - q\mathbf{A})^2$	
L'énergie potentielle de l'électron soumis au potentiel $U$ :	$qU$	
Le terme de Darwin :	$-\frac{q\hbar^2}{8m^2c^2}\nabla \cdot \mathbf{E}$	
Le couplage Zeeman :	$-\frac{q}{m}\mathbf{S} \cdot \mathbf{B}$	
Le couplage spin-orbite avec le champ $\mathbf{E}$ :	$-\frac{q}{2m^2c^2}\mathbf{S} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p})$	
Une anisotropie induite électriquement :	$-\frac{q}{4m^2c^2}\mathbf{S} \cdot i\hbar\nabla \wedge \mathbf{E}$	
Un terme nul si $\mathbf{E}$ et $\mathbf{A}$ sont colinéaires :	$\frac{q^2}{2m^2c^2}\mathbf{S} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{A})$	

## 2.2 Ajout de termes supplémentaires à l'Hamiltonien utilisé dans la littérature pour décrire l'effet Faraday

Réécrivons l'Hamiltonien 2.5 en considérant l'ensemble des champs et potentiels électromagnétiques présents dans le système :

Champ ionique :	$\mathbf{E}_i$	(2.7)
Potentiel scalaire ionique :	$U_i$	
Champ magnétique statique appliqué :	$\mathbf{B}_M$	
Potentiel vecteur statique appliqué :	$\mathbf{A}_M$	
Champ électrique du laser :	$\mathbf{E}_L$	
Champ magnétique du laser :	$\mathbf{B}_L$	
Potentiel scalaire du laser :	$U_L$	
Potentiel vecteur du laser :	$\mathbf{A}_L$	

En jauge de Coulomb,  $\mathbf{A}_L$  est transverse et parallèle à  $\mathbf{E}_L$ , en particulier :  $U_L = 0$ . Dans la suite nous ne conservons que les termes d'ordre un en  $A_L$ . En considérant tous les champs électromagnétiques énumérés ci-dessus, l'Hamiltonien 2.5 se divise en deux contributions : d'une part l'Hamiltonien non perturbé par l'interaction avec le laser  $H_0$ , d'autre part l'Hamiltonien d'interaction avec le laser  $H_{int}$ .

$$\begin{aligned}
H_0 = & mc^2 + \frac{1}{2m}(\mathbf{p} - q\mathbf{A}_M)^2 + qU_i(\mathbf{r}) \\
& - \frac{q}{m}\mathbf{S} \cdot \mathbf{B}_M - \frac{q}{2m^2c^2}\mathbf{S} \cdot [\mathbf{E}_i \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_M)] \\
& - \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2}\nabla \cdot \mathbf{E}_i
\end{aligned} \tag{2.8}$$



$$\begin{aligned}
H_{int} = & -\frac{q}{m}\boldsymbol{\Pi} \cdot \mathbf{A}_L - \frac{q}{2m^2c^2}[(\mathbf{p} - q\mathbf{A}_M) \wedge \mathbf{S}] \cdot \mathbf{E}_L \\
& - \frac{q}{m}\mathbf{S} \cdot \mathbf{B}_L - \frac{iq\hbar}{4m^2c^2}\mathbf{S} \cdot (\boldsymbol{\nabla} \wedge \mathbf{E}_L)
\end{aligned} \tag{2.9}$$

Nous avons défini ici le moment cinétique généralisé :  $\boldsymbol{\Pi} = \mathbf{p} - q\mathbf{A}_M + \frac{q}{2mc^2}\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i$

## 2.3 Types d'interactions contenues dans l'Hamiltonien relativiste

Considérons que le potentiel vecteur du laser  $\mathbf{A}_L$  a la forme suivante :

$$\mathbf{A}_L(t, z) = \frac{1}{2}[\Lambda(t, z)e^{ikz}e^{-i\omega_L t} + \Lambda^*(t, z)e^{-ikz}e^{i\omega_L t}]\mathbf{e}_x$$

Alors les champs magnétiques et électriques associés à l'impulsions laser sont :

$$\begin{aligned}
\mathbf{B}_L(t, z) = & \boldsymbol{\nabla} \wedge \mathbf{A}_L \\
= & \frac{ik}{2}[\Lambda(t, z)e^{ikz}e^{-i\omega_L t} - \Lambda^*(t, z)e^{-ikz}e^{i\omega_L t}]\mathbf{e}_y \\
& + \left[\frac{\partial}{\partial z}\Lambda(t, z)e^{ikz}e^{-i\omega_L t} - \frac{\partial}{\partial z}\Lambda^*(t, z)e^{-ikz}e^{i\omega_L t}\right]\mathbf{e}_y \\
\approx & \frac{ik}{2}[\Lambda(t, z)e^{ikz}e^{-i\omega_L t} - \Lambda^*(t, z)e^{-ikz}e^{i\omega_L t}]\mathbf{e}_y \\
\mathbf{E}_L(t, z) = & -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}_L \\
= & \frac{1}{2}\left[\frac{\partial}{\partial t}\Lambda(t, z)e^{ikz}e^{-i\omega_L t} + \frac{\partial}{\partial t}\Lambda^*(t, z)e^{-ikz}e^{i\omega_L t}\right]\mathbf{e}_x \\
& - \frac{1}{2}\left[i\omega_L\Lambda(t, z)e^{ikz}e^{-i\omega_L t} + \Lambda^*(t, z)i\omega_L e^{-ikz}e^{i\omega_L t}\right]\mathbf{e}_x \\
\approx & -\frac{1}{2}\left[i\omega_L\Lambda(t, z)e^{ikz}e^{-i\omega_L t} - \Lambda^*(t, z)i\omega_L e^{-ikz}e^{i\omega_L t}\right]\mathbf{e}_x
\end{aligned} \tag{2.10}$$

La dépendance de  $\mathbf{E}_L$  et  $\mathbf{B}_L$  par rapport aux dérivées de l'enveloppe  $\frac{\partial}{\partial t}\Lambda(t, z)$  et  $\frac{\partial}{\partial z}\Lambda(t, z)$  n'est négligeable que si :

$$\left|\frac{\partial}{\partial t}\Lambda(t, z)\right| \ll |\omega_L\Lambda(t, z)| \tag{2.11}$$

$$\left|\frac{\partial}{\partial z}\Lambda(t, z)\right| \ll |k\Lambda(t, z)| \tag{2.12}$$

L'équation 2.11 est vérifiée car pour une impulsion gaussienne de durée  $T=40$  fs à  $\lambda=800$  nm évoluant durant un temps  $t \leq T$ , la dérivée temporelle de l'enveloppe vaut :

$$\begin{aligned}
\left|\frac{\partial}{\partial t}\Lambda(t, z)\right| &= \frac{2 * t}{T^2}|\Lambda(t, z)| \leq 5 * 10^{13}|\Lambda(t, z)| \\
\omega_L|\Lambda(t, z)| &= \frac{2\pi c}{\lambda} = 2 * 10^{15}|\Lambda(t, z)|
\end{aligned} \tag{2.13}$$

L'équation 2.12 est-elle vérifiée dans nos configurations expérimentales ? Pour la propagation le long de l'axe optique d'un faisceau gaussien focalisé dont le waist évolue selon

$w(z) = w_0 \sqrt{1 + (\frac{2z}{kw_0^2})^2}$ , le champ électrique évolue en  $\frac{1}{w(z)}$ . Supposons que  $w_0$ , le waist minimal lorsque le faisceau est focalisé, vaille  $70 \mu m$ .

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} = 2 * 10^{15} m^{-1} \quad (2.14)$$

$$|\frac{\partial}{\partial z} \frac{1}{w(z)}| \leq |\frac{4z}{k^2 w_0^5}| = z 1.2 * 10^6 m^{-1}$$

L'hypothèse du waist lentement variable est bien justifiée pour l'atome d'hydrogène, où  $z$  est de l'ordre du rayon de Bohr  $a_0=0.5$  nm, et plus généralement pour des échantillons que nous étudions ayant des épaisseurs d'une dizaine de nanomètres. Dans ces échantillons métalliques apparaît en plus l'effet de peau qui correspond à la décroissance exponentielle du champ électromagnétique au delà de la surface de l'échantillon. La longueur caractéristique de cette décroissance  $\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu_0 \omega \sigma}}$  dépend de la conductivité du métal  $\sigma$ . Pour un échantillon de Nickel, de conductivité  $14,3 \times 10^6 S.m^{-1}$ , l'épaisseur de peau vaut  $4.7$  nm pour un rayonnement de longueur d'onde  $\lambda = 800$  nm. Il faut alors prendre en compte la non-homogénéité du champ électrique ce qui fait apparaître d'autres phénomènes physiques.

Afin de déterminer le type d'interactions à prendre en compte, nous souhaitons effectuer un développement limité de l'exponentielle  $e^{\pm ikz}$  dans l'équation 2.10. En effet, dans l'atome d'Hydrogène, le terme  $kz$  a pour ordre de grandeur :

$$kz = \frac{2\pi z}{\lambda} \simeq \frac{2\pi a_0}{\lambda} \ll 1 \quad (2.15)$$

En effectuant un développement de l'exponentielle  $e^{\pm ikz}$ , nous obtenons donc :

$$\begin{aligned} \mathbf{A}_L(t, z) &= \frac{1}{2} [\Lambda(t, z) e^{-i\omega_L t} + \Lambda^*(t, z) e^{i\omega_L t} + \Lambda(t, z) ikz e^{-i\omega_L t} - ikz \Lambda^*(t, z) e^{i\omega_L t} + o(kz)] \mathbf{e}_x \\ &= \mathbf{A}_L(t, 0) + \frac{1}{2} [\Lambda(t, z) ikz e^{-i\omega_L t} - ikz \Lambda^*(t, z) e^{i\omega_L t} + o(kz)] \mathbf{e}_x \end{aligned} \quad (2.16)$$

Par ailleurs, le moment cinétique généralisé  $\Pi$  se réécrit :

$$\Pi_x z = \frac{1}{2} [\Pi_x z - x \Pi_z] + \frac{1}{2} [\Pi_x z + x \Pi_z] = \frac{1}{2} L'_y + \frac{1}{2} [\Pi_x z + x \Pi_z] \quad (2.17)$$

En limitant le développement de  $\mathbf{A}_L(t, z)$  à l'ordre un en  $kz$ , nous reconnaissons trois termes dans  $\Pi \cdot \mathbf{A}_L$  :

$$\Pi \cdot \mathbf{A}_L(t, z) = \Pi \cdot \mathbf{A}_L(t, 0) + \frac{1}{2} \mathbf{L} \cdot \mathbf{B}_L(t, 0) + \frac{1}{2} [p_x z + x p_z] A_L(t, 0) + o(kz) \quad (2.18)$$

### Interaction dipolaire électrique

Le terme  $\Pi \cdot \mathbf{A}_L(t, 0)$  correspond à l'interaction dipolaire électrique. Cette écriture est plus explicite dans la jauge de Göppert-Mayer. Néanmoins par la définition de  $\Pi$ , nous

obtenons les règles de sélection dipolaires électriques pour ce terme :

$$\begin{aligned}
\langle \Psi_f | -\frac{q}{m} \Pi_z A_L(t, 0) | \Psi_i \rangle &= -\frac{q}{m} A_L(t, 0) \langle \Psi_f | [z, H_0] | \Psi_i \rangle & (2.19) \\
&= -q \frac{E_f - E_i}{m} A_L(t, 0) \langle \Psi_f | z | \Psi_i \rangle \\
\langle \Psi_f | -\frac{q}{m} (\Pi_x \pm i\Pi_y) A_L(t, 0) | \Psi_i \rangle &= -\frac{q}{m} A_L(t, 0) \langle \Psi_f | [x \pm iy, H_0] | \Psi_i \rangle \\
&= -q \frac{E_f - E_i}{m} A_L(t, 0) \langle \Psi_f | x \pm iy | \Psi_i \rangle
\end{aligned}$$

### Interaction dipolaire magnétique

Le terme  $\mathbf{L} \cdot \mathbf{B}_L(t, 0)$  correspond à l'interaction dipolaire magnétique qui s'écrit de manière complète :

$$-\frac{q}{2m} [\mathbf{L} + 2\mathbf{S}] \cdot \mathbf{B}_L(t, 0) \quad (2.20)$$

### Interaction quadrupolaire électrique

Le dernier terme de l'équation (2.18) correspond à l'interaction quadrupolaire électrique. L'interaction s'écrit en fonction de l'élément de matrice quadrupolaire électrique :

$$\begin{aligned}
H_{quadr} &= \sum_{ij} q_{ij} \frac{\partial}{\partial x_i} E_j & (2.21) \\
q_{ij} &= \frac{1}{2} [r_i r_j - \frac{1}{3} \delta_{ij} r^2]
\end{aligned}$$

Nous pouvons également développer le terme  $[\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \mathbf{E}_L$  de l'Hamiltonien d'interaction 2.9 en fonction des types d'interactions :

$$-\frac{q}{2m^2 c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \mathbf{E}_L = \frac{-iq\hbar}{2m^2 c^2} E_L(t, 0) [p_z S_y - S_z p_y] - \frac{iq\hbar\omega_L}{2m^2 c^2} \mathbf{B}_L(t, 0) \cdot \mathbf{S} \quad (2.22)$$

Les contributions du premier terme dépendent de l'effet de  $p_z S_y - S_z p_y$  sur les orbitales choisies. En fait les opérateurs  $\mathbf{p}$  et  $\mathbf{S}$  étant vectoriels, nous savons par le théorème de Wigner-Eckhart que leur produit vectoriel génère une interaction de type vectoriel également. D'après l'annexe A.8, l'interaction  $p_z S_y - S_z p_y$  sera alors du type dipolaire électrique. Le deuxième terme, si nous considérons les variations du champ laser à l'échelle de la longueur d'onde, contribuerait à l'interaction dipolaire magnétique.

En conclusion, dans les interactions  $\mathbf{\Pi} \cdot \mathbf{A}_L - \frac{q}{2m^2 c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \mathbf{E}_L$  le fait de ne garder que l'ordre zéro dans le développement en  $kz$  correspond à l'approximation dipolaire électrique. Cette approximation se justifie si le déplacement des électrons est très inférieur à la longueur d'onde. Prendre en compte la dépendance du champ électrique avec  $kz$  consiste à considérer que la réponse du système est non-locale, ce qui permet notamment de modéliser des phénomènes physiques tels que l'activité optique [41].

## 2.4 Modèle à huit niveaux en champ magnétique faible

La base utilisée pour calculer les termes  $\langle \Psi_f | H_{int} | \Psi_i \rangle$  est celle des orbitales de l'atome d'Hydrogène en présence de couplage spin-orbite.  $\mathbf{L}$ ,  $\mathbf{J}$  et  $\mathbf{S}$  désignent le moment orbital, le moment angulaire total et le moment de spin.  $s$  désigne le nombre quantique associé à la valeur propre de  $\mathbf{S}^2$ .  $j$  désigne le nombre quantique associé à la valeur propre de  $\mathbf{J}^2$  où  $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ .  $l_z, j_z$  et  $s_z$  sont les nombres quantiques associés aux valeurs propres des projections de  $\mathbf{L}$ ,  $\mathbf{J}$  et  $\mathbf{S}$  sur l'axe de quantification  $\mathbf{e}_z$  fixé par le champ magnétique. Les huit niveaux considérés sont les suivants :

$$\begin{pmatrix} 1 \\ 2 \\ 3 \\ 4 \\ 5 \\ 6 \\ 7 \\ 8 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} |n=2, j=\frac{1}{2}, j_z=-\frac{1}{2}\rangle \\ |n=2, j=\frac{1}{2}, j_z=+\frac{1}{2}\rangle \\ |n=3, j=\frac{1}{2}, j_z=-\frac{1}{2}\rangle \\ |n=3, j=\frac{1}{2}, j_z=+\frac{1}{2}\rangle \\ |n=3, j=\frac{3}{2}, j_z=-\frac{3}{2}\rangle \\ |n=3, j=\frac{3}{2}, j_z=-\frac{1}{2}\rangle \\ |n=3, j=\frac{3}{2}, j_z=+\frac{1}{2}\rangle \\ |n=3, j=\frac{3}{2}, j_z=+\frac{3}{2}\rangle \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

Ces niveaux énergétiques sont illustrés dans la figure 2.1.

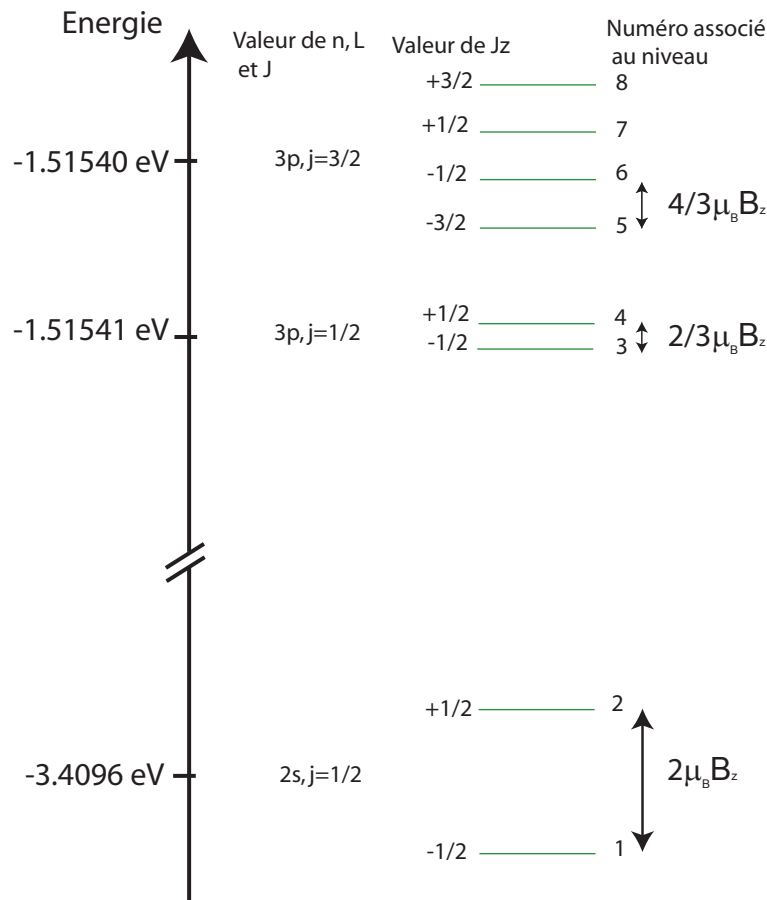


FIG. 2.1 – Niveaux de structure fine de l'atome d'hydrogène considérés et levée de dégénérescence Zeeman due au champ magnétique.

La différence d'énergie entre les niveaux  $2s_{1/2}$  et  $3p_{1/2}$  vaut 1.89 eV. Pour un champ magnétique de 0.05 Teslas, la différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman est de :

$$\begin{aligned} \left| \frac{4}{3} \mu_B B_z \right| &= 3.8642 * 10^{-6} eV \\ \left| \frac{2}{3} \mu_B B_z \right| &= 1.9321 * 10^{-6} eV \\ |2 \mu_B B_z| &= 5.7963 * 10^{-6} eV \end{aligned} \quad (2.24)$$

Au vu des ordres de grandeur donnés en annexe A.6, nous ne considérerons pas tous les termes de l'Hamiltonien 2.9. Nous prendrons seulement en compte les termes d'interaction suivants :

$$\begin{aligned} H_{int} &= - \frac{q}{m} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_L \\ &+ \frac{q^2}{m} \mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A}_L \\ &- \frac{q^2}{2m^2 c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A}_L \\ &- \frac{q}{2m^2 c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \mathbf{E}_L \end{aligned} \quad (2.25)$$

Pour calculer l'effet des opérateurs  $\mathbf{P}$ ,  $\mathbf{R}$  et  $\mathbf{S}$  nous utiliserons la décomposition de la base 2.23 sur la base des harmoniques sphérique Y, des fonctions radiale R et des fonctions de spin  $\chi$  [76] :

$$\begin{pmatrix} 1 \\ 2 \\ 3 \\ 4 \\ 5 \\ 6 \\ 7 \\ 8 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R_{2,0} Y_0^0 \chi_- \\ R_{2,0} Y_0^0 \chi_+ \\ \sqrt{\frac{1}{3}} R_{3,0} Y_1^0 \chi_- - \sqrt{\frac{2}{3}} R_{3,0} Y_1^{-1} \chi_+ \\ \sqrt{\frac{1}{3}} R_{3,0} Y_1^0 \chi_+ - \sqrt{\frac{2}{3}} R_{3,0} Y_1^1 \chi_- \\ R_{3,0} Y_1^{-1} \chi_- \\ \sqrt{\frac{2}{3}} R_{3,0} Y_1^0 \chi_- + \sqrt{\frac{1}{3}} R_{3,0} Y_1^{-1} \chi_+ \\ \sqrt{\frac{2}{3}} R_{3,0} Y_1^0 \chi_+ + \sqrt{\frac{1}{3}} R_{3,0} Y_1^1 \chi_- \\ R_{3,0} Y_1^1 \chi_+ \end{pmatrix} \quad (2.26)$$

Pour un laser polarisé circulairement dans le plan perpendiculaire au champ magnétique statique B selon  $e_x + ie_y$  (noté  $\sigma+$ ), détaillons la contribution du champ  $e e^{-i\omega_L t}$  écrite dans la base 2.23. Les éléments de matrice non-nuls sont divisés en quatre lignes correspondant aux quatre termes d'interaction de l'équation A.18 du 1<sup>er</sup> au 4<sup>e</sup> dans le même ordre.

$$H_{\sigma_+} = \left( \begin{array}{c|cccc|cccc} 0 & 0 & 0 & 0 & id. & 0 & id. & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & id. \\ \hline 0 & & & & & & & \\ \hline -1.05 * 10^{-13} \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +3.23 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ +0 & & & & & & & \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline -7.43 * 10^{-14} \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +2.28 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +5.89 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ +6.73 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & & \\ \hline & -1.29 * 10^{-13} \epsilon / \omega_L & & & & & & \\ & +3.95 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & & & & & & \\ 0 & -4.74 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ & +4.12 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & \end{array} \right) \quad (2.27)$$

Pour un laser polarisé  $\sigma-$  dans le plan perpendiculaire au champ magnétique statique B selon  $e_x - ie_y$ , la contribution  $\epsilon e^{-i\omega_L t}$  correspond, avec le même ordre d'écriture que précédemment, à :

$$H_{\sigma_-} = \left( \begin{array}{c|cccc|cccc} 0 & 0 & 0 & 0 & id. & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & id. & 0 & 0 & id. & 0 & 0 \\ \hline 0 & -1.05 * 10^{-13} \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -3.23 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +1.37 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +6.73 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & & \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline -1.29 * 10^{-13} \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ +3.95 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ -4.74 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +4.12 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & & \\ \hline 0 & -7.43 * 10^{-14} \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ +2.28 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +1.94 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +0 & & & & & & & \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{array} \right) \quad (2.28)$$

Les transitions autorisées pour un laser polarisé circulairement  $\sigma_+$  correspondent à une transition où  $j_z$  augmente d'une unité : 1-4, 1-7 et 2-8. Les transitions autorisées pour un laser polarisé circulairement  $\sigma_-$  relient les niveaux tels que  $j_z$  diminue d'une unité : 1-5, 2-3 et 2-6. Elles sont schématisées dans la figure 2.2. Nous constatons que chaque transition correspond simultanément à une variation de  $l_z$  et de  $s_z$ . Dans le système en champ fort, au contraire, la transition issue de  $\mathbf{\Pi} \cdot \mathbf{A}_L$  fera varier soit  $l_z$  soit  $s_z$  mais pas les deux nombre quantiques simultanément.

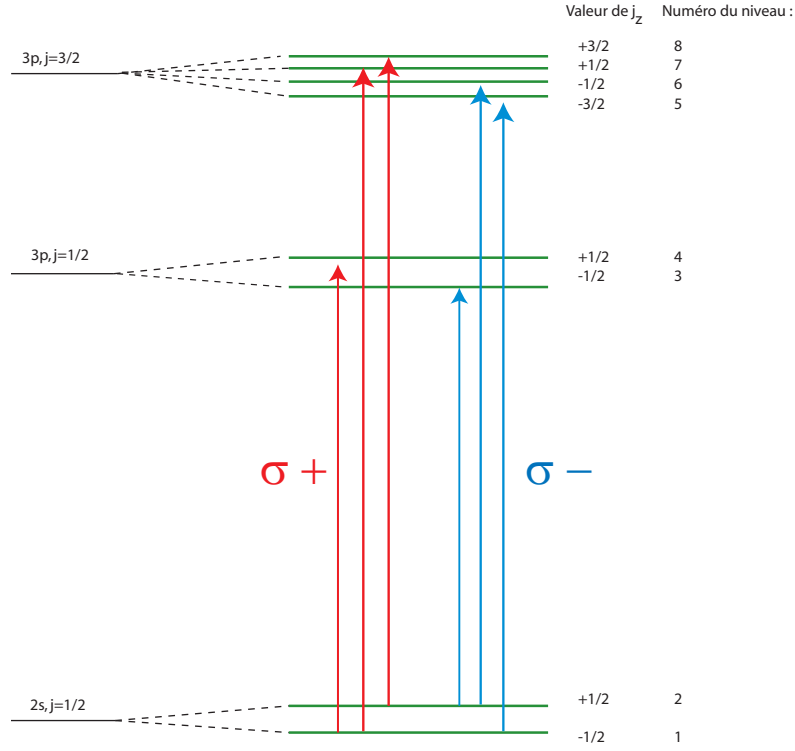


FIG. 2.2 – Transitions pour un laser polarisé circulairement. En rouge, les transitions  $\sigma+$ , en bleu, les transitions  $\sigma-$  et en vert les huit niveaux considérés pour notre modèle. L'échelle des énergies n'est pas respectée pour une meilleure lisibilité.

L'effet magnéto-optique sera dû à la différence d'absorption entre les polarisations circulaires  $\sigma_+$  et  $\sigma_-$ . Cette grandeur dépendra des populations initiales des niveaux, du désaccord du laser par rapport aux transitions et des éléments de la matrice d'interaction.

## 2.5 Modèle à huit niveaux en champ magnétique fort

La base utilisée pour calculer les termes  $\langle \Psi_f | H_{int} | \Psi_i \rangle$  est celle des orbitales de l'atome d'Hydrogène en présence d'un champ magnétique statique fort ce qui signifie que l'interaction Zeeman est importante devant le couplage spin-orbite. Les niveaux énergétiques considérés sont les suivants :

$$\begin{pmatrix} I \\ II \\ III \\ IV \\ V \\ VI \\ VII \\ VIII \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R_{2,0} Y_0^0 \chi_- \\ R_{2,0} Y_0^0 \chi_+ \\ R_{3,0} Y_1^{-1} \chi_- \\ R_{3,0} Y_1^0 \chi_- \\ R_{3,0} Y_1^1 \chi_- \\ R_{3,0} Y_1^{-1} \chi_+ \\ R_{3,0} Y_1^0 \chi_+ \\ R_{3,0} Y_1^1 \chi_+ \end{pmatrix} \quad (2.29)$$

Ces niveaux énergétiques sont schématisés dans la figure 2.3.

La différence d'énergie entre les niveaux  $2s$  et  $3p$  vaut 1.8897 eV. Pour un champ magnétique de 1 Tesla, la différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman est de :

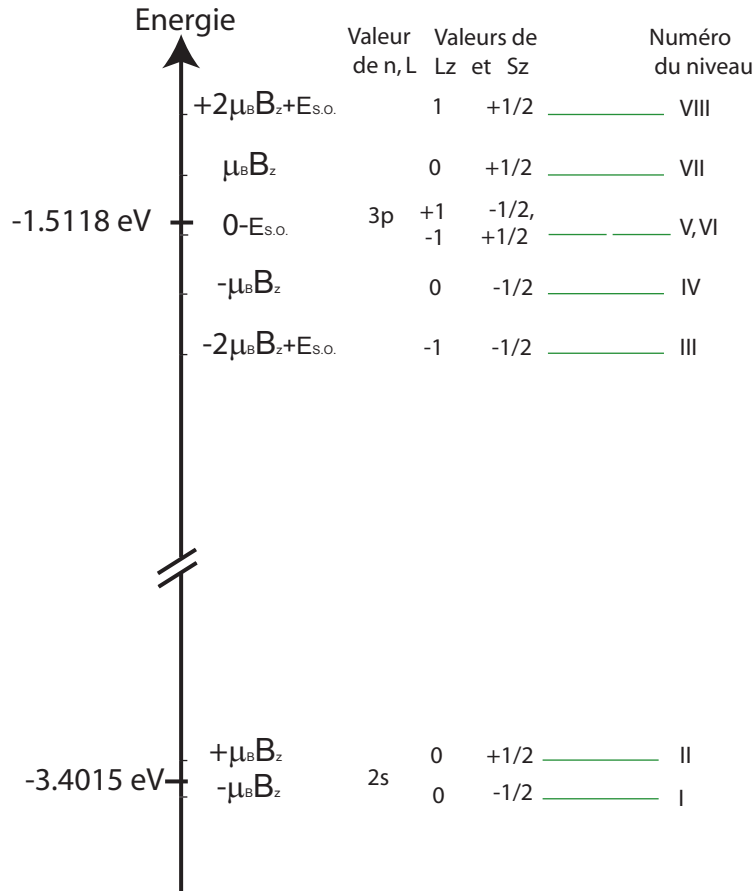


FIG. 2.3 – Niveaux Zeeman de l'atome d'hydrogène considérés avec leur déplacement dû au couplage spin-orbite.

$$\begin{aligned}
 2|\mu_B B_z| + E_{s.o.} &= 1.20 * 10^{-4} eV & (2.30) \\
 |\mu_B B_z| &= 5.79 * 10^{-5} eV \\
 -2|\mu_B B_z| + E_{s.o.} &= -1.11 * 10^{-4} eV \\
 E_{s.o.} &= 4.44 * 10^{-6} eV
 \end{aligned}$$

Nous écrivons l'Hamiltonien d'interaction comme à la section précédente A.18. Dans la jauge de Coulomb, pour un laser polarisé  $\sigma+$  dans le plan perpendiculaire au champ magnétique statique  $B_M$ , la contribution de l'amplitude  $\epsilon$  du champ électrique oscillant à  $e^{-i\omega_L t}$  correspond à :



$$H_{\sigma+} = \left( \begin{array}{c|c|c|c|c|c|c|c|c} 0 & 0 & 0 & 0 & id. & 0 & id. & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & id. \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline -1.29 * 10^{-13} \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +3.95 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ -1.67 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ +4.1 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & & \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & & & & & & & \\ +0 & & & & & & & \\ 2.37 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ +5.83 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & & \\ \hline & -1.29 * 10^{-13} \epsilon / \omega_L & & & & & & \\ & +3.95 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & & & & & & \\ 0 & +1.67 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ & -4.1 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & \end{array} \right) \quad (2.31)$$

Pour un laser polarisé  $\sigma-$  dans le plan perpendiculaire au champ magnétique statique  $B_M$ , la contribution  $\epsilon e^{-\omega_L t}$  correspond à :

$$H_{\sigma-} = \left( \begin{array}{c|c|c|c|c|c|c|c|c} 0 & 0 & id. & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & id. & 0 & id. & 0 & 0 \\ \hline 1.29 * 10^{-13} \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ -3.95 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1.67 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ +4.1 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & & \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ & +0 & & & & & & \\ -2.37 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & & & & & & & \\ -5.83 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & & \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 1.29 * 10^{-13} \epsilon / \omega_L & & & & & & \\ & -3.95 * 10^{-18} B \epsilon / \omega_L & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ & +1.67 * 10^{-19} \epsilon / \omega_L & & & & & & \\ & -4.1 * 10^{-35} \epsilon & & & & & & \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{array} \right) \quad (2.32)$$

Les transitions autorisées pour un laser polarisé circulaire + relient les niveaux I-VI, I-VII et II-VIII. les transitions autorisées pour un laser polarisé circulaire - relient les niveaux I-III, II-IV et II-VI. Elles sont schématisées à la figure A.7.

Nous avons choisi un système de huit niveaux discrets dans lequel un champ magnétique statique et le couplage spin-orbite interviennent. Une perspective de cette approche est de modéliser simplement l'effet du champ d'échange dans un matériaux ferromagnétique. Dans les matériaux ferromagnétiques les champs de Weiss sont de l'ordre de  $10^6$  à  $10^7$  Oers-  
teds [12]. Ils sont dus à l'interactions d'échange entre électrons qui a été formalisée pour la

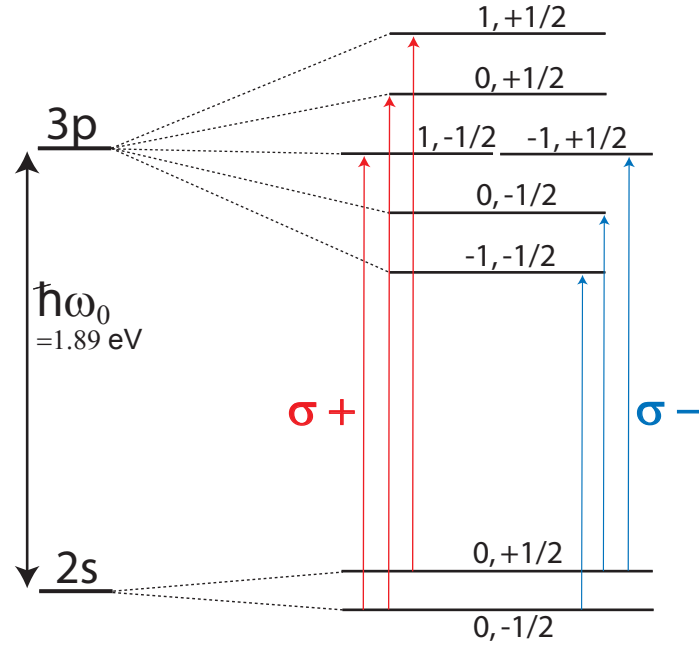


FIG. 2.4 – Transitions pour un laser polarisé circulairement. En rouge, les transitions  $\sigma+$ , en bleu, les transitions  $\sigma-$ .

première fois par Heisenberg. Notre modèle très simple à un électron ne pourra donc que difficilement nous renseigner sur la réponse magnétique d'un système ferromagnétique. Il nous permettra en revanche de modéliser simplement la réponse magnéto-optique non-linéaire.

Dans ce système, seules les transitions I-VII et II-IV génèrent un retournement des spins. Ce système permet en particulier d'étudier l'effet sur la dynamique de spin des termes relativistes issus du couplage spin-orbite. Dans ce système au second ordre de perturbation, des populations et des cohérences seront créées pour la matrice densité qui généreront au troisième ordre de perturbation des cohérences. Nous n'avons pas considéré jusqu'à présent les transitions dipolaires électriques de type  $\pi$  qui interviennent si pompe ou sonde possèdent une composante de polarisation parallèle à l'aimantation.

## 2.6 Effet magnétique

La procédure expérimentale permettant de mesurer la contribution des spins à l'aimantation en éliminant la contribution du moment orbital, consiste à soustraire le signal magnéto-optique obtenu pour deux champs magnétiques de signe opposés :

$$S_{MO} = S_{+B} - S_{-B} \quad (2.33)$$

Cette approche est valable lorsque le signal peut être développé au premier ordre en B, c'est à dire que le champ magnétique est faible. Nous avons différencié le signal magnéto-optique par rapport à B dans les deux cas présentés précédemment. Dans la mesure où nous considérons que la dégénérescence des niveaux est levée par l'effet Zeeman, l'effet du champ magnétique sera de changer l'énergie des différents niveaux comme indiqué sur les schémas ci-dessous. Par ailleurs, l'interaction entre le laser et le potentiel vecteur du champ magnétique statique appliqué change également de signe avec B.

Valeur de n, L et J	Valeur de Jz	Numéro associé au niveau	Numéro associé au niveau	Valeur de Jz
3p, j=3/2	+3/2	8	5	-3/2
	+1/2	7	6	-1/2
	-1/2	6	7	+1/2
	-3/2	5	8	+3/2
3p, j=1/2	+1/2	4	3	-1/2
	-1/2	3	4	+1/2
2s, j=1/2	+1/2	2	1	-1/2
	-1/2	1	2	+1/2

FIG. 2.5 – Niveaux de l'atome d'hydrogène en champ magnétique faible. Sur la figure de gauche :  $B > 0$ , sur la figure de droite :  $B < 0$ .

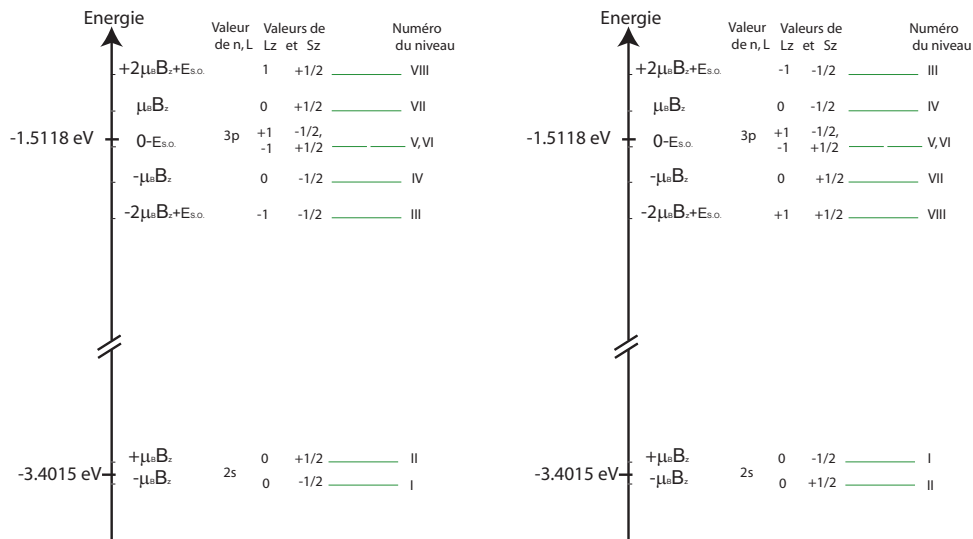


FIG. 2.6 – Niveaux de l'atome d'hydrogène en champ magnétique fort. Sur la figure de gauche :  $B > 0$ , sur la figure de droite :  $B < 0$ .

## 2.7 Dynamique de $\mathbf{J}$ , $\mathbf{L}$ et $\mathbf{S}$

Le but de ce travail est également de comparer le signal magnéto-optique calculé à la dynamique de l'aimantation. Dans le cas de notre modèle en champ faible, nous nous intéresserons à la dynamique de  $\mathbf{J}$ ,  $\mathbf{L}$  et  $\mathbf{S}$ . La dynamique de la valeur moyenne de  $\mathbf{J}$  à l'ordre (i) sera calculée par l'expression :

$$\langle \mathbf{J}^{(i)} \rangle (t, \tau) = Tr[\rho^{(i)}(t, \tau)\mathbf{J}] \quad (2.34)$$

Les dynamiques des valeurs moyennes de  $\mathbf{L}$  et  $\mathbf{S}$  seront calculées par les expressions dépendant de la matrice de passage  $U$  entre la base où  $\mathbf{L}$  et  $\mathbf{S}$  sont couplés et la base où  $\mathbf{L}$  et  $\mathbf{S}$  sont découplés :

$$\begin{aligned}
\langle \mathbf{L}^{(i)} \rangle (t, \tau) &= Tr[U^{-1}\rho^{(i)}(t, \tau)U\mathbf{L}] \\
\langle \mathbf{L}^{2(i)} \rangle (t, \tau) &= Tr[U^{-1}\rho^{(i)}(t, \tau)U\mathbf{L}^2] \\
\langle \mathbf{S}^{(i)} \rangle (t, \tau) &= Tr[U^{-1}\rho^{(i)}(t, \tau)U\mathbf{S}] \\
\langle \mathbf{S}^{2(i)} \rangle (t, \tau) &= Tr[U^{-1}\rho^{(i)}(t, \tau)U\mathbf{S}^2]
\end{aligned} \tag{2.35}$$

Dans le cas du modèle en champ fort, nous calculerons la dynamique de  $\mathbf{L}$  et  $\mathbf{S}$  sans avoir recours à la matrice de passage :

$$\begin{aligned}
\langle \mathbf{L}^{(i)} \rangle (t, \tau) &= Tr[\rho^{(i)}(t, \tau)\mathbf{L}] \\
\langle \mathbf{S}^{(i)} \rangle (t, \tau) &= Tr[\rho^{(i)}(t, \tau)\mathbf{S}]
\end{aligned} \tag{2.36}$$

Nous avons ainsi accès à la dynamique du moment orbital, du spin et du moment total aux ordres un, deux et trois en perturbation.

# Chapitre 3

## Modélisation des signaux magnéto-optiques cohérents dans deux configurations de mélange à quatre ondes

Dans ce chapitre je présenterai le formalisme de Liouville pour calculer la réponse de la matrice densité à l'ordre trois en perturbation. J'appliquerai cette approche à deux configurations expérimentales : la technique pompe-sonde et la configuration en réseau transitoire à trois impulsions. Enfin, je détaillerai le calcul de la rotation et de l'ellipticité mesurées expérimentalement.

### 3.1 Equations d'évolution de la matrice densité

Cette section a été rédigée avec les références bibliographiques [77], [78] et [79].

#### 3.1.1 Méthode

Nous étudierons l'évolution temporelle de la matrice densité d'un système dont l'Hamiltonien non perturbé s'écrit  $H_0$  et l'interaction avec un champ électrique laser  $-\mathbf{V} \cdot \mathbf{E}_{laser}$ . Cette évolution obéit à l'équation de Liouville quantique aussi appelée equation de Liouville-Von Neumann :

$$i\partial_t\rho = \frac{1}{\hbar}[H_0 - \mathbf{V} \cdot \mathbf{E}_{laser}, \rho] \quad (3.1)$$

Nous supposerons dans la suite que seul le système à huit niveaux est couplé au rayonnement et que l'effet du bain thermique sera d'introduire des mécanismes de relaxation des populations et des cohérences. L'équation d'évolution pour la matrice densité est alors la suivante :

$$i\partial_t\rho = \frac{1}{\hbar}[H_0 - \mathbf{V} \cdot \mathbf{E}_{laser}, \rho] + i\partial_t\rho|_{relaxation} \quad (3.2)$$

Le terme de relaxation du système par interaction avec le bain environnant sera modélisé par :

$$i\partial_t \rho_{nm} \Big|_{relaxation} = \begin{cases} -\frac{\imath}{T_{nm}}(\rho_{nm} - \rho_{nm}^{(0)}) & \text{si } n \neq m \\ -\frac{\imath}{T_1}(\rho_{nm} - \rho_{nm}^{(0)}) & \text{si } n = m \end{cases} \quad (3.3)$$

Ici  $\rho_{nm}^{(0)}$  représente l'élément de matrice densité à l'équilibre. D'après l'appendice B, cette approche qui consiste à choisir le même taux de relaxation longitudinal pour toutes les transitions, correspond au cas le plus simple : l'approche "uni-niveau". L'équation d'évolution de la matrice densité se réécrit en définissant  $\omega_{nm} = \frac{E_n - E_m}{\hbar}$  et  $v^i$  la projection de  $\mathbf{V}$  selon le vecteur unitaire  $\mathbf{e}_i$  :

$$(i\partial_t - \omega_{nm} + \frac{\imath}{T_{nm}})(\rho_{nm}(t) - \rho_{nm}^{(0)}) = -\frac{E_i(t)}{\hbar} \sum_l [v_{nl}^i \rho_{lm} - \rho_{nl} v_{lm}^i] \quad (3.4)$$

Calculons l'évolution de la matrice densité par la méthode des perturbations. Pour cela développons  $\rho$  en puissances de la perturbation  $\mathbf{V} \cdot \mathbf{E}_{laser}$  :

$$\rho = \rho^{(0)} + \rho^{(1)} + \rho^{(2)} + \rho^{(3)} + \dots \quad (3.5)$$

$\rho^{(N)}$  contient la perturbation  $\mathbf{V} \cdot \mathbf{E}_{laser}$  à l'ordre N : égalisons dans l'équation d'évolution les termes de même ordre :

$$(i\partial_t - \omega_{nm} + \frac{\imath}{T_{nm}})\rho_{nm}^{(N>0)}(t) = -\frac{E_i(t)}{\hbar} \sum_l [v_{nl}^i \rho_{lm}^{(N-1)} - \rho_{nl}^{(N-1)} v_{lm}^i] \quad (3.6)$$

Rappelons quelques propriétés des transformées de Fourier où  $\Theta(t)$  désigne la fonction de Heaviside :

$$\begin{aligned} TF[\rho(t)] &= \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(t) e^{-i\omega t} dt = \rho(\omega) \\ IF[\rho(\omega)] &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(\omega) e^{i\omega t} d\omega = \rho(t) \\ TF[i\frac{\partial}{\partial t}\rho(t)] &= \int_{-\infty}^{+\infty} i\frac{\partial}{\partial t}\rho(t) e^{-i\omega t} dt = -\omega\rho(\omega) \\ IF[\frac{-1/\hbar}{-\omega + \xi + \frac{\imath}{T_2}}] &= \frac{\imath}{\hbar} e^{i\xi t - \frac{t}{T_2}} \Theta(t) = F_2^{\xi, ij}(t) \end{aligned} \quad (3.7)$$

Nous obtenons alors l'expression de la matrice densité dans l'espace des fréquences :

$$\rho_{nm}^{(N>0)}(\omega) = \frac{-1/\hbar}{-\omega - \omega_{nm} + \frac{\imath}{T_{nm}}} TF(E_i(t) \sum_l [v_{nl}^i \rho_{lm}^{(N-1)} - \rho_{nl}^{(N-1)} v_{lm}^i]) \quad (3.8)$$

Par transformée de Fourier inverse nous en déduisons l'évolution temporelle de la matrice densité :

$$\rho_{nm}^{(N>0)}(t) = \frac{\imath}{\hbar} e^{(-i\omega_{nm}t - \frac{t}{T_{nm}})} \Theta(t) \otimes \left( E_i(t) \sum_l [v_{nl}^i \rho_{lm}^{(N-1)} - \rho_{nl}^{(N-1)} v_{lm}^i] \right) \quad (3.9)$$

De manière itérative, nous pouvons finalement remonter à l'évolution de la matrice densité à tout ordre en partant de l'ordre 0.

### 3.1.2 Application au cas du système à huit niveaux.

Nous considérerons par la suite une impulsion linéairement polarisée selon  $\mathbf{e}_x$ . Les termes d'interaction sont définis dans la base des polarisations circulaires  $(\sigma_+, \sigma_-) = (\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y, \mathbf{e}_x - i\mathbf{e}_y)$ . L'Hamiltonien d'interaction prend alors la forme suivante :

$$\mathbf{V} \cdot \mathbf{E} = \frac{1}{2}[v_{\sigma_+} E_x + v_{\sigma_-} E_x]$$

Rappelons l'écriture d'une impulsion de champ électrique réelle :

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2}[\epsilon(t, \tau)e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}e^{-i\omega_L t} + \epsilon^*(t, \tau)e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}e^{i\omega_L t}]\mathbf{e}_x$$

$\tau$  représente un éventuel délai par rapport à d'autres impulsions. Nous l'utiliserons ultérieurement pour définir le délai entre une impulsion pompe et une impulsion sonde. La forme de l'impulsion (Gaussienne, Lorentzienne, pic de Dirac, etc) est comprise dans  $\epsilon$ . Dans nos modélisations, nous avons choisi l'impulsion gaussienne de durée  $d$  :

$$\epsilon(t, \tau) = E_0 e^{-\left(\frac{t-\tau}{d}\right)^2}$$

Appliquons la méthode présentée ci-dessus aux systèmes à huit niveaux en omettant toutefois l'exposant correspondant à l'ordre afin d'alléger les équations. A gauche du signe "=" la matrice densité est écrite à l'ordre  $(N+1)$  et à droite du signe "=" la matrice densité est écrite à l'ordre  $(N)$ .

Soit  $8 \geq n > m \geq 1$  :

$$\begin{aligned} (i\partial_t - \omega_{nm} + \frac{i}{T_{nm}})\Delta n_{nm}(t) &= -\frac{E_x(t)}{\hbar} \sum_l [v_{nl}\rho_{lm} - \rho_{nl}v_{lm}] \\ (i\partial_t + \frac{i}{T_1})\Delta n_{nm}(t) &= -\frac{E_x(t)}{\hbar} \sum_l [v_{nl}\rho_{ln} - \rho_{nl}v_{ln} - v_{ml}\rho_{lm} + \rho_{ml}v_{lm}] \end{aligned} \quad (3.10)$$

Ici, nous avons défini la différence de population  $\Delta n_{nm} = \rho_{nn} - \rho_{mm}$ . La dernière équation nécessaire au calcul de l'évolution de  $\rho$  est donnée pour chaque ordre  $i > 0$  par  $Tr(\rho^{(i)}) = 0$  afin de toujours conserver  $Tr(\rho) = 1$ . A tout ordre, nous effectuons un changement de variable prenant en compte la pulsation du laser notée  $\omega_L$ .  $\tilde{\rho}$  désigne l'enveloppe lentement variable pour  $n \geq 3$  et  $m \leq 2$  :

$$\tilde{\rho}_{nm}(t) = \rho_{nm}(t)e^{i\omega_L t}$$

En injectant dans l'équation précédente le changement de variable, puis l'expression du champ électrique et en ne gardant finalement que les termes lentement variables, nous obtenons une expression à laquelle nous appliquons les propriétés de la transformée de Fourier. Notons  $E = \{3, 4, 5, 6, 7\}$  l'ensemble des indices correspondant aux niveaux excités et  $F = \{1, 2\}$  les indices correspondant aux deux niveaux fondamentaux. Supposons  $n > m$ .

**L'évolution des cohérences s'écrit :**

Si  $n \in E$  et  $m \in F$  :

$$\tilde{\rho}_{nm}(t) = \frac{i}{2\hbar} e^{i(\omega_L - \omega_{nm})t - \frac{t}{T_{nm}}} \Theta(t) \otimes [\sum_{l \leq 2} v_{nl} \rho_{lm} \epsilon - \sum_{l \geq 3} \rho_{nl} v_{lm} \epsilon]$$

Si  $(n, m) \in E^2$  :

$$\rho_{nm}(t) = \frac{i}{2\hbar} e^{-i\omega_{nm}t - \frac{t}{T_{nm}}} \Theta(t) \otimes [\sum_{l \leq 2} v_{nl} \tilde{\rho}_{lm} \epsilon - \tilde{\rho}_{nl} v_{lm} \epsilon^*]$$

Si  $(n, m) \in F^2$  (i.e.  $n=2$  et  $m=1$ ) :

$$\rho_{21}(t) = \frac{i}{2\hbar} e^{-i\omega_{21}t - \frac{t}{T_{21}}} \Theta(t) \otimes [\sum_{l >= 3} v_{2l} \tilde{\rho}_{l1} \epsilon^* - \tilde{\rho}_{2l} \epsilon v_{l1}]$$

**L'évolution des différences de populations s'écrit :**

Si  $n \in E$  et  $m \in F$  :

$$\Delta n_{nm}(t) = \frac{i}{2\hbar} e^{-\frac{t}{T_1}} \Theta(t) \otimes \{ \sum_{l \leq 2} v_{nl} \tilde{\rho}_{ln} \epsilon - \tilde{\rho}_{nl} v_{ln} \epsilon^* - [\sum_{l \geq 3} v_{ml} \tilde{\rho}_{lm} \epsilon^* - \tilde{\rho}_{ml} v_{lm} \epsilon] \}$$

Si  $(n, m) \in E^2$  :

$$\Delta n_{nm}(t) = \frac{i}{2\hbar} e^{-\frac{t}{T_1}} \Theta(t) \otimes [\sum_{l \leq 2} v_{nl} \tilde{\rho}_{ln} \epsilon - \tilde{\rho}_{nl} v_{ln} \epsilon^* + v_{ml} \tilde{\rho}_{lm} \epsilon^* - \tilde{\rho}_{ml} v_{lm} \epsilon]$$

Si  $(n, m) \in F^2$  (i.e.  $n=2$  et  $m=1$ ) :

$$\Delta n_{21}(t) = \frac{i}{2\hbar} e^{-\frac{t}{T_1}} \Theta(t) \otimes \{ \sum_{l >= 3} v_{2l} \tilde{\rho}_{l2} \epsilon^* - \tilde{\rho}_{1l} \epsilon v_{l1} - v_{1l} \tilde{\rho}_{l1} \epsilon^* + \tilde{\rho}_{1l} \epsilon v_{l1} \}$$

En champ faible, pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  les éléments de la matrice d'interaction non-nuls sont  $v_{82}, v_{71}, v_{41}$  et leurs complexes conjugués. Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  les éléments de la matrice d'interaction non-nuls sont  $v_{62}, v_{51}, v_{32}$  et leurs complexes conjugués.

En champ fort, pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  les éléments de la matrice d'interaction non-nuls sont  $v_{82}, v_{71}, v_{51}$  et leurs complexes conjugués. Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  les éléments de la matrice d'interaction non-nuls sont  $v_{62}, v_{42}, v_{31}$  et leurs complexes conjugués.

## 3.2 Calcul de la matrice densité à l'ordre trois

L'écriture de la matrice densité à l'ordre trois est assez fastidieuse dans un système à huit niveaux. Notre objectif dans cette section est de présenter le lien entre la direction dans laquelle le signal est détecté, la fréquence de détection et le nombre de séquences d'impulsions successives à considérer. Par exemple, nous avons vu dans le résumé de ce travail qu'un signal pompe-sonde peut se diviser en trois séquences d'impulsions : le



terme de population, le terme de pump-perturbed free induction decay et le terme de pump-polarization coupling.

Afin de présenter ces notions nous nous contenterons d'un système à deux niveaux dans l'espace de Liouville. Cette espace permet de définir les éléments de la matrice densité sous forme de vecteur. Dans un système à deux niveaux ce vecteur est formé de quatre éléments classés dans l'ordre suivant :

$$|\rho \gg = | \rho_{22} \quad \rho_{11} \quad \tilde{\rho}_{12} \quad \tilde{\rho}_{21} \quad > \quad (3.11)$$

Définissons  $\Omega(t)$ , la matrice  $4 \times 4$  qui correspond à  $[-\mathbf{V} \cdot \mathbf{E}_L, \rho]$  dans l'espace de Liouville. Définissons également la matrice  $G(t)$  dans l'espace de Liouville, fonction de Green qui va gouverner l'évolution de la matrice densité en prenant en compte les relaxations. Seuls les éléments diagonaux de  $G(t)$  sont non-nuls. Ils valent :

$$\begin{aligned} G_{11 \gg \ll 11}(t) &= e^{-\frac{t}{T_1}} \Theta(t) \\ G_{22 \gg \ll 22}(t) &= e^{-\frac{t}{T_1}} \Theta(t) \\ G_{12 \gg \ll 12}(t) &= e^{-i\omega_{12}t - \frac{t}{T_2}} \Theta(t) \\ G_{21 \gg \ll 21}(t) &= e^{-i\omega_{21}t - \frac{t}{T_2}} \Theta(t) \end{aligned} \quad (3.12)$$

Ainsi la matrice densité aux ordres un, deux et trois dans l'espace de Liouville s'écrit :

$$\begin{aligned} |\rho^{(1)}(y) \gg &= \frac{-i}{\hbar} \int_{t_0}^y dt G(y-t) \Omega(t) \rho^{(0)}(t_0) \\ |\rho^{(2)}(y') \gg &= \frac{-1}{\hbar^2} \int_{t_0}^{y'} dy G(y'-y) \Omega(y) \rho^{(1)}(y) \\ &= \int_{t_0}^{y'} \int_{t_0}^y dy dt G(y'-y) \Omega(y) G(y-t) \Omega(t) \rho^{(0)}(t_0) \\ |\rho^{(3)}(y'') \gg &= \frac{i}{\hbar^3} \int_{t_0}^{y''} dt G(y''-y') \Omega(y') \rho^{(2)}(y') \\ &= \int_{t_0}^{y''} \int_{t_0}^{y'} \int_{t_0}^y dy' dy dt G(y''-y') \Omega(y') G(y'-y) \Omega(y) G(y-t) \Omega(t) \rho^{(0)}(t_0) \end{aligned} \quad (3.13)$$

Changeons la variable de temps pour faire apparaître les délais :

$$\begin{aligned} \tau_1 &= y - t \\ \tau_2 &= y' - y \\ \tau_3 &= y'' - y' \end{aligned} \quad (3.14)$$

Ainsi la première impulsion génère une évolution pendant  $\tau_1$ , puis la seconde impulsion interagit  $\tau_1$  femtosecondes après la première et génère une évolution du système pendant  $\tau_2$ . Enfin, la troisième "arrive" après un délai  $\tau_2$  suivant la seconde et génère une évolution du système pendant  $\tau_3$ . A cet instant  $y''$  la matrice densité à l'ordre trois vaut :

$$\begin{aligned} |\rho^{(3)}(y'') \gg &= \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 G(\tau_3) \Omega(y'' - \tau_3) G(\tau_2) \Omega(y'' - \tau_2 - \tau_3) \\ &\quad \times G(\tau_1) \Omega(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3) \rho^{(0)}(t_0) \end{aligned} \quad (3.15)$$

Nous considérons un système dégénéré en fréquences, le signal est donc rayonné à la pulsation  $\omega_L$  des impulsions laser. Divisons  $\Omega(t)$  en deux contributions  $W\epsilon(t)e^{-i\omega_L t + i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + W^*\epsilon^*(t)e^{i\omega_L t - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ . La  $i^e$  impulsion est caractérisée par son vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i$ . Pour que le signal ne soit pas négligeable à cause d'oscillations à la pulsation  $2\omega_L$  les deux premières interactions doivent obligatoirement contenir  $W(t)e^{-i\omega_L t + i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$  et  $W^*(t)e^{i\omega_L t - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ . Cela implique que pour les deux premières impulsions seuls sont autorisés les vecteurs d'onde  $+\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  ou  $-\mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_1$ . Pour écrire la matrice densité à l'ordre trois, le nombre de séquences temporelles d'impulsions non nulles à l'ordre trois est donc réduit à quatre :

$$|\rho^{(3)}(y'') \rangle\rangle = \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 \times \quad (3.16)$$

$$\begin{aligned} & \left[ G(\tau_3)W(y'' - \tau_3)\epsilon(y'' - \tau_3)e^{-i\omega_L(y'' - \tau_3 + \tau_1) + i\mathbf{k}_3\mathbf{r}} \quad \text{Contribution } \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1 \right. \\ & \times G(\tau_2)W(y'' - \tau_2 - \tau_3)\epsilon(y'' - \tau_2 - \tau_3)e^{i\mathbf{k}_2\mathbf{r}} \\ & \times G(\tau_1)W^*(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3)\epsilon^*(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3)e^{-i\mathbf{k}_1\mathbf{r}}\rho^{(0)}(t_0) \\ & + G(\tau_3)W^*(y'' - \tau_3)\epsilon^*(y'' - \tau_3)e^{i\omega_L(y'' - \tau_3 - \tau_1) - i\mathbf{k}_3\mathbf{r}} \quad \text{Contribution } -\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1 \\ & \times G(\tau_2)W(y'' - \tau_2 - \tau_3)\epsilon(y'' - \tau_2 - \tau_3)e^{i\mathbf{k}_2\mathbf{r}} \\ & \times G(\tau_1)W^*(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3)\epsilon^*(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3)e^{-i\mathbf{k}_1\mathbf{r}}\rho^{(0)}(t_0) \\ & + G(\tau_3)W(y'' - \tau_3)\epsilon(y'' - \tau_3)e^{-i\omega_L(y'' - \tau_3 - \tau_1) + i\mathbf{k}_3\mathbf{r}} \quad \text{Contribution } \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1 \\ & \times G(\tau_2)W^*(y'' - \tau_2 - \tau_3)\epsilon^*(y'' - \tau_2 - \tau_3)e^{-i\mathbf{k}_2\mathbf{r}} \\ & \times G(\tau_1)W(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3)\epsilon(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3)e^{i\mathbf{k}_1\mathbf{r}}\rho^{(0)}(t_0) \\ & + G(\tau_3)W^*(y'' - \tau_3)\epsilon^*(y'' - \tau_3)e^{i\omega_L(y'' - \tau_3 + \tau_1) - i\mathbf{k}_3\mathbf{r}} \quad \text{Contribution } -\mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_1 \\ & \times G(\tau_2)W^*(y'' - \tau_2 - \tau_3)\epsilon^*(y'' - \tau_2 - \tau_3)e^{-i\mathbf{k}_2\mathbf{r}} \\ & \left. \times G(\tau_1)W(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3)\epsilon(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3)e^{i\mathbf{k}_1\mathbf{r}}\rho^{(0)}(t_0) \right] \end{aligned}$$

Pour l'instant nous n'avons fixé que l'ordre temporel des vecteurs d'onde qui contribuent de manière non nulle. Nous pouvons maintenant considérer trois impulsions comme indiqué dans l'équation 3.17. Chacune peut intervenir comme première, deuxième ou troisième impulsion, il reste alors pour chaque configuration de vecteurs d'onde six possibilités d'ordonner les trois impulsions.

$$\begin{aligned} E_a(t, \tau_a) &= \frac{1}{2}[\epsilon_a(t, \tau_a)e^{i\mathbf{k}_a\cdot\mathbf{r}}e^{-i\omega_L t} + \epsilon_a^*(t, \tau_a)e^{-i\mathbf{k}_a\cdot\mathbf{r}}e^{i\omega_L t}] \\ E_b(t, \tau_b) &= \frac{1}{2}[\epsilon_b(t, \tau_b)e^{i\mathbf{k}_b\cdot\mathbf{r}}e^{-i\omega_L t} + \epsilon_b^*(t, \tau_b)e^{-i\mathbf{k}_b\cdot\mathbf{r}}e^{i\omega_L t}] \\ E_c(t, \tau_c) &= \frac{1}{2}[\epsilon_c(t, \tau_c)e^{i\mathbf{k}_c\cdot\mathbf{r}}e^{-i\omega_L t} + \epsilon_c^*(t, \tau_c)e^{-i\mathbf{k}_c\cdot\mathbf{r}}e^{i\omega_L t}] \end{aligned} \quad (3.17)$$

### 3.3 Notion de réseau transitoire

Nous considérerons deux cas expérimentaux qui font intervenir la notion de réseau transitoire. Nous nous intéresserons d'abord à la méthode pompe-sonde, dans laquelle la pompe

intervient à l'ordre deux et le signal est détecté dans la direction de la sonde. Nous évoquerons ensuite une expérience à trois impulsions, l'une ayant un délai fixé par rapport aux deux autres.

Le réseau transitoire est un phénomène qui se produit à l'ordre deux en perturbation : les deux premiers champs  $\epsilon(y'' - \tau_1 - \tau_2 - \tau_3)$  suivi de  $\epsilon^*(y'' - \tau_2 - \tau_3)$  (ou leur complexe conjugué) génèrent un réseau de population  $\Delta n^{(2)}(\mathbf{r}, \tau_1 - \tau_2)$  équivalent à un réseau de diffraction selon le vecteur d'onde  $-k_2 + k_1$  (ou  $k_2 - k_1$ ). Nous ne considérons que la contribution des réseaux statiques (i.e. n'oscillant pas à  $2\omega_L$  [80]). La troisième impulsion effectue alors l'équivalent d'une diffraction de Bragg sur le réseau transitoire : elle est diffractée dans la direction  $k_3 - k_2 + k_1$  (ou  $k_3 + k_2 - k_1$ ), tant que celui-ci existe, c'est-à-dire pendant la durée de vie de la différence de populations  $\Delta n^{(2)}(\mathbf{r}, \tau_1 - \tau_2)$ .

Dans la figure 3.1 nous représentons la direction du faisceau diffracté selon  $k_p + k_t - k_p$  dans le cas d'une expérience pompe-sonde ; t désigne la sonde et p la pompe. La détection du signal pompe-sonde a bien lieu dans la direction de la sonde puisque  $k_t = k_p + k_t - k_p$ .

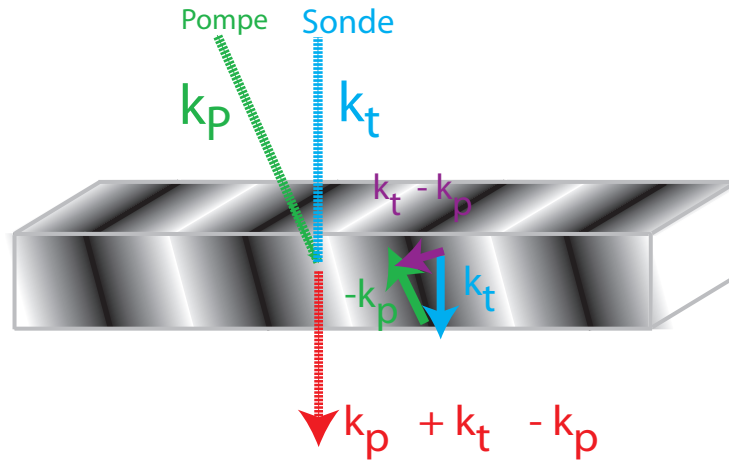


FIG. 3.1 – La troisième impulsion diffracte sur un réseau de population d'ordre deux. Les dégradés de gris représentent les variations de  $\Delta n^{(2)}(\mathbf{r})$ .

### 3.4 Champ rayonné par un milieu non-linéaire fin et peu absorbant

Considérons une impulsion ultra-courte dont le champ électrique s'écrit :

$$\mathbf{E}(t) = \epsilon(z, t)e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{z} - i\omega_L t} + \epsilon^*(z, t)e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{z} + i\omega_L t}$$

Ce champ laser est à l'origine de polarisations linéaires et non-linéaires du matériau. Par exemple dans une expérience pompe-sonde nous considérerons en particulier la polarisation non-linéaire résultant de l'ordre 3 de la matrice densité comme indiqué au chapitre 2. Ici  $\mathbf{V}$  désigne le moment dipolaire du système étudié.

$$\mathbf{P}^{(3)}(t, \tau) = Tr(\rho^{(3)}(t, \tau)\mathbf{V}) \quad (3.18)$$

Le vecteur déplacement électrique  $\mathbf{D}$  permet de prendre en compte la polarisation du milieu  $\mathbf{P}$  qui résulte du déplacement des charges liées. Le vecteur induction magnétique  $\mathbf{H}$  comprend l'aimantation  $\mathbf{M}$  apparaissant avec des boucles de courants liés. La densité de courant est notée  $\mathbf{j}$ .

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \epsilon_0 \epsilon_r \mathbf{E} = \epsilon_0 (1 + \chi) \mathbf{E} \quad (3.19)$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}) = \mu_0 \mu_r \mathbf{H} \quad (3.20)$$

$$\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E} \quad (3.21)$$

Les équations de Maxwell pour un milieu diélectrique quelconque relient le champ électrique appliqué  $\mathbf{E}$ , le "champ dans le matériau"  $\mathbf{D}$ , le champ magnétique appliqué  $\mathbf{B}$  et le "champ" associé dans le matériau  $\mathbf{H}$ , la densité de charges libres  $\rho_{libre}$  et leur courant associé  $\mathbf{j}_{libre}$  :

$$\nabla \wedge \mathbf{H} = \mathbf{j}_{libre} + \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{D} \quad (3.22)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B} \quad (3.23)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho_{libre} \quad (3.24)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (3.25)$$

Injectons dans les équations de Maxwell la contribution linéaire et non-linéaire de la polarisation  $\mathbf{P}$ .  $\chi^{(1)}$  est une grandeur scalaire seulement si le matériau est isotrope.

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^L + \mathbf{P}^{NL} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} + \mathbf{P}^{NL}$$

L'équation de propagation des champs est obtenue en calculant  $\nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E})$  :

$$\nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E}) = -\mu_0 \mu_r \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{j}_{libre} - \mu_0 \mu_r \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{D} \quad (3.26)$$

Pour un champ électrique transverse se propageant comme une onde plane :

$$\nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E}) = \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \Delta \mathbf{E} = -\Delta \mathbf{E}$$

En séparant la contribution linéaire et non-linéaire de  $\mathbf{P}$ , l'équation de propagation 3.26 s'écrit :

$$-\Delta \mathbf{E} + \frac{1 + \chi^{(1)}}{c^2} \mu_r \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = -\mu_0 \mu_r \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{j}_{libre} - \mu_0 \mu_r \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}^{NL} \quad (3.27)$$

L'écriture de la propagation du champ linéaire :

$$-\Delta \mathbf{E} = -\mu_0 \mu_r \sigma \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} - \frac{\mu_r \epsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} \quad (3.28)$$

permet d'exprimer les indices optiques des axes propres du milieu anisotrope. Dans le cas d'un milieu présentant un effet Faraday, ces indices complexes correspondent à la propagation de deux ondes polarisées circulaires droite et gauche.

## Propagation du champ résultant de la réponse non-linéaire :

Nous poserons dans la suite  $\mu_r = 1$ . Développons la polarisation à tous les ordres de non-linéarité et selon toutes les directions de propagation [78], [79],[77] :

$$\mathbf{P}^{NL}(\mathbf{r}, t) = \sum_{n=2,3,\dots} \sum_s \mathbf{P}^{(n)}(t) e^{i\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r} - i\omega_s t}$$

Le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_s$  et la pulsation  $\omega_s$  sont des combinaisons des pulsations incidentes et des vecteurs d'onde dépendant de la géométrie de l'expérience :

$$\mathbf{k}_s = \pm \mathbf{k}_1 \pm \mathbf{k}_2 \dots \pm \mathbf{k}_n \quad (3.29)$$

Supposons que la réponse linéaire est locale pour toutes les fréquences  $\omega_i$ , i.e. :

$$\begin{aligned} 1 + \chi(\omega_i) &= n_i^2 \\ k_i &= \frac{\omega_j}{c} n_j \end{aligned} \quad (3.30)$$

Nous cherchons une solution particulière de l'équation 3.26 de la forme suivante :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{NL}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{P}_s^{(n)}(t) e^{i\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{z} - i\omega_s t} \\ \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{E}_s(z, t) e^{i\mathbf{k}'_s \cdot \mathbf{z} - i\omega_s t} \\ k'_s &= \frac{\omega_s}{c} n_s \end{aligned} \quad (3.31)$$

Ici  $\mathbf{k}'_s$  peut être différent de  $\mathbf{k}_s$  en fonction de la relation de dispersion du matériau et de la géométrie de l'expérience. Appliquons l'hypothèse de l'enveloppe lentement variable et supposons que la longueur caractéristique de variation spatiale est grande devant la longueur d'onde :

$$\begin{aligned} \left| \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{P}_s^{(n)}(z, t) \right| &\ll |\omega_s \mathbf{P}_s^{(n)}(z, t)| \\ \left| \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}_s(z, t) \right| &\ll |\omega_s \mathbf{E}_s(z, t)| \\ \left| \frac{\partial}{\partial z} \mathbf{E}_s(z, t) \right| &\ll |k'_s \mathbf{E}_s(z, t)| \end{aligned} \quad (3.32)$$

D'où l'équation de propagation du champ rayonné par la polarisation non-linéaire :

$$-ik'_s \frac{\partial}{\partial z} \mathbf{E}_s(z, t) = \omega_s^2 \mu_0 \mathbf{P}_s^{(n)}(t) e^{i(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}'_s) \cdot \mathbf{z}} \quad (3.33)$$

En supposant que le champ  $E_s$  rayonné est beaucoup moins intense que le champ incident, la solution de l'équation 3.33 correspond à une croissance de  $E_s(z, t)$  décrite par la fonction sinus cardinal de la variable  $\frac{\Delta \cdot \mathbf{k} \cdot \mathbf{z}}{2}$  où  $\Delta \cdot \mathbf{k} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}'_s$ . Si nous considérons que l'échantillon est très fin, que  $\frac{\Delta \cdot \mathbf{k} \cdot \mathbf{z}}{2} \ll \pi$  et que  $E_s(0, t) = 0$ , alors :

$$\mathbf{E}_s(\delta z, t) = \frac{i\delta z}{\epsilon_0 n^2} \mathbf{P}^{(n)}(t) \quad (3.34)$$

Dans le cadre de notre modèle simple constitué de quelques niveaux de l'atome d'hydrogène, nous calculons la polarisation non-linéaire générée mais ne considérerons pas d'effet

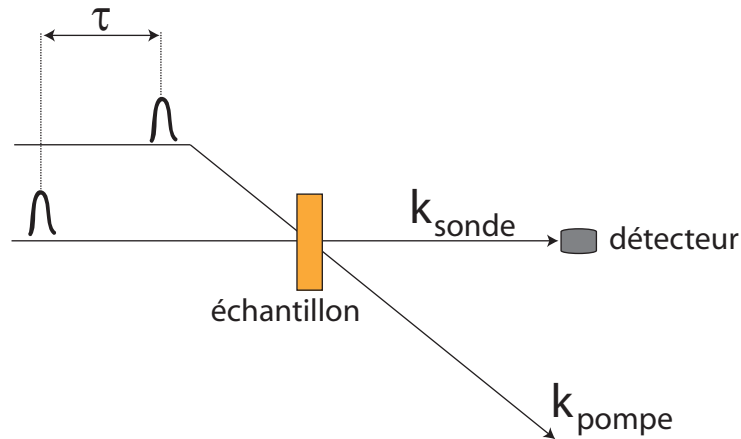
de propagation pour déterminer le champ électrique rayonné. Nous fixons donc arbitrairement que le champ rayonné vaut  $\mathbf{E} \equiv \mathbf{P}$ . En fonction de la direction de propagation  $\mathbf{k}_s$  et de la fréquence du rayonnement émis, du nombre d'impulsions incidentes et de leur succession temporelle, un grand nombre de configurations expérimentales pour la mesure du rayonnement à l'ordre trois existent : les expériences pompe-sonde, l'écho de photon à deux ou trois impulsions, les expériences en configuration de "réseau transitoire", etc ... Nous considérerons dans la suite, les expériences pompe-sonde et en configuration de "réseau transitoire" à trois faisceaux.

## 3.5 La configuration pompe-sonde

### 3.5.1 Origine des différents termes pour la polarisation non-linéaire pompe-sonde

Nous avons vu dans la partie précédente que nous pouvons calculer  $\rho^{(3)}$  temporellement puis nous avons détaillé la polarisation du matériau  $\mathbf{P}^{(3)}$  et son lien avec le champ rayonné  $\mathbf{E}^{(3)}$ . Détaillons maintenant l'effet des deux champs électriques pompe et sonde. L'indice t signifiera "sonde" et l'indice p signifiera "pompe". La pompe est fixe dans le temps et la sonde décalée d'un délai  $\tau$  :

$$\begin{aligned} E_t(t, \tau) &= \epsilon_t(t - \tau)e^{i\mathbf{k}_t \cdot \mathbf{r} - i\omega_L t} + \epsilon_t^*(t - \tau)e^{-i\mathbf{k}_t \cdot \mathbf{r} + i\omega_L t} \\ E_p(t) &= \epsilon_p(t)e^{i\mathbf{k}_p \cdot \mathbf{r} - i\omega_L t} + \epsilon_p^*(t)e^{-i\mathbf{k}_p \cdot \mathbf{r} + i\omega_L t} \end{aligned} \quad (3.35)$$



Afin d'obtenir la matrice densité d'ordre trois qui correspond à une polarisation se propageant selon le vecteur d'onde de la sonde  $\mathbf{k}_t$ , plusieurs combinaisons d'un nombre impair de champs sont possibles. Le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_s$  de la polarisation linéaire ou non-linéaire résultante peut s'écrire :

$$\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_t \quad (3.36)$$

$$\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_t - \mathbf{k}_t + \mathbf{k}_t \quad (3.37)$$

$$\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_t - \mathbf{k}_p + \mathbf{k}_p \quad (3.38)$$

L'équation (3.36) correspond à un effet linéaire. En normalisant le signal différentiel, elle est en principe éliminée. L'équation (3.37) correspond à un effet d'ordre trois dû à

l'impulsion sonde. Ce terme est plus faible que les effets de la pompe et il disparaît sous l'effet de la mesure différentielle. Ce sont les combinaisons temporelles des vecteurs d'onde de l'équation (3.38) qui correspondent à l'effet non-linéaire prédominant. En se reportant à l'écriture de la réponse à l'ordre trois en terme de vecteur de Liouville, ces combinaisons temporelles sont :

1ère impulsion	2e impulsion	3e impulsion	Nom du terme
$\mathbf{k}_p$	$-\mathbf{k}_p$	$\mathbf{k}_t$	Terme de population
$-\mathbf{k}_p$	$\mathbf{k}_p$	$\mathbf{k}_t$	
$-\mathbf{k}_p$	$\mathbf{k}_t$	$\mathbf{k}_p$	Pump polarization coupling
$\mathbf{k}_t$	$-\mathbf{k}_p$	$\mathbf{k}_p$	Pump perturbed free induction decay

Ces trois situations physiques ont été formalisées par Brito-Cruz et al. [15]. Nous appellerons "cohérents" les termes de "Pump-perturbed free induction decay" et de "pump-polarization coupling" car dans ces termes, un réseau transitoire non-nul est produit par les deux premières impulsions. Le calcul analytique de ces trois termes dans le cas d'impulsions de Dirac est détaillé en annexe, ci-dessous sont rappelés les principaux résultats :

### Contribution du terme de population

Ce terme désigne la somme des combinaisons de champs  $\epsilon_p(t_1)\epsilon_p^*(t_2 \geq t_1)\epsilon_t(t_3 \geq t_2)$  et  $\epsilon_p^*(t_1)\epsilon_p(t_2 \geq t_1)\epsilon_t(t_3 \geq t_2)$ . Il est maximal pour des délais pompe-sonde positifs et décroît exponentiellement pendant la durée  $T_1$ .

### Contribution du terme de "pump-perturbed free induction decay" noté PP-FID

Ce terme désigne la combinaison de champs  $\epsilon_t(t_1)\epsilon_p^*(t_2 \geq t_1)\epsilon_p(t_3 \geq t_2)$ . Il fait intervenir la fonction de Heavyside  $\Theta(-\tau)$  qui montre que dans le cas d'impulsions de Dirac, seules les contribution de  $\tau < 0$  sont non-nulles. La durée de ce terme dépend de  $T_2$ , de la durée des impulsions et du désaccord de la pulsation laser par rapport aux transitions du système considéré.

### Contribution du terme de "pump polarization coupling" noté PPC

Ce terme désigne la combinaison de champs  $\epsilon_p^*(t_1)\epsilon_t(t_2 \geq t_1)\epsilon_p(t_3 \geq t_2)$ . Dans le cas d'impulsions de Dirac, ces termes ne peuvent être non-nuls que si  $\tau = 0$ . Pour des impulsions plus longues, la durée de ce terme dépend également de  $T_2$ , de la durée des impulsions et du désaccord de la pulsation laser par rapport aux transitions du système considéré.

## 3.5.2 Principe d'une mesure pompe-sonde.

Le champ électrique émis par l'échantillon dans la direction du faisceau sonde est la somme du champ d'ordre trois et du champ d'ordre un. Ainsi, en négligeant le terme quadratique en  $\mathbf{E}^{(3)}$ , l'intensité mesurée sur le détecteur vaudra [77] :

$$\begin{aligned}
 I(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathbf{E}^{(1)}(t) + \mathbf{E}^{(3)}(t, \tau)|^2 dt \\
 &\simeq \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathbf{E}^{(1)}(t)|^2 dt + 2 \int_{-\infty}^{+\infty} \Re[\mathbf{E}^{(1)}(t) \cdot \mathbf{E}^{*(3)}(t, \tau)] dt
 \end{aligned} \tag{3.39}$$

La mesure différentielle notée  $\Delta I(\tau)$  consiste à soustraire l'intensité mesurée lorsque le faisceau pompe est coupé :

$$\Delta I(\tau) = 2 \int_{-\infty}^{+\infty} \Re[\mathbf{E}^{(1)}(t) \cdot \mathbf{E}^{*(3)}(t, \tau)] dt$$

En normalisant cette quantité par l'intensité mesurée lorsque le faisceau pompe est coupé, nous obtenons :

$$\frac{\Delta I(\tau)}{I^{(1)}} = \frac{2 \int_{-\infty}^{+\infty} \Re[\mathbf{E}^{(1)}(t) \cdot \mathbf{E}^{*(3)}(t, \tau)] dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} |\mathbf{E}^{(1)}(t)|^2 dt}$$

### 3.5.3 Illustration numérique des termes pompe-sonde

Nous avons considéré l'intensité correspondant au champ rayonné avec une polarisation selon  $e_x$  et un désaccord nul par rapport à la transition 2s-3p. Les temps de relaxation choisis sont  $T_1 = 100 fs$ ,  $T_2 = 10 fs$  et la durée des impulsions pompe et sonde est de 10 fs. L'impulsion sonde est dix fois moins intense que l'impulsion pompe. Les courbes de la figure 3.2 ont été obtenues avec le système à huit niveaux en champ fort  $B=1T$ . Pour les trois termes pompe-sonde nous distinguons bien les trois zones temporelles :  $\tau > 0$ ,  $\tau \approx 0$  et  $\tau < 0$ .

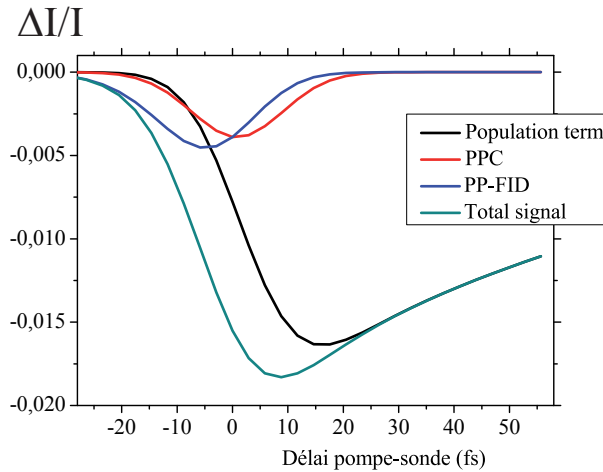


FIG. 3.2 – Intensité calculée pour le terme de population et pour les termes cohérents : PP-FID désigne le terme de "pump-perturbed free induction decay" et PPC signifie "pump-polarization coupling".

## 3.6 La configuration en "réseau transitoire" à trois impulsions

Cette technique a été développée en 1985 lors d'expériences novatrices de A. Weiner et al. [81]. Ils ont montré que cette configuration permet d'atteindre une résolution meilleure que la durée des impulsions pour distinguer entre élargissement homogène et élargissement inhomogène des systèmes étudiés.



### 3.6.1 Description

Considérons trois impulsions notées  $a$ ,  $b$  et  $c$  se succédant sur l'échantillon. Fixons les instants d'arrivée  $\tau_a = \tau$ ,  $\tau_c = 0fs$  et  $\tau_b = T = +300fs$ .

$$\begin{aligned} E_a(t, \tau) &= \frac{1}{2}[\epsilon_a(t, \tau)e^{i\mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}}e^{-i\omega_L t} + \epsilon_a^*(t, \tau)e^{-i\mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r}}e^{i\omega_L t}] \\ E_c(t, 0) &= \frac{1}{2}[\epsilon_c(t, 0)e^{i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}}e^{-i\omega_L t} + \epsilon_c^*(t, 0)e^{-i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}}e^{i\omega_L t}] \\ E_b(t, T) &= \frac{1}{2}[\epsilon_b(t, T)e^{i\mathbf{k}_b \cdot \mathbf{r}}e^{-i\omega_L t} + \epsilon_b^*(t, T)e^{-i\mathbf{k}_b \cdot \mathbf{r}}e^{i\omega_L t}] \end{aligned} \quad (3.40)$$

La détection se fait dans deux directions  $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_a - \mathbf{k}_c + \mathbf{k}_b$  et  $\mathbf{k}'_s = -\mathbf{k}_a + \mathbf{k}_c + \mathbf{k}_b$ . De la même manière que pour la configuration pompe-sonde, nous allons considérer les combinaisons temporelles des trois champs  $E_a(t, \tau)$ ,  $E_c(t, 0)$  et  $E_b(t, T)$ . Comme  $E_c(t, T)$  est fixée comme étant la dernière impulsion, il existe quatre combinaisons.

**Dans la direction  $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_b + \mathbf{k}_a - \mathbf{k}_c$  :**

$$\epsilon_b(T)\epsilon_a(\tau \geq 0)\epsilon_c^*(0) \quad (3.41)$$

$$\epsilon_b(T)\epsilon_c^*(0)\epsilon_a(\tau \leq 0) \quad (3.42)$$

**Dans la direction  $\mathbf{k}'_s = \mathbf{k}_c - \mathbf{k}_a + \mathbf{k}_b$  :**

$$\epsilon_b(T)\epsilon_a^*(\tau \geq 0)\epsilon_c(0) \quad (3.43)$$

$$\epsilon_b(T)\epsilon_c(0)\epsilon_a^*(\tau \leq 0) \quad (3.44)$$

Les combinaisons temporelles des impulsions  $a$  et  $c$  correspondent à l'interaction de la première et de la seconde impulsion. Elles génèrent une population qui dépend des coordonnées d'espace : il s'agit d'un réseau de population d'ordre deux dans la direction  $\pm(\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_c)$ . La troisième impulsion diffracte sur ce réseau transitoire et produit le signal d'ordre trois détecté.

En fixant le délai  $T \gg T_2$ , Weiner et al. ont montré que les signaux mesurés dans cette configuration sont symétriques par rapport au délai  $\tau$  entre les deux premières impulsions dans le cas d'un système homogène et que l'on observe un décalage temporel du signal dans le cas d'un système ayant un élargissement inhomogène. L'élargissement homogène désigne la largeur spectrale associée à une transition pour un atome. Il correspond au taux de relaxation de la cohérence associée à ce niveau. Une augmentation de la température pourra par exemple augmenter le couplage des cohérences avec le système extérieur et donc renforcer son taux de relaxation.

L'élargissement inhomogène provient de l'étude de  $N$  atomes ayant des fréquences de transitions légèrement différentes. Lorsque les  $N$  dipôles de ces atomes se déphasent les uns par rapport aux autres, la cohérence globale est perdue. Elle peut être retrouvée dans des configurations d'échos de photons en détectant l'instant où les dipôles se remettent en phase après une séquence de deux impulsions excitatrices les ayant déphasés les uns par rapport aux autres.

Grâce à la configuration à trois impulsions, Weiner et al. ont également considéré l'effet d'un système multi-niveaux et ont montré que cette structure génère des signaux similaires aux systèmes ayant un élargissement homogène. En effet, un grand nombre de niveaux

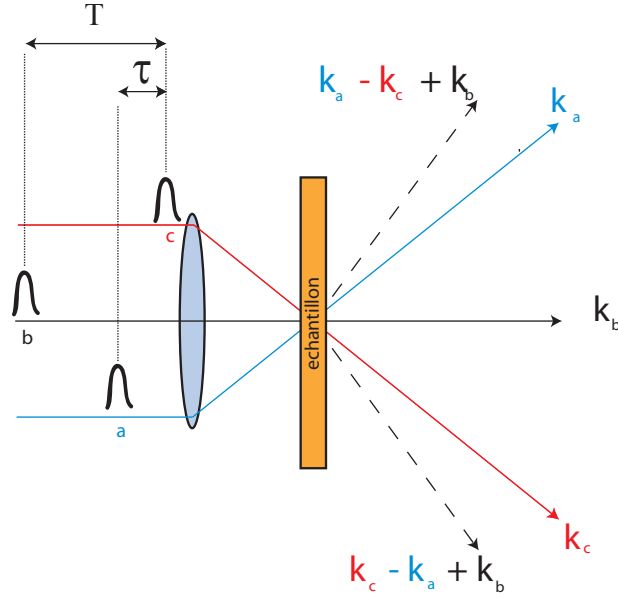


FIG. 3.3 – Trois impulsions se succèdent sur l'échantillon et génèrent un signal d'ordre trois détecté dans les deux directions  $\mathbf{k}_b \pm (\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_c)$ .

excités peut conduire à un déphasage instantané et donc à un signal correspondant à un système homogène de  $T_2$  très court. Ils ont illustré leur approche par des mesures sur des colorants tels que le "Nile Blue" et la rhodamine.

Cette configuration nous intéresse au niveau expérimental, tout d'abord pour confirmer la possibilité d'un signal magnéto-optique cohérent. Cependant, comme le temps de vie des cohérences  $T_2$  dans un métal est inférieur à 10 fs [52], des mesures de dynamique cohérente ultra-rapide nécessitent des impulsions ayant une durée de cet ordre là. Cette configuration à trois impulsions est intéressante également pour les mesures de dynamiques d'aimantation. En effet elle donne accès à l'ordre trois uniquement de la réponse non-linéaire et non pas au terme d'interférences entre l'ordre un et l'ordre trois de la dynamique magnéto-optique comme l'indique la formule 3.39. Ce type de mesures promet donc une comparaison plus directe entre théorie et expérience.

### 3.6.2 Principe d'une mesure en configuration de réseau transitoire à trois faisceaux.

Le champ électrique émis par l'échantillon dans la direction  $\mathbf{k}'_s = \mathbf{k}_b \pm (\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_c)$  se différencie du signal pompe-sonde parce qu'il ne fait pas intervenir le champ électrique linéaire. Il correspond au terme quadratique en  $\mathbf{E}^{(3)}$ , l'intensité mesurée sur le détecteur vaudra :

$$I(\tau, T) = \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathbf{E}^{(3)}(t, \tau, T)|^2 dt \quad (3.45)$$

La mesure différentielle notée  $\Delta I(\tau)$  correspond à la soustraction du signal lorsqu'un faisceau est occulté. En négligeant les effets de diffusion  $\Delta I(\tau, T) = I(\tau, T)$ .

### 3.6.3 Illustration numérique de la configuration de réseau transitoire à trois faisceaux.

Nous avons calculé l'intensité correspondant au champ rayonné avec une polarisation selon  $e_x$  et un désaccord de 0.08% par rapport à la transition  $2s_{j=1/2} - 3p_{j=1/2}$ . Les temps de relaxation choisis sont  $T_1=1350$  fs,  $T_2=10$  fs et la durée des impulsions est de 50 fs. Les impulsions sont polarisées selon  $e_x$ . Les courbes ont été obtenues avec le système à huit niveaux en champ faible  $B=0.05T$ .

Nous avons tracé le rapport du signal non-linéaire et du signal linéaire afin de pouvoir comparer leurs ordres de grandeur :

$$\frac{I(\tau, T)}{I^{(1)}} = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} |\mathbf{E}^{(3)}(t, \tau, T)|^2 dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} |\mathbf{E}^{(1)}(t)|^2 dt}$$

#### Intensité du terme cohérent

Nous avons tracé l'intensité mesurée dans les deux directions  $\pm[k_0 - k_\tau] + k_T$  dans le cas où nous faisons varier le délai  $\tau$  et où le délai  $T$  est fixe tel que  $T=500$  fs.

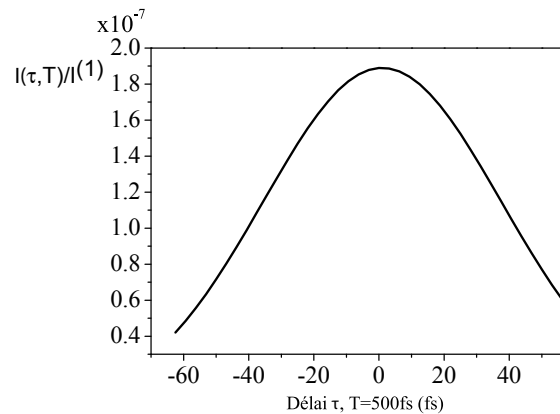


FIG. 3.4 – Intensité rayonnée pour le terme cohérent. Elle est identique pour les deux directions de propagation et pour  $\pm B$

#### Intensité du terme de populations

Nous avons tracé l'intensité mesurée dans les deux directions  $\pm[k_0 - k_\tau] + k_T$  dans le cas où nous faisons varier le délai  $T$  et où le délai  $\tau$  est fixe tel que  $\tau=0$  fs :

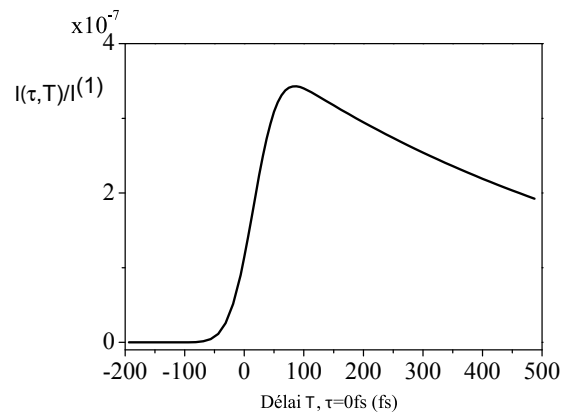


FIG. 3.5 – Intensité rayonnée pour le terme de populations. Pour les deux directions de propagation et à  $\pm B$ , le signal est identique.

### 3.7 Modification de la polarisation du champ rayonné : rotation et ellipticité

Nous considérons que la polarisation du champ électrique initiale c'est-à-dire avant l'échantillon est définie dans le plan  $(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y)$  :

$$\mathbf{E}^0 = \begin{vmatrix} E_x^0 \\ E_y^0 \\ 0 \end{vmatrix} \quad (3.46)$$

Sous l'effet d'une seule impulsion, à l'ordre 1 en perturbation, nous noterons  $\mathbf{P}^{(1)}(t)$  la polarisation du matériau et  $\mathbf{E}^{(1)}(t)$  le champ rayonné :

$$\mathbf{E}^{(1)}(t) \equiv \mathbf{P}^{(1)}(t) = \begin{vmatrix} P_x^{(1)}(t) \\ P_y^{(1)}(t) \\ 0 \end{vmatrix} = \frac{1}{2} \begin{vmatrix} P_{\sigma_+}^{(1)}(t) + P_{\sigma_-}^{(1)}(t) \\ P_{\sigma_+}^{(1)}(t) - P_{\sigma_-}^{(1)}(t) \\ 0 \end{vmatrix} \quad (3.47)$$

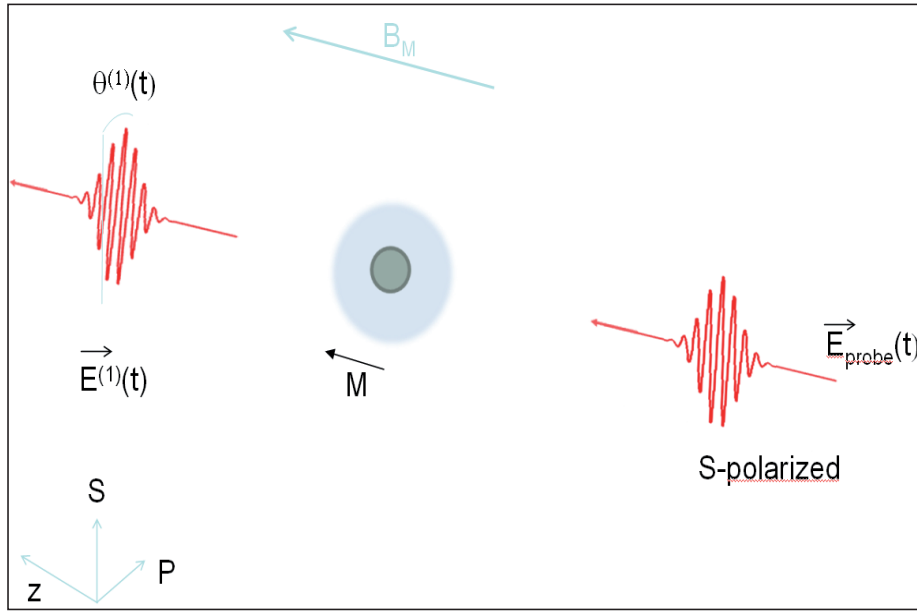


FIG. 3.6 – Rotation magnéto-optique linéaire de la polarisation du champ électrique rayonné par un atome d'hydrogène soumis à un champ magnétique statique. Seul l'atome modifie la polarisation.

La polarisation d'ordre 3 est notée  $\mathbf{P}^{(3)}(t, \tau)$ . Elle est associée au champ rayonné  $\mathbf{E}^{(3)}(t, \tau)$  :

$$\mathbf{E}^{(3)}(t, \tau) \equiv \mathbf{P}^{(3)}(t, \tau) = \begin{vmatrix} P_x^{(3)}(t, \tau) \\ P_y^{(3)}(t, \tau) \\ 0 \end{vmatrix} = \frac{1}{2} \begin{vmatrix} P_{\sigma_+}^{(3)}(t, \tau) + P_{\sigma_-}^{(3)}(t, \tau) \\ P_{\sigma_+}^{(3)}(t, \tau) - P_{\sigma_-}^{(3)}(t, \tau) \\ 0 \end{vmatrix} \quad (3.48)$$

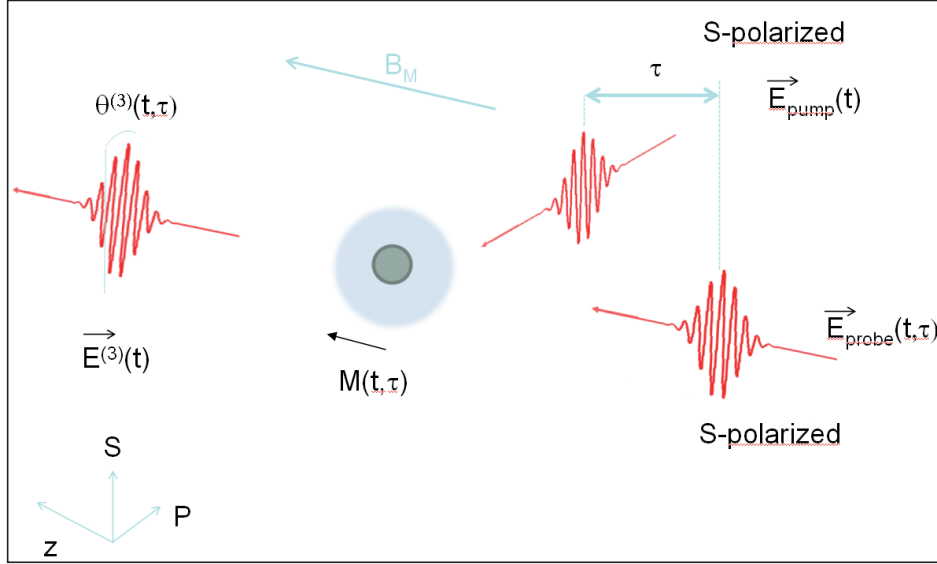


FIG. 3.7 – Rotation magnéto-optique non-linéaire : l'impulsion pompe intervient dans la modification de la polarisation.

### 3.7.1 Approche géométrique de la rotation et de l'ellipticité

La manière la plus générale d'écrire la polarisation d'une onde électromagnétique  $\mathbf{E}$  est la suivante [82] :

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} A_1 \cos(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \phi_1) \\ A_2 \cos(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \phi_2) \end{pmatrix} \quad (3.49)$$

Introduisons le retard de phase :  $\Phi = \phi_2 - \phi_1$ . Ainsi les coordonnées de  $\mathbf{E}$  obéissent à l'équation de l'ellipse :

$$\frac{E_x}{A_1} + \frac{E_y}{A_2} - \frac{2E_x E_y}{A_1 A_2} \cos(\phi) = \sin(\phi)^2$$

La polarisation de  $\mathbf{E}$  est totalement caractérisée par les trois paramètres  $(A_1, A_2, \phi)$ . Un autre triplet de paramètres est plus commode pour calculer la rotation et l'ellipticité : il s'agit des demi-axes de l'ellipse  $(a, b)$  et de son angle d'inclinaison  $\alpha$  par rapport à l'axe  $\mathbf{e}_x$  comme indiqué sur la figure 3.8.

Pour relier  $(A_1, A_2, \phi)$  à  $(a, b, \alpha)$ , écrivons la conservation de l'intensité lumineuse :

$$I = A_1^2 + A_2^2 = a^2 + b^2 \quad (3.50)$$

En écrivant l'équation de l'ellipse dans les bases  $(X, Y)$  et  $(x, y)$  et en définissant le rapport des amplitudes des champs :

$$\tan(\gamma) = \frac{A_2}{A_1} \quad (3.51)$$

$$e = \tan(\epsilon) = \pm \frac{b}{a} \quad (3.52)$$

Le signe de l'ellipticité  $e$  permet de définir le sens de la polarisation : droite ou gauche, dont la définition est rappelée ci-dessous :

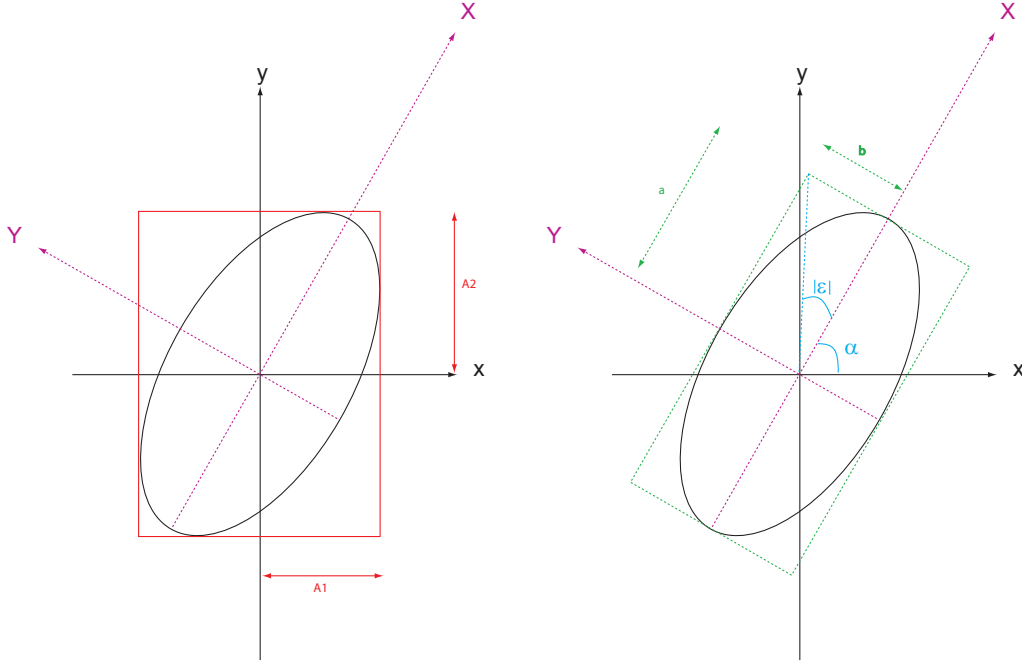


FIG. 3.8 – Définition géométrique de la rotation  $\alpha$  et de l'ellipticité  $\epsilon$ .

**Polarisation circulaire ou elliptique droite** : Dans le plan perpendiculaire à la propagation, le champ électrique effectue un trajet dans le sens horaire lorsque l'observateur regarde en direction de la source. Alors  $0 < e \leq 1$  et  $0 < \epsilon \leq \frac{\pi}{4}$ .

**Polarisation circulaire ou elliptique gauche** : Dans le plan perpendiculaire à la propagation, le champ électrique effectue un trajet dans le sens anti-horaire lorsque l'observateur regarde en direction de la source. Alors  $-1 \leq e < 0$  et  $-\frac{\pi}{4} \leq \epsilon < 0$ .

Nous obtenons l'expression de l'angle  $\epsilon$  associé à l'ellipticité :

$$\begin{aligned} \sin(2\epsilon) &= \frac{2A_1A_2 \sin \phi}{I} \\ \cos(2\epsilon) &= \frac{1}{I} [I^2 - 4A_1^2A_2^2 \sin^2 \phi]^{1/2} \end{aligned} \quad (3.53)$$

La rotation  $\alpha$  s'écrit :

$$\begin{aligned} \sin[2\alpha] &= \frac{2A_2A_1 \cos(\phi)}{\sqrt{I^2 - 4A_2^2A_1^2 \sin^2(\phi)}} \\ \cos[2\alpha] &= \frac{A_1^2 - A_2^2}{\sqrt{I^2 - 4A_2^2A_1^2 \sin^2(\phi)}} \end{aligned} \quad (3.54)$$

Comme les fonctions arccos et arcsin ne sont définies que sur les intervalles  $[0, \pi]$  et  $[-\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2}]$ , pour retrouver  $\alpha$  sur l'intervalle  $[-\frac{\pi}{2}, \frac{3\pi}{2}]$  il faut calculer les valeurs  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  :

$$\alpha_1 = \frac{1}{2} \arccos \left( \frac{A_1^2 - A_2^2}{\sqrt{I^2 - 4A_2^2A_1^2 \sin^2(\phi)}} \right) \quad (3.55)$$

$$\alpha_2 = \frac{1}{2} \arcsin \left( \frac{2A_2A_1 \cos(\phi)}{\sqrt{I^2 - 4A_2^2A_1^2 \sin^2(\phi)}} \right) \quad (3.56)$$

En fonction des valeurs de  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$ , le schéma du cercle trigonométrique (figure 3.9) permet de retrouver la rotation  $\alpha$ . Le même raisonnement est valable pour l'angle d'ellipticité  $\epsilon$ .

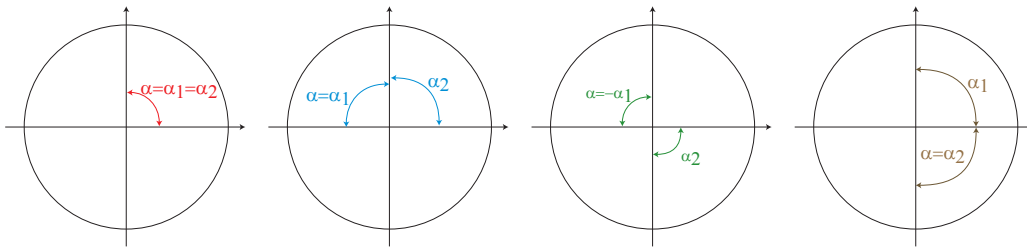


FIG. 3.9 – Détermination de l'angle de rotation  $\alpha$  pour les quatre domaines de définition du couple d'angles  $(\alpha_1, \alpha_2)$ .

Inversement, nous pouvons écrire la polarisation elliptique directement en fonction des paramètres  $\alpha$  et  $\epsilon$  :

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} \cos(\alpha) \cos(\epsilon) - i \sin(\alpha) \sin(\epsilon) \\ \sin(\alpha) \cos(\epsilon) + i \cos(\alpha) \sin(\epsilon) \end{pmatrix} \quad (3.57)$$

Par le calcul nous avons accès aux grandeurs  $\epsilon(t, \tau)$  et  $\alpha(t, \tau)$  auxquelles nous n'avons pas accès directement expérimentalement. En effet, avec un détecteur lent à l'échelle de la femtoseconde, nous n'avons accès qu'à des quantités moyennées sur  $t$  et pondérées par l'amplitude du champ électrique rayonné. Dans cette section nous avons choisi de présenter une approche géométrique de la polarisation ; nous aurions aussi pu calculer la rotation de la polarisation atomique à l'aide de l'opérateur quantique de rotation.

### 3.7.2 Approche expérimentale de la rotation et de l'ellipticité à l'aide d'un pont de polarisation

#### Principe d'une mesure ellipsométrique à l'aide d'un pont de polarisation

Expérimentalement, la rotation et l'ellipticité en fonction du délai pompe-sonde sont mesurées à l'aide de lames demi-onde et quart d'onde suivies d'un cube polariseur réfléchissant une composante du champ électrique et transmettant la composante de polarisation orthogonale. On détecte sur deux photodiodes la variation d'intensité sur chaque bras de ce pont de polarisation pour en déduire soit la rotation, soit l'ellipticité. La figure 3.10 schématise la mesure de la rotation.

En considérant que l'échantillon n'est ni biréfringent, ni dichroïque avant l'application d'un champ magnétique, en plaçant une lame demi-onde à un angle  $\frac{\pi}{8}$ , chaque bras du pont de polarisation reçoit la même intensité lumineuse. En appliquant un champ magnétique et une impulsion pompe, la polarisation du champ rayonné sera rendue elliptique et correspondra à une faible variation de l'intensité relative mesurée sur chaque bras du pont de polarisation.

#### Lien entre la mesure ellipsométrique et la polarisation du champ rayonné à l'ordre trois.

Dans la configuration expérimentale que nous modélisons, la polarisation du champ électrique après l'échantillon s'écrit dans le plan  $(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y)$ . Nous supposons que la polarisation



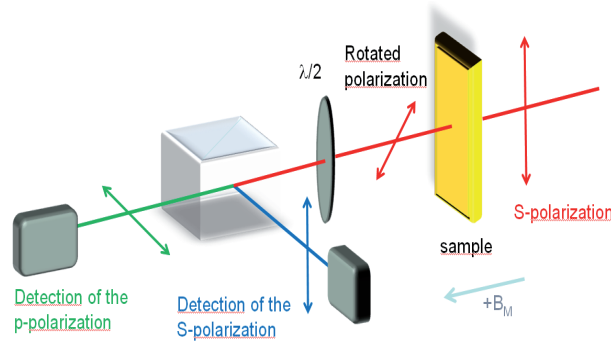


FIG. 3.10 – Schéma du montage expérimental permettant de mesurer la rotation du champ électrique rayonné par l'échantillon en fonction du délai pompe-sonde. Pour mesurer l'ellipticité, il faut ajouter une lame quart d'onde avant la lame demi-onde.

du champ rayonné linéairement est elliptique d'angle  $\epsilon_S$  et tournée d'un angle  $\alpha_S$  en présence d'un champ magnétique. La polarisation du champ rayonné à l'ordre trois est elliptique d'angle  $\epsilon$  et tournée d'un angle  $\alpha$ .

$$\mathbf{E}^{(1)}(t) = \begin{vmatrix} E_x^{(1)}(t) \\ E_y^{(1)}(t) \end{vmatrix} = E^{(1)}(t) \begin{vmatrix} \cos[\alpha_S(t)] \cos[\epsilon_S(t)] - \imath \sin[\alpha_S(t)] \sin[\epsilon_S(t)] \\ \sin[\alpha_S(t)] \cos[\epsilon_S(t)] + \imath \cos[\alpha_S(t)] \sin[\epsilon_S(t)] \end{vmatrix} \quad (3.58)$$

$$\mathbf{E}^{(3)}(t, \tau) = \begin{vmatrix} E_x^{(3)}(t, \tau) \\ E_y^{(3)}(t, \tau) \end{vmatrix} = E^{(3)}(t, \tau) \begin{vmatrix} \cos[\alpha(t, \tau)] \cos[\epsilon(t, \tau)] - \imath \sin[\alpha(t, \tau)] \sin[\epsilon(t, \tau)] \\ \sin[\alpha(t, \tau)] \cos[\epsilon(t, \tau)] + \imath \cos[\alpha(t, \tau)] \sin[\epsilon(t, \tau)] \end{vmatrix} \quad (3.59)$$

*Cas de la mesure de la rotation dans la configuration pompe-sonde*

Expérimentalement, avec un pont de polarisation nous accédons à la rotation en plaçant une lame demi-onde à un angle  $\frac{\pi}{8}$  ce qui correspond à la matrice de Jones suivante :

$$M_{\lambda/2} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix} \quad (3.60)$$

Calculons  $\Sigma^{(3)} = M_{\lambda/2} \cdot \mathbf{E}^{(3)}$  et l'intensité correspondante détectée sur chacun des bras du pont de polarisation. Notons également  $\Sigma^{(1)} = M_{\lambda/2} \cdot \mathbf{E}^{(1)}$  :

$$\begin{aligned} I_x^{(3)}(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} |\Sigma_x^{(3)}(t, \tau) + \Sigma_x^{(1)}(t)|^2 dt \\ I_y^{(3)}(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} |\Sigma_y^{(3)}(t, \tau) + \Sigma_x^{(1)}(t)|^2 dt \\ I_x^{(1)} &= \int_{-\infty}^{+\infty} |\Sigma_x^{(1)}(t)|^2 dt \\ I_y^{(1)} &= \int_{-\infty}^{+\infty} |\Sigma_y^{(1)}(t)|^2 dt \end{aligned} \quad (3.61)$$

En réalité, le temps d'intégration du détecteur ne s'étend pas de  $t = -\infty$  à  $t = +\infty$  mais est fixé par l'opérateur à quelques centaines de millisecondes. Ce temps est effectivement très grand devant les temps caractéristiques d'évolution du signal  $|\Sigma_x^{(3)}(t, \tau)|^2$  et

$|\Sigma_x^{(1)}(t, \tau)|^2$  évoluant à l'échelle de la femtoseconde et de la centaine de picosecondes. Nous notons  $2T$  la durée d'intégration du détecteur en présence de la pompe, et  $2T$  la durée d'intégration du détecteur lorsque la pompe est obturée. Par le principe de la détection synchrone (cf chapitre 5), le signal mesuré par chaque photodiode correspond à l'intensité mesurée avec la pompe et à l'intensité mesurée sans la pompe. Nous mesurons ainsi  $S_x$  et  $S_y$  sur chacune des deux photodiodes correspondant à la mesure du champ émis pour les directions de polarisation  $\mathbf{e}_x$  et  $\mathbf{e}_y$  :

$$\begin{aligned} S_x(\tau) &= I_x^{(3)}(\tau) - I_x^{(1)} \\ S_y(\tau) &= I_y^{(3)}(\tau) - I_y^{(1)} \end{aligned} \quad (3.62)$$

Enfin, le signal de rotation  $S$  que nous détectons expérimentalement est la différence des signaux  $S_x$  et  $S_y$ .  $\alpha$  correspond à la rotation de la polarisation par rapport à l'axe x.

$$\begin{aligned} S(\tau) &= S_x(\tau) - S_y(\tau) \\ &= \int_{-T}^{+T} 2\Re[E^{(3)}(t, \tau)E^{*(1)}(t)] \sin[\alpha(t, \tau) + \alpha_S(t)] \cos[\epsilon(t, \tau) + \epsilon_S(t)] dt \\ &\quad + \int_{-T}^{+T} |E^{(3)}(t, \tau)|^2 \sin[2\alpha(t, \tau)] \cos[2\epsilon(t, \tau)] dt \\ &\simeq \int_{-T}^{+T} 2\Re[E^{(3)}(t, \tau)E^{*(1)}(t)] \sin[\alpha(t, \tau) + \alpha_S(t)] \cos[\epsilon(t, \tau) + \epsilon_S(t)] dt \end{aligned} \quad (3.63)$$

Le signal d'ordre un aussi appelé "statique" vaut :

$$\begin{aligned} S^{(1)} &= I_x^{(1)} - I_y^{(1)} \\ &= \int_{-T}^{+T} |E^{(1)}(t)|^2 \sin[2\alpha_S(t)] \cos[2\epsilon_S(t)] dt \end{aligned} \quad (3.64)$$

*Cas de la mesure de l'ellipticité dans la configuration pompe-sonde*

Afin de retrouver l'angle d'ellipticité  $\epsilon$  expérimentalement, effectuons le même calcul que pour la rotation en ajoutant une lame quart d'onde dont les axes propres sont parallèles à x et y :

$$M_{\lambda/4} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -i \end{pmatrix} \quad (3.65)$$

Calculons :  $\Sigma^{(3)} = M_{\lambda/2} \cdot M_{\lambda/4} \cdot \mathbf{E}^{(3)}$  et l'intensité correspondante. Notons  $\Sigma^{(1)} = M_{\lambda/2} \cdot$

$M_{\lambda/4} \cdot \mathbf{E}^{(1)}$ . De la même manière que précédemment nous définissons le signal  $S$  :

$$\begin{aligned}
I_x^{(3)}(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} |\Sigma_x^{(3)}(t, \tau) + \Sigma_x^{(1)}(t)|^2 dt \\
I_y^{(3)}(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} |\Sigma_y^{(3)}(t, \tau) + \Sigma_x^{(1)}(t)|^2 dt \\
I_x^{(1)} &= \int_{-\infty}^{+\infty} |\Sigma_x^{(1)}(t)|^2 dt \\
I_y^{(1)} &= \int_{-\infty}^{+\infty} |\Sigma_y^{(1)}(t)|^2 dt
\end{aligned} \tag{3.66}$$

Le signal différentiel sur chaque bras du pont de polarisation vaut :

$$\begin{aligned}
S_x(\tau) &= I_x^{(3)}(\tau) - I_x^{(1)} \\
S_y(\tau) &= I_y^{(3)}(\tau) - I_y^{(1)}
\end{aligned} \tag{3.67}$$

Le signal d'ellipticité  $S$  vaut :

$$\begin{aligned}
S(\tau) &= S_x(\tau) - S_y(\tau) \\
&= \int_{-T}^{+T} 2\Re[E^{(3)}(t, \tau)E^{*(1)}(t)] \sin[\epsilon(t, \tau) + \epsilon_S(t)] \cos[\alpha(t, \tau) - \alpha_S(t)] dt \\
&+ \int_{-T}^{+T} \sin[2\epsilon(t, \tau)] |E^{(3)}(t, \tau)|^2 dt \\
&\simeq \int_{-T}^{+T} 2\Re[E^{(3)}(t, \tau)E^{*(1)}(t)] \sin[\epsilon(t, \tau) + \epsilon_S(t)] \cos[\alpha(t, \tau) - \alpha_S(t)] dt
\end{aligned} \tag{3.68}$$

Ici le signal d'ordre un, "statique", vaut :

$$\begin{aligned}
S^1 &= I_x^{(1)} - I_y^{(1)} \\
&= \int_{-T}^{+T} |E^{(1)}(t)|^2 \sin[2\epsilon_S(t)] dt
\end{aligned} \tag{3.69}$$

### *Contribution magnéto-optique dans une mesure pompe-sonde*

En général ces expressions se simplifient pour des angles  $\alpha$  et  $\epsilon$  petits. Par ailleurs, pour extraire la contribution magnéto-optique du signal  $S(\tau)$ , celui-ci est mesuré à  $+H$  et à  $-H$  : nous le notons alors respectivement  $S_{+H}(\tau)$  et  $S_{-H}(\tau)$ . Nous considérons que :

$$\begin{aligned}
\alpha_{+H} &= -\alpha_{-H} && \text{noté } \alpha \\
\epsilon_{+H} &= -\epsilon_{-H} && \text{noté } \epsilon \\
\alpha_{S,+H} &= -\alpha_{S,-H} && \text{noté } \alpha_S \\
\epsilon_{S,+H} &= -\epsilon_{S,-H} && \text{noté } \epsilon_S
\end{aligned} \tag{3.70}$$

Etudions le signal magnéto-optique :

$$S_{MO}(\tau) = \frac{S_{+H}(\tau) - S_{-H}(\tau)}{S_{+H}^1 - S_{-H}^1} \quad (3.71)$$

Le signal magnéto-optique pour la rotation vaut :

$$S_{MO}(\tau) = \frac{\Delta\theta}{\theta} = \frac{1}{\int_{-T}^{+T} [|E_{+H}^{(1)}(t)|^2 + |E_{-H}^{(1)}(t)|^2] \sin[2\alpha_S(t)] \cos[2\epsilon_S(t)] dt} \quad (3.72)$$

$$\times \int_{-T}^{+T} 2\Re[E_{+H}^{(3)}(t, \tau) E_{+H}^{*(1)}(t) + E_{-H}^{(3)}(t, \tau) E_{-H}^{*(1)}(t)]$$

$$\times \sin[\alpha(t, \tau) + \alpha_S(t)] \cos[\epsilon(t, \tau) + \epsilon_S(t)] dt$$

Par exemple, les courbes 3a de la publication [6] sont la mesure de  $S_{MO}(\tau)$  pour un échantillon de Nickel. Le signal magnéto-optique pour l'ellipticité vaut :

$$S_{MO}(\tau) = \frac{\Delta\epsilon}{\epsilon} = \frac{1}{\int_{-T}^{+T} [|E_{+H}^{(1)}(t)|^2 + |E_{-H}^{(1)}(t)|^2] \sin[2\epsilon_S(t)] dt} \quad (3.73)$$

$$\times \int_{-T}^{+T} 2\Re[E_{+H}^{(3)}(t, \tau) E_{+H}^{*(1)}(t) + E_{-H}^{(3)}(t, \tau) E_{-H}^{*(1)}(t)]$$

$$\times \sin[\epsilon(t, \tau) + \epsilon_S(t)] \cos[\alpha(t, \tau) - \alpha_S(t)] dt$$

*Cas de la mesure de la rotation dans la configuration en réseau transitoire à trois faisceaux*

$$S(\tau) = S_x(\tau) - S_y(\tau) \quad (3.74)$$

$$= I_x^{(3)}(\tau) - I_y^{(3)}(\tau)$$

$$= \int_{-T}^{+T} |E^{(3)}(t, \tau)|^2 \sin[2\alpha(t, \tau)] \cos[2\epsilon(t, \tau)] dt$$

*Cas de la mesure de l'ellipticité dans la configuration en réseau transitoire à trois faisceaux*

$$S(\tau) = S_x(\tau) - S_y(\tau) \quad (3.75)$$

$$= I_x^{(3)}(\tau) - I_y^{(3)}(\tau)$$

$$= \int_{-T}^{+T} |E^{(3)}(t, \tau)|^2 \sin[2\epsilon(t, \tau)] dt$$

*Contribution magnéto-optique dans une mesure en configuration de réseau transitoire à trois faisceaux*

Le signal magnéto-optique n'est cette fois-ci pas normalisé par le signal magnéto-optique "statique" inexistant dans cette configuration. Le signal magnéto-optique s'écrit :

$$S_{MO}(\tau) = S_{+H}(\tau) - S_{-H}(\tau) \quad (3.76)$$

Le signal magnéto-optique pour la rotation vaut :

$$S_{MO}(\tau) = \Delta\theta = \int_{-T}^{+T} [|E_{+H}^{(3)}(t, \tau)|^2 + |E_{-H}^{(3)}(t, \tau)|^2] \sin[2\alpha(t, \tau)] \cos[2\epsilon(t, \tau)] dt \quad (3.77)$$

Le signal magnéto-optique pour l'ellipticité vaut :

$$S_{MO}(\tau) = \Delta\epsilon = \int_{-T}^{+T} [|E_{+H}^{(3)}(t, \tau)|^2 + |E_{-H}^{(3)}(t, \tau)|^2] \sin[2\epsilon(t, \tau)] dt \quad (3.78)$$

### Tableau récapitulatif des mesures magnéto-optiques

En fonction du champ rayonné aux ordres 1 et 3, de l'ellipticité et de la rotation, statiques et dynamiques, nous pouvons récapituler l'expression des signaux magnéto-optiques mesurés dans la configuration pompe-sonde et dans la configuration à trois impulsions :

Pompe - sonde	$\frac{\Delta\theta}{\theta} =$	$\frac{2}{\int_{-T}^{+T} [ E_{+H}^{(1)}(t) ^2 +  E_{-H}^{(1)}(t) ^2] \sin[2\epsilon_S(t)] dt}$ $\times \int_{-T}^{+T} \Re[E_{+H}^{(3)}(t, \tau) E_{+H}^{*(1)}(t) + E_{-H}^{(3)}(t, \tau) E_{-H}^{*(1)}(t)]$ $\times \sin[\epsilon(t, \tau) + \epsilon_S(t)] \cos[\alpha(t, \tau) - \alpha_S(t)] dt$
	$\frac{\Delta\epsilon}{\epsilon} =$	$\frac{2}{\int_{-T}^{+T} [ E_{+H}^{(1)}(t) ^2 +  E_{-H}^{(1)}(t) ^2] \sin[2\epsilon_S(t)] dt}$ $\times \int_{-T}^{+T} \Re[E_{+H}^{(3)}(t, \tau) E_{+H}^{*(1)}(t) + E_{-H}^{(3)}(t, \tau) E_{-H}^{*(1)}(t)]$ $\times \sin[\epsilon(t, \tau) + \epsilon_S(t)] \cos[\alpha(t, \tau) - \alpha_S(t)] dt$
3 impulsions	$\Delta\theta =$	$\int_{-T}^{+T} [ E_{+H}^{(3)}(t, \tau) ^2 +  E_{-H}^{(3)}(t, \tau) ^2] \sin[2\alpha(t, \tau)] \cos[2\epsilon(t, \tau)] dt$
	$\Delta\epsilon =$	$\int_{-T}^{+T} [ E_{+H}^{(3)}(t, \tau) ^2 +  E_{-H}^{(3)}(t, \tau) ^2] \sin[2\epsilon(t, \tau)] dt$

# Chapitre 4

## Résultats de la modélisation numérique

### 4.1 Introduction

Dans la littérature, la polarisation magnéto-optique à l'ordre trois dans une expérience pompe-sonde a déjà été calculée pour un système discret : le semi-conducteur GaAs. Les auteurs ont modélisé spectralement l'angle de rotation Kerr au 3<sup>e</sup> ordre, sans toutefois considérer plus en détail les effets cohérents [83]. Dans le système semi-conducteur  $CdTe/Cd_{0.78}Mg_{0.22}Te$ , Versluis et al. ont modélisé la rotation Kerr ultra-rapide pour des durées d'impulsions de l'ordre de la picoseconde [84]. D'autres travaux ont plutôt souligné l'importance des effets de déphasage de la polarisation sur la précession dans des semi-conducteurs dopés avec Mn [85]. Des travaux très récents de Kapetanakis et al. ont étudié les processus cohérents de retournement d'aimantation dans le semi-conducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As [86] ; notre travail se situe donc au cœur d'un domaine de recherche qui est en train de prendre son essor : il s'agit de l'étude de la dynamique d'aimantation ultra-rapide cohérente aux temps courts.

Nous présenterons dans ce chapitre les résultats des modélisations dont la théorie a été décrite aux chapitres 2 et 3, dans le cas de la configuration pompe-sonde et de la configuration à trois faisceaux. Nous détaillerons d'abord le cas de l'interaction spin-orbite forte par rapport à l'interaction Zeeman puis nous comparerons les signaux magnéto-optiques d'ordre trois à la dynamique d'aimantation d'ordre deux. Dans une seconde partie nous traiterons de manière similaire le cas de l'interaction spin-orbite faible. Enfin, la partie expérimentale sera illustrée avec des résultats liés à la configuration en réseau transitoire à trois faisceaux.

Rappelons l'Hamiltonien d'interaction étudié où  $\mathbf{\Pi} = \mathbf{p} - q\mathbf{A}_M + \frac{q}{2mc^2}\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i$  :

$$H_{int} = -\frac{q}{m}\mathbf{\Pi} \cdot \mathbf{A}_L - \frac{q}{2m^2c^2}[\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \mathbf{E}_L$$

Sauf mention contraire, nous avons considéré les paramètres suivants :

Temps de vie des populations	$T_1=100$ fs
Temps de vie des cohérences	$T_2=10$ fs
Polarisation du champ incident	linéaire selon $\mathbf{e}_x$
Durée de la sonde	10 fs
Durée de la pompe	10 fs
Champ électrique sonde	$4 * 10^6$ V.m <sup>-1</sup>
Champ électrique pompe	$4 * 10^7$ V.m <sup>-1</sup>
B	1T dans la configuration "en champ magnétique fort" 0.05T dans la configuration "en champ magnétique faible"
Interaction $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_L$	non-nulle
Interaction $\frac{q^2}{m} \mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A}_L$	non-nulle
Interaction $\frac{-q^2}{2mc^2} (\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i) \cdot \mathbf{E}_L$	non-nulle
Interaction $\frac{-q}{2m^2c^2} (\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}) \cdot \mathbf{E}_L$	notée $H_\beta$ ,
	nulle dans les courbes "sans terme de Foldy-Wouthuysen"

Les termes de "pump-polarization coupling" et de "pump-perturbed free induction decay" sont notés PPC et PPFID dans les légendes des courbes. Nous les désignerons aussi par "termes cohérents".

Le terme "Signal total" désigne la quantité que l'on mesurerait expérimentalement dans la configuration pompe-sonde. En effet, la quantité mesurée expérimentalement n'est pas la somme des intensités de  $I_{populations}$ ,  $I_{PPC}$  et  $I_{PPFID}$  mais  $|E_{populations} + E_{PPC} + E_{PPFID}|^2$  : des termes d'interférence peuvent intervenir.

Le terme spin-orbite issu du développement de Foldy-Wouthuysen sera désigné par "FW" dans les graphiques. Le champ magnétique appliqué, précédemment noté  $\pm B_M$  sera noté  $\pm B$ .

## 4.2 Résultats numériques pour la configuration pompe-sonde en champ magnétique faible

Les paramètres de modélisation en champ faible sont :

Pulsation laser sans désaccord	$\omega_L = \omega_0$
Énergie d'un photon sans désaccord	$\hbar\omega_L = 1.89eV$
Pulsation laser avec désaccord	$\omega_L = 0.8\omega_0$
Énergie d'un photon avec désaccord	$\hbar\omega_L = 1.51eV$
B	$\pm 0.05$ Tesla

Nous notons  $\omega_0$  la pulsation associée à la transition  $2s_{j=1/2} \rightarrow 3p_{j=1/2}$  en champ magnétique nul.

### 4.2.1 Intensité du signal rayonné en fonction du désaccord

Nous avons calculé l'intensité rayonnée à partir de la polarisation d'ordre 3 orientée selon  $e_x$ . Elle est calculée à la figure 4.1 pour le terme de population, pour les termes cohérents et pour le signal total. Le terme de population est régi par une décroissance exponentielle dépendant de  $T_1$  tandis que  $T_2$  et la durée de l'impulsion contribuent à la dynamique des termes cohérents. Hors résonance, les termes cohérents augmentent par rapport au terme de population : un "pic cohérent" apparaît dans le signal total aux délais courts. Ce résultat est bien connu pour l'intensité : il s'agit d'une première validation de nos modélisations.

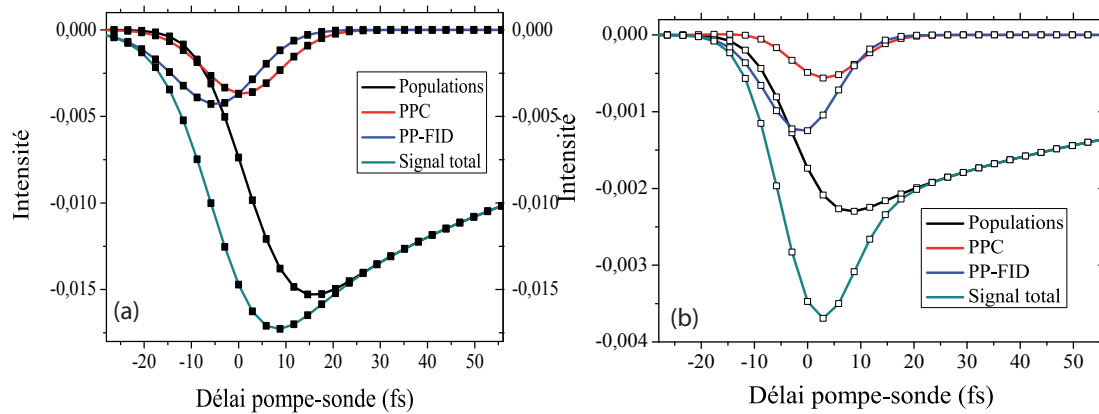


FIG. 4.1 – Intensité selon  $e_x$  calculée (a) : sans désaccord, (b) : avec désaccord. Les lignes continues sont obtenues pour  $+B$  et les carrés pour  $-B$ .

### 4.2.2 Effet de l'interaction issue du développement de Foldy-Wouthuysen

Nous avons également calculé l'effet de l'interaction  $H_\beta$  due au terme spin-orbite issu du développement de Foldy-Wouthuysen. Nous constatons que celui-ci n'a pas d'effet sur l'ellipticité dans le modèle à huit niveaux en champ fort avec un désaccord de 20 % (figure 4.2).



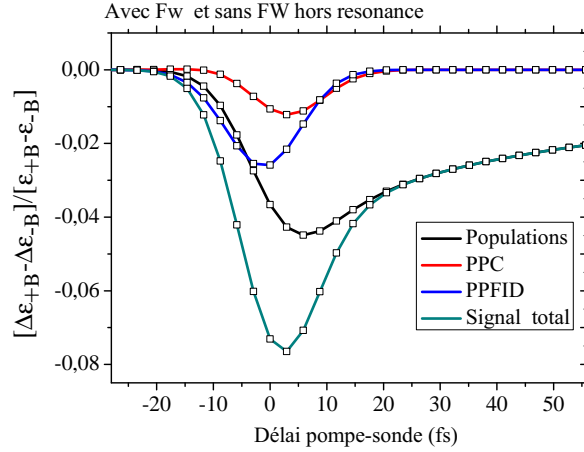


FIG. 4.2 – Ellipticité calculée pour le terme de population et pour les termes cohérents. En traits pleins : avec l’interaction spin-orbite du laser provenant de la transformation de Foldy-Wouthuysen. Carrés : sans ce terme d’interaction.

### 4.2.3 Effet de la largeur des niveaux et du désaccord sur le signal magnéto-optique

La largeur effective des niveaux est  $\Delta E = \frac{\hbar}{T_2} = \frac{6.63 \cdot 10^{-34}}{10^{-14}} = 0.4 \text{ eV}$  or le désaccord maximal que nous avons choisi est de  $0.2 \cdot 1.89 \text{ eV} = 0.38 \text{ eV}$  : toutes les transitions entre les 8 niveaux du système sont possibles malgré le désaccord du laser. Quelle est la réponse du système dans le cas où la largeur des niveaux est plus étroite ? Pour répondre à cette question, nous avons étudié la réponse magnéto-optique lorsque  $T_2 = 50 \text{ fs}$  i.e.  $\Delta E = 8 \cdot 10^{-2} \text{ eV}$ .

**Pour un désaccord nul**, des impulsions de 10 fs, et une durée de vie des cohérences de 50 fs, nous obtenons l’intensité tracée à la figure 4.3.b. Nous constatons que le terme de pump-perturbed free induction decay reflète la dynamique due à  $T_2$  tandis que le terme de pump-polarization coupling est caractérisé par la durée de l’impulsions.

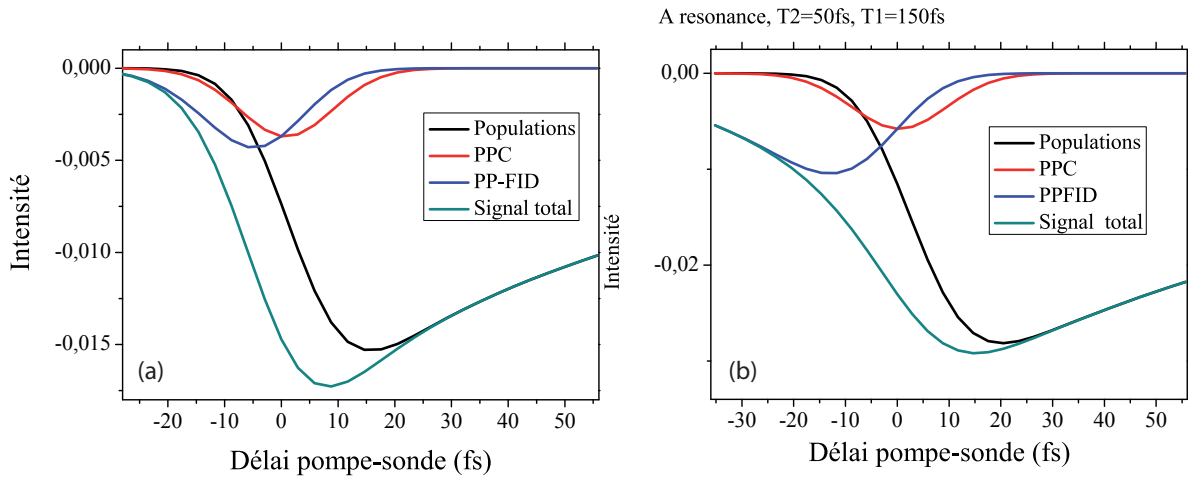


FIG. 4.3 – A résonance, intensité pour  $T_2 = 10 \text{ fs}$  et  $T_1=100 \text{ fs}$  (courbe a).  $T_2 = 50 \text{ fs}$  et  $T_1=150 \text{ fs}$  (courbe b). Durée d’impulsion : 10 fs.

Nous obtenons le signal magnéto-optique présenté dans les figures 4.4 et 4.5.

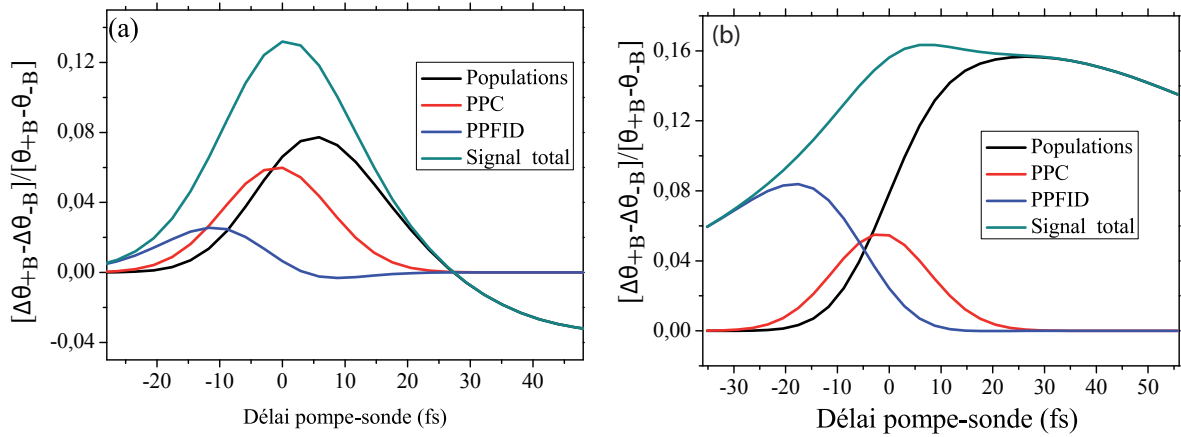


FIG. 4.4 – A résonance, rotation magnéto-optique pour  $T_2 = 10$  fs et  $T_1=100$  fs (courbe a).  $T_2 = 50$  fs et  $T_1=150$  fs (courbe b). Durée d'impulsion : 10 fs.

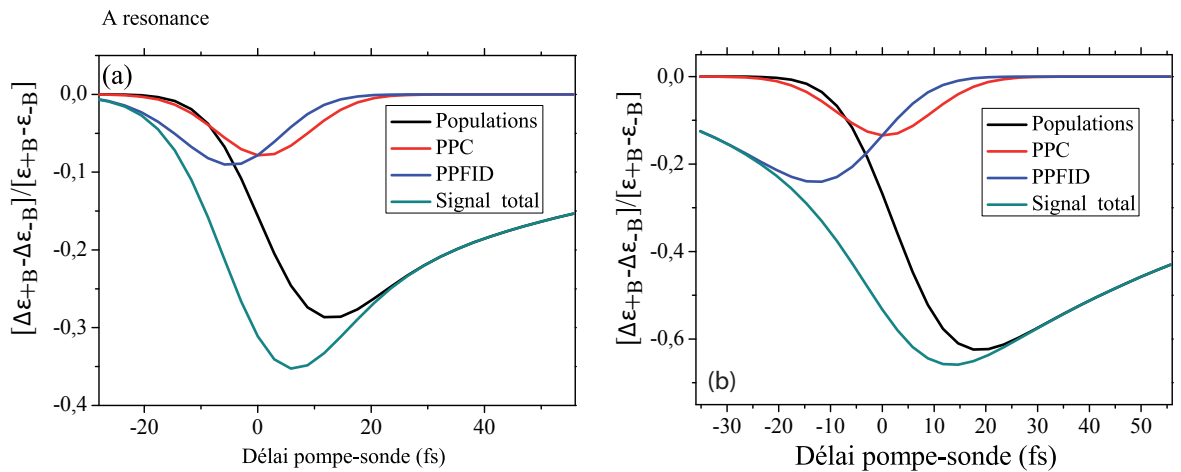


FIG. 4.5 – A résonance, ellipticité magnéto-optique pour  $T_2 = 10$  fs et  $T_1=100$  fs (courbe a).  $T_2 = 50$  fs et  $T_1=150$  fs (courbe b). Durée d'impulsion : 10 fs.

**Pour un désaccord de 20 % (0.38 eV)**, des impulsions de 10 fs et une durée de vie des cohérences de 50 fs, nous obtenons l'intensité tracée à la figure 4.6.b. Nous constatons que, hors résonance, la contribution cohérente au signal magnéto-optique augmente. Un pic apparaît dans le signal total aux temps courts. Par exemple, l'ellipticité magnéto-optique est affectée par les termes de "pump-perturbed free induction decay" et de "pump-polarization coupling". Nous constatons que l'intensité rayonnée diminue car le transfert d'énergie est moins efficace dans cette configuration. Le désaccord effectif entre la pulsation du laser et les niveaux croît, d'où l'augmentation du terme de PPFID par rapport au terme de population. La durée des termes cohérents est due non-seulement à la durée des impulsions, mais aussi à la valeur de  $T_2$  par rapport au désaccord.

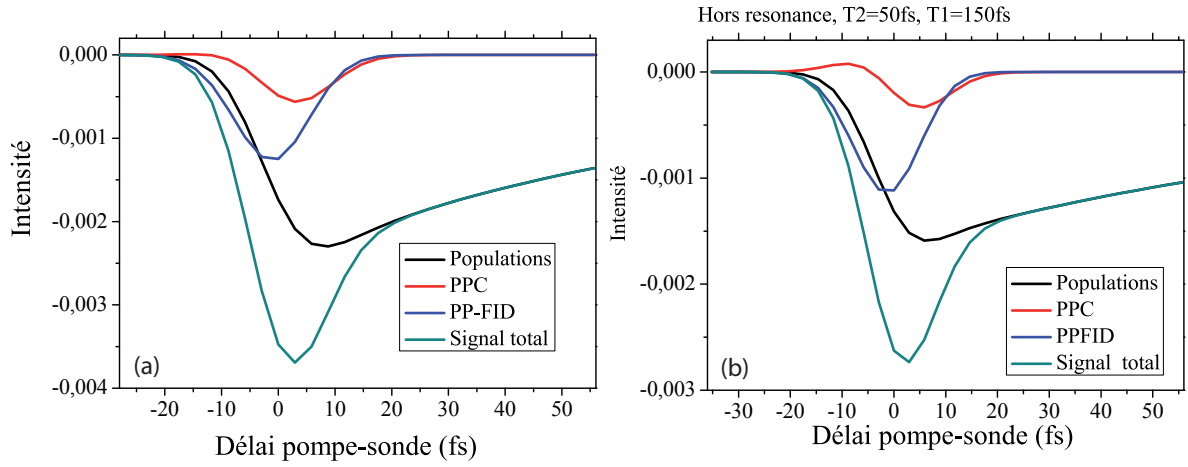


FIG. 4.6 – Hors résonance, intensité pour  $T_2 = 10$  fs et  $T_1=100$  fs (courbe a).  $T_2 = 50$  fs et  $T_1=150$  fs (courbe b). Durée d’impulsion : 10 fs.

Nous obtenons l’ellipticité magnéto-optique présentée dans la figure 4.7.

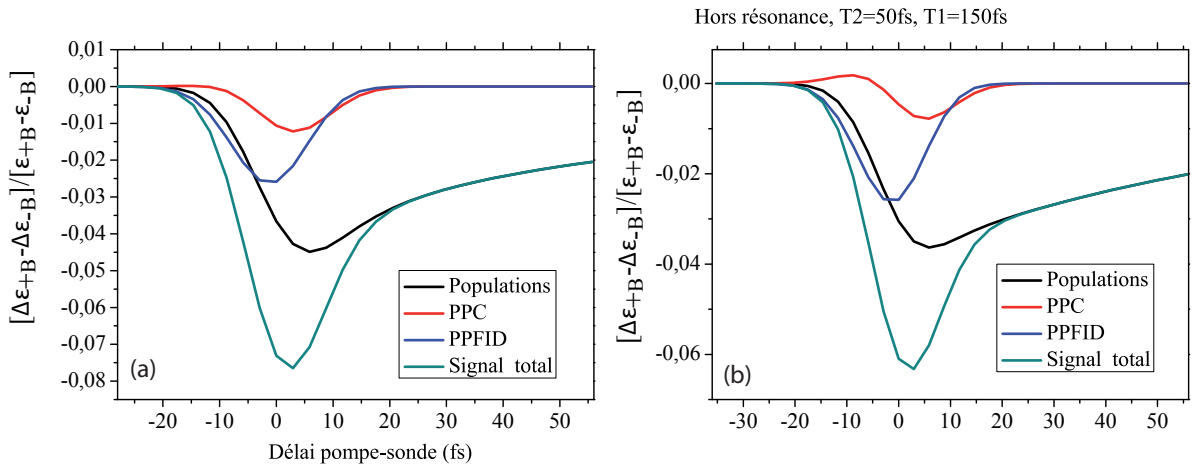


FIG. 4.7 – Hors résonance, ellipticité magnéto-optique pour  $T_2 = 10$  fs et  $T_1=100$  fs (courbe a).  $T_2 = 50$  fs et  $T_1=150$  fs (courbe b). Durée d’impulsion : 10 fs.

#### 4.2.4 Dynamique de l'aimantation en champ magnétique faible

Nous avons calculé la dynamique de  $\mathbf{J}$ ,  $\mathbf{S}$  et  $\mathbf{L}$  aux ordres 1, 2 et 3 en perturbation : seul les valeurs à l'ordre 2 de  $J_z, S_z, L_z, J^2, S^2$  et  $L^2$  sont non-nulles. Cela signifie que dans notre modèle simple, les cohérences de la matrice densité ne contribuent pas à la dynamique des spins : seuls les populations de la matrice densité interviennent ici. Dans cette section, nous ne considérerons donc que les séquences à deux impulsions.

La dynamique de l'aimantation issue de la séquence d'impulsions  $\epsilon_p(t)\epsilon_p^*(t) + \epsilon_p^*(t)\epsilon_p(t)$  ne dépend pas du délai pompe-sonde. Nous représentons les expressions 4.1 en fonction de  $t$  à la figure 4.8(a,b) pour le terme de populations. Nous constatons que leur décroissance exponentielle dépend du temps caractéristique  $T_1$ . Les amplitude de variation de  $S_z$  et  $L_z$  sont identiques.

$$\begin{aligned} \langle S_z^{(2)}(t) \rangle &= Tr[\rho^{(2)}(t)S_z] \\ \langle L_z^{(2)}(t) \rangle &= Tr[\rho^{(2)}(t)L_z] \end{aligned} \quad (4.1)$$

Les dynamiques de l'aimantation issues des séquences d'impulsions  $\epsilon_s(t, \tau)\epsilon_p^*(t)$  et  $\epsilon_p^*(t)\epsilon_s(t, \tau)$  dépendent du délai pompe-sonde  $\tau$  et de  $t$ . Nous tracerons leur valeur intégrée sur le temps  $t$ . Leurs dynamiques dépendent de la durée de vie des cohérences  $T_2 = 10$  fs, des populations  $T_1 = 100$  fs et de la durée des impulsions valant 10 fs.

$$\begin{aligned} \langle S_z^{(2)}(\tau) \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt Tr[\rho^{(2)}(t, \tau)S_z] \\ \langle L_z^{(2)}(\tau) \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt Tr[\rho^{(2)}(t, \tau)L_z] \\ \langle S^2^{(2)}(\tau) \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt Tr[\rho^{(2)}(t, \tau)S^2] \\ \langle J^2^{(2)}(\tau) \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt Tr[\rho^{(2)}(t, \tau)J^2] \\ \langle L^2^{(2)}(\tau) \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt Tr[\rho^{(2)}(t, \tau)L^2] \end{aligned} \quad (4.2)$$

Nous avons calculé les dynamiques de  $S_z$  et  $L_z$  représentées à la figure 4.8(c,d,e,f) obtenues pour les termes de pump-polarization coupling et de pump-perturbed free induction decay. Pour visualiser le terme de pump-perturbed free induction decay, il suffit d'inverser le délai pompe-sonde  $\tau$  en  $-\tau$ .  $\langle S_z^{(2)} \rangle$  et  $\langle L_z^{(2)} \rangle$  possèdent une composante imaginaire non nulle car ils sont générés par les impulsions  $\epsilon_{pompe}^*$  et  $\epsilon_{sonde}$ . Pour obtenir des quantités réelles nous aurions aussi dû considérer les composantes générées par  $\epsilon_{pompe}$  et  $\epsilon_{sonde}^*$  qui ne sont pas incluses dans la configuration pompe-sonde. Contrairement aux courbes calculées dans le cas du champ magnétique fort, il n'y a pas ici de décalage temporel entre le moment de spin et le moment orbital.

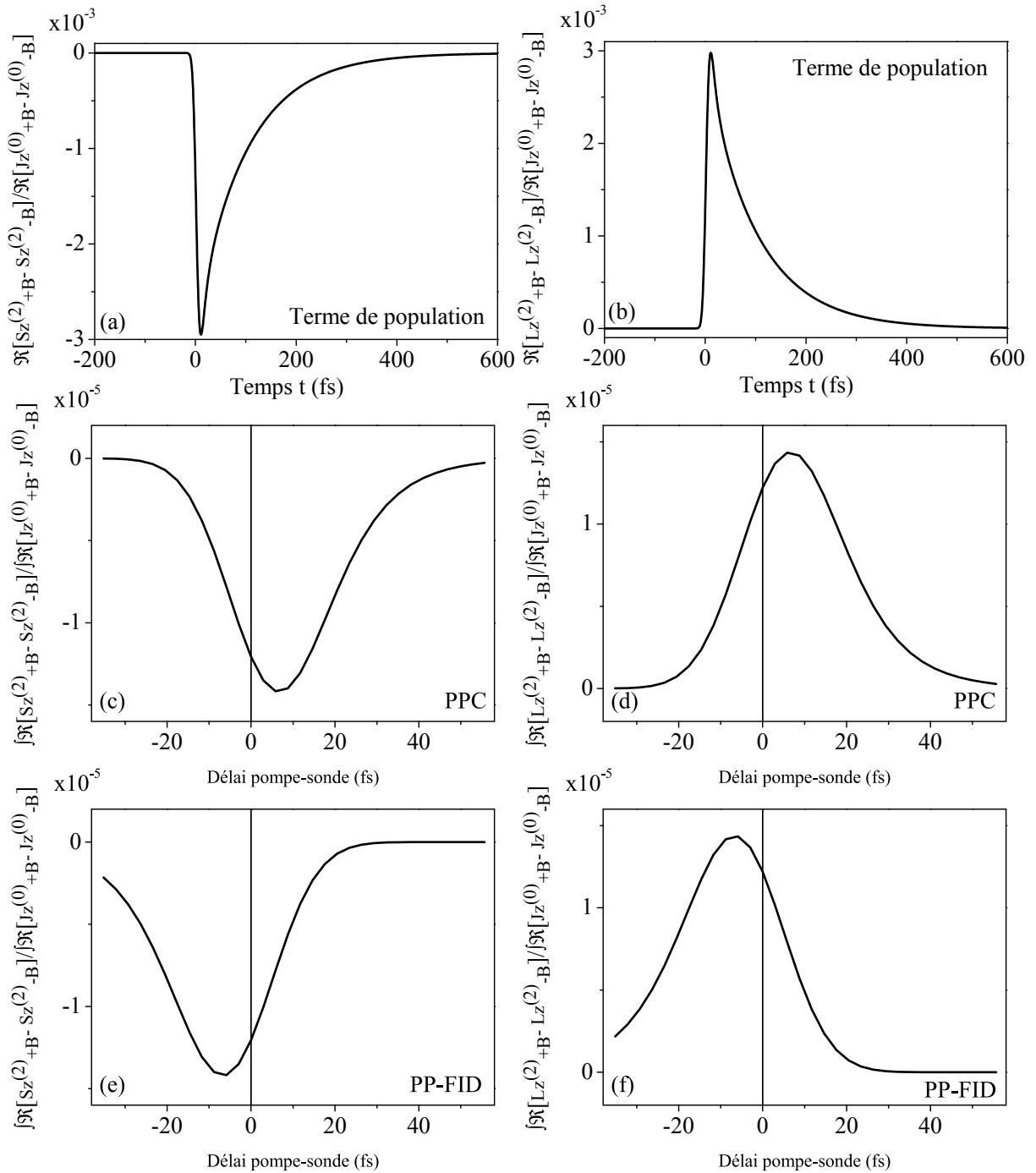


FIG. 4.8 – Moment orbital (colonne de droite) et moment de spin (colonne de gauche) pour les trois séquences pompe-sonde. Pour le terme de population, les figures a et b ne dépendent pas du délai pompe-sonde, elles sont tracées en fonction de  $t$ . Terme de pump-polarization coupling : figures c et d. Terme de pump-perturbed free-induction decay : figures e et f. Les courbes c, d, e, f sont tracées en fonction du délai pompe-sonde  $\tau$  : elles sont intégrées sur  $t$ .

Les dynamiques de  $S^2$ ,  $J^2$  et  $L^2$  sont représentées à la figure 4.9 pour le terme de pump-perturbed free induction decay. Seules les dynamiques de  $J^2$  et  $L^2$  sont non nulles comme cela est prévisible de par la structure des niveaux choisie.

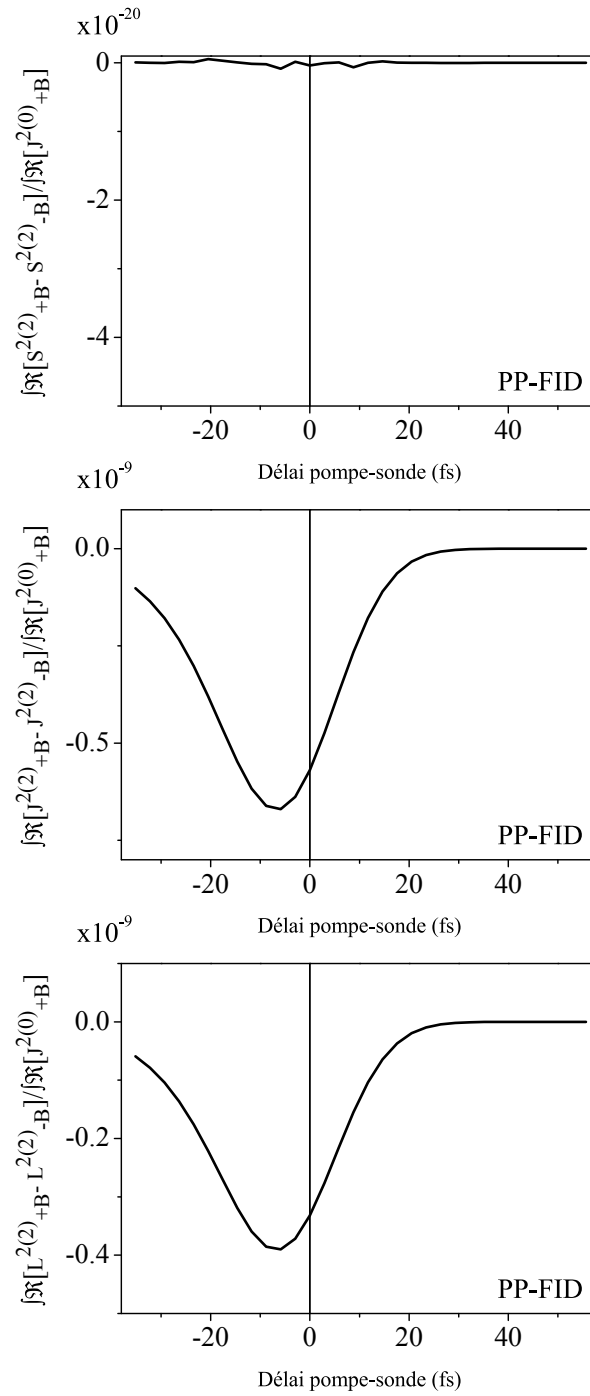


FIG. 4.9 – Dynamique normalisée de  $S^2$ ,  $J^2$  et  $L^2$  pour le terme de pump-perturbed free induction decay.

Il n'y a pas d'effet du terme d'interaction issu du développement de Foldy-Wouthuysen sur la dynamique d'aimantation dans cette configuration en champ magnétique faible.

## 4.3 Résultats numériques pour la configuration pompe-sonde en champ fort

### 4.3.1 Effet magnéto-optiques des termes relativistes supplémentaires issus du développement de Foldy-Wouthuysen

Nous avons calculé la réponse magnéto-optique du système à l'ordre trois en prenant en compte l'interaction de Foldy-Wouthuysen. Les courbes obtenues pour l'intensité sont tracées à la figure 4.10. La rotation et l'ellipticité mesurées par la technique du pont de polarisation sont représentées à la figure 4.11. Nous constatons que dans ce modèle simple à un électron, le signal magnéto-optique n'est que très faiblement affecté par les termes supplémentaires d'interaction.

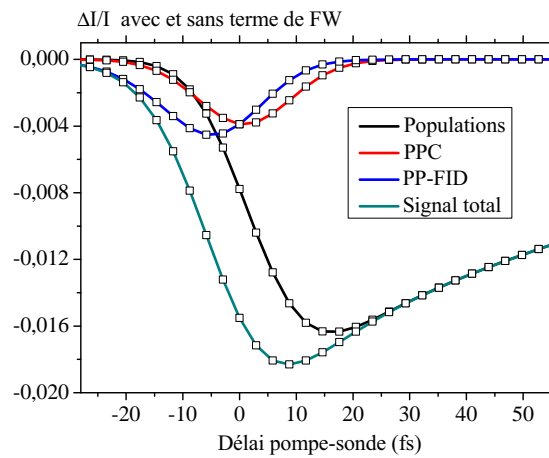


FIG. 4.10 – Intensité totale mesurée à  $+B$  à partir de la polarisation rayonnée selon  $x$ , parallèlement à la polarisation incidente. Traits pleins : avec le terme de Foldy-Wouthuysen. Carrés : sans le terme de Foldy-Wouthuysen.

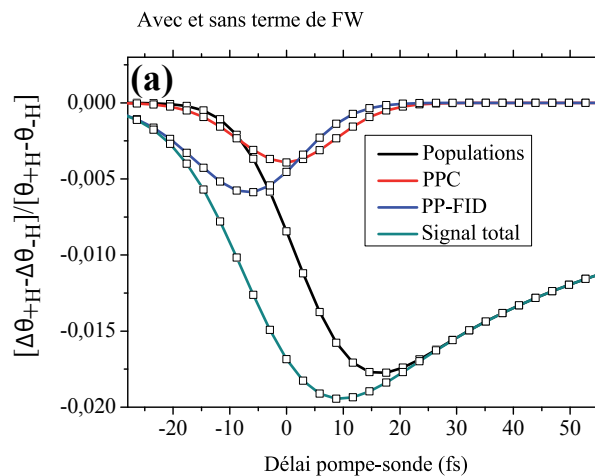


FIG. 4.11 – Rotation magnéto-optique. Traits pleins : avec le terme de Foldy-Wouthuysen. Carrés : sans le terme de Foldy-Wouthuysen. Nous constatons que dans ce modèle la rotation n'est pas affectée par le terme de Foldy-Wouthuysen.

### 4.3.2 Etude de l'intensité, de la rotation et de l'ellipticité à différents délais pompe-sonde

Pour les courbes présentées ci-dessous, nous avons choisi de modifier l'accord de la pulsation laser par rapport à la transition I-IV en champ magnétique nul. Les paramètres numériques utilisés sont les suivants :

Pulsation laser sans désaccord	$\omega_L = \omega_{IV-I}^{B=0T}$
Pulsation laser avec désaccord	$\omega_L = 0.8\omega_{4IV-I}^{B=0T}$

#### Intensité en fonction du désaccord

Nous avons considéré l'intensité correspondant au champ rayonné avec une polarisation selon  $e_x$  pour deux sens du champ magnétique statique B. Nous avons calculé l'intensité obtenue avec un désaccord nul et avec un désaccord de 20 % à la figure 4.12. Nous constatons qu'à +B et -B l'intensité obtenue est identique. Le désaccord amplifie la contribution des termes cohérents.

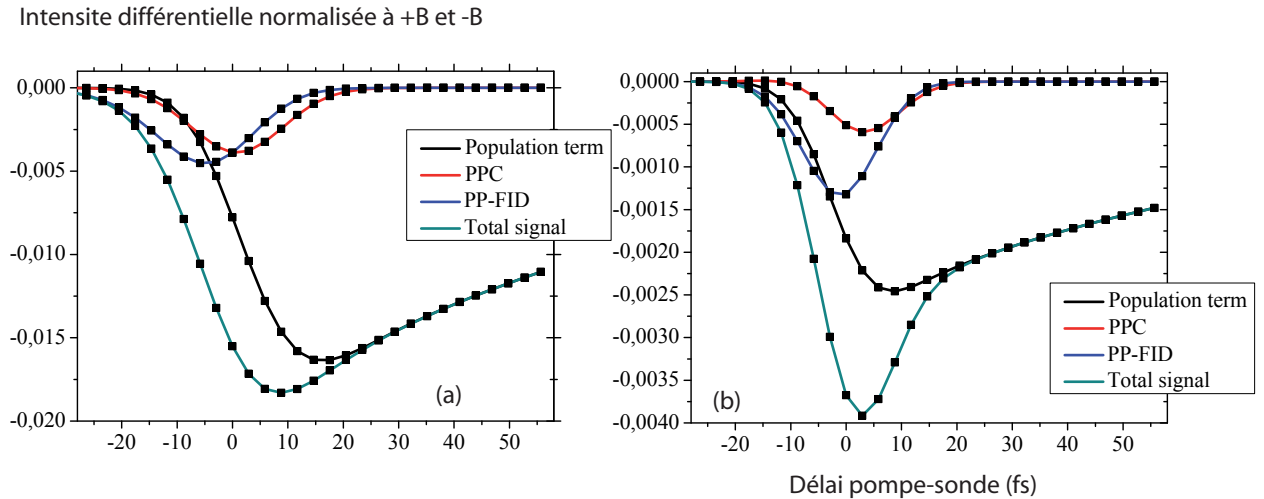


FIG. 4.12 – Intensité rayonnée selon  $e_x$  calculée pour le terme de population et pour les termes cohérents. (a) : sans désaccord, (b) : avec désaccord. Les lignes continues sont obtenues pour +B et les carrés pour -B.

#### Rotation et ellipticité en fonction du désaccord

Nous avons représenté la rotation magnéto-optique à la figure 4.13. Nous constatons que, hors résonance, la contribution cohérente au signal magnéto-optique augmente. Un pic apparaît dans le signal total aux temps courts qui est dû au terme de pump-perturbed free induction decay et au terme de pump-polarization coupling 4.14.



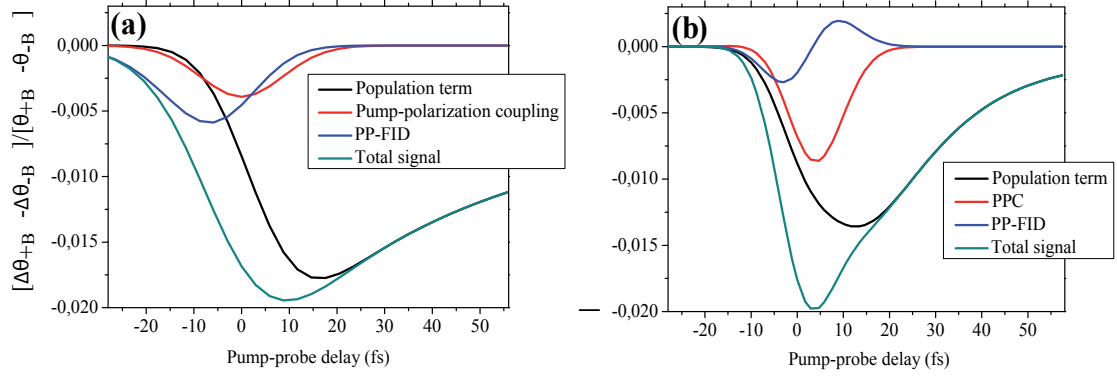


FIG. 4.13 – Rotation calculée pour le terme de population et pour les termes cohérents. (a) : sans désaccord, (b) : avec désaccord.

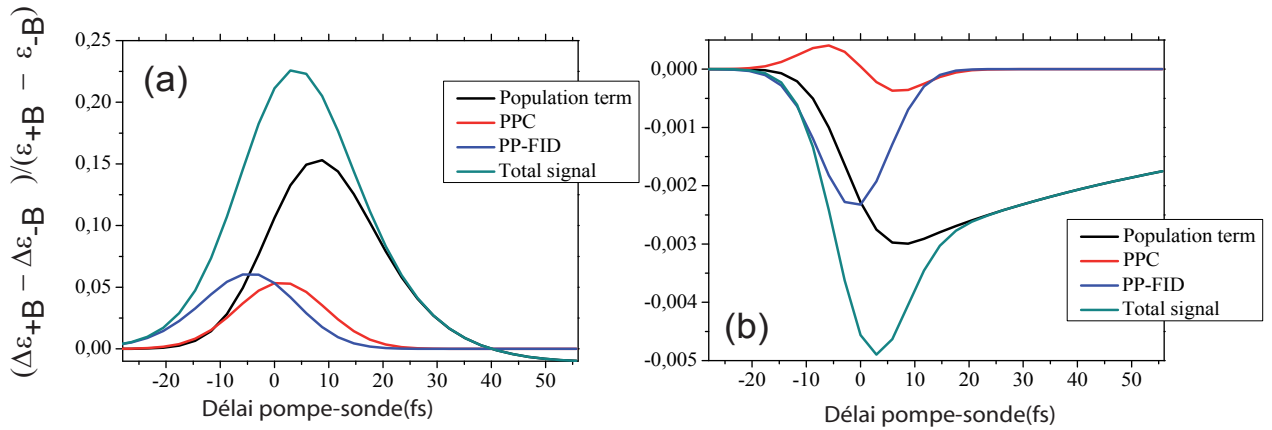


FIG. 4.14 – Ellipticité calculée pour le terme de population et pour les termes cohérents. (a) : sans désaccord, (b) : avec désaccord.

### 4.3.3 Dynamique de l'aimantation en champ magnétique fort

Les dynamiques du moment orbital et du moment de spin sont indiquées à la figure 4.15. Nous constatons que chaque séquence d'impulsions génère sa propre dynamique de l'aimantation. Nous constatons également que le spin et le moment angulaire intégrés sur  $t$  possèdent un maximum décalé dans le temps de 10 fs (figure 4.15 (c,d,e,f)). Le terme de Foldy-Wouthuysen contribue à la dynamique de spins comme indiqué aux figures 4.16 et 4.17.

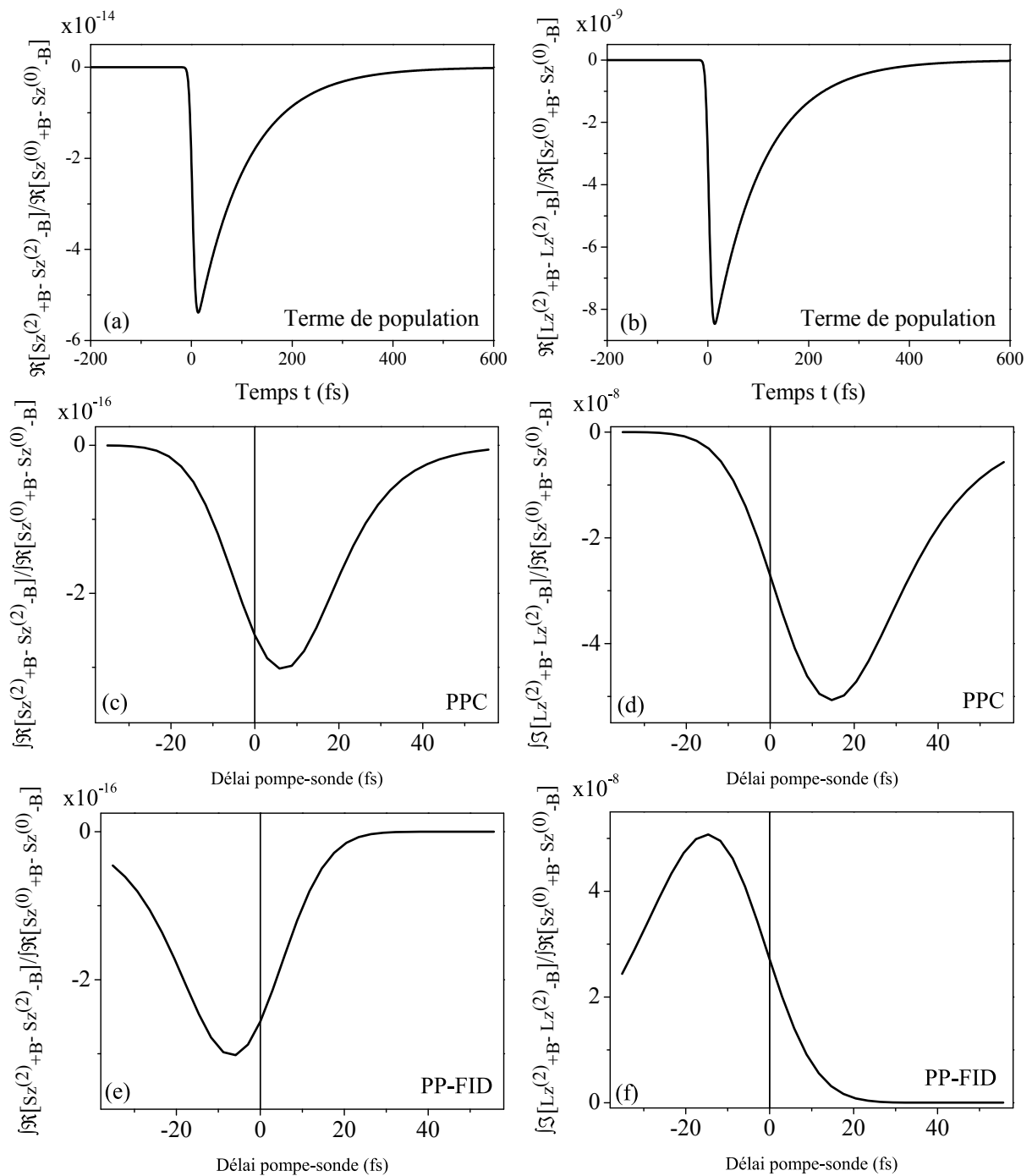


FIG. 4.15 – Moment orbital (colonne de droite) et moment de spin (colonne de gauche) pour les trois séquences pompe-sonde. Pour le terme de population, les figures a et b ne dépendent pas du délai pompe-sonde, elles sont tracées en fonction de  $t$ . Terme de pump-polarization coupling : figures c et d. Terme de pump-perturbed free-induction decay : figures e et f. Les courbes c, d, e, f sont tracées en fonction du délai pompe-sonde  $\tau$  : elles sont intégrées sur  $t$ .

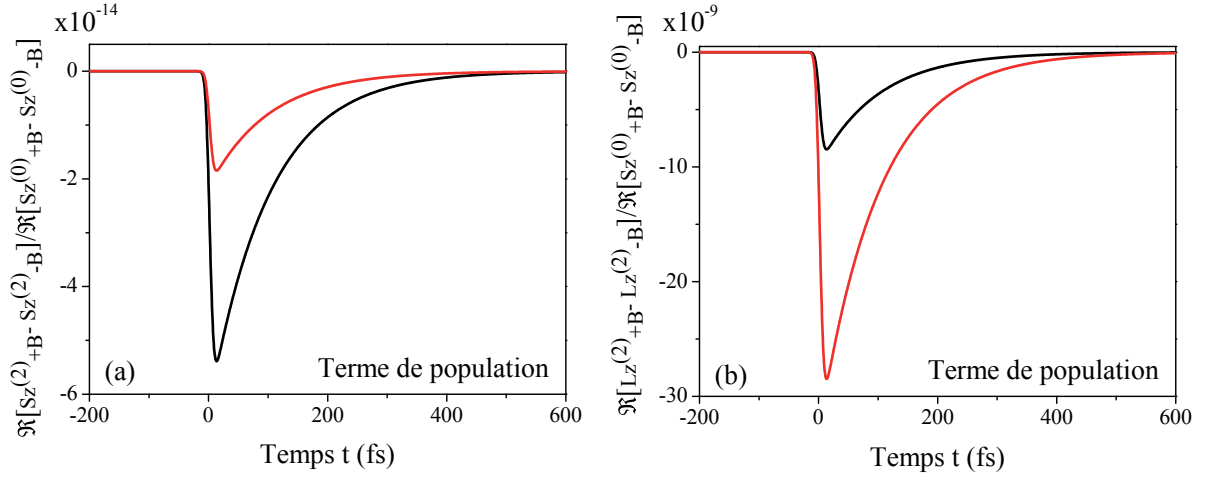


FIG. 4.16 – Terme de population de  $\langle S_z^{(2)}(t) \rangle$  et  $\langle L_z^{(2)}(t) \rangle$  avec terme spin-orbite issu du développement de Foldy-Wouthuysen (courbe noire) et sans ce terme (courbe rouge). Nous constatons que la partir réelle de  $\langle S_z^{(2)}(t) \rangle$  et  $\langle L_z^{(2)}(t) \rangle$  dépend nettement du terme de Foldy-Wouthuysen (la partie imaginaire est nulle).

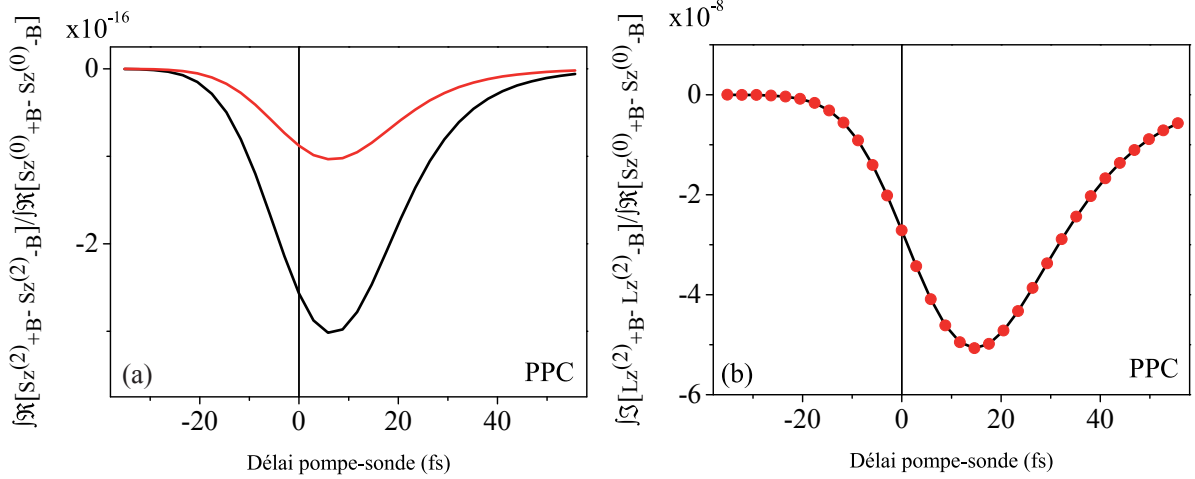


FIG. 4.17 – Figure a : dynamique de  $\langle S_z^{(2)} \rangle$ . Figure b : dynamique de  $\langle L_z^{(2)} \rangle$ . Il s'agit du terme de pump-polarization coupling, avec et sans terme spin-orbite issu du développement de Foldy-Wouthuysen (courbes respectivement noires et rouges). Nous constatons que la partie imaginaire de  $\langle L_z^{(2)}(t) \rangle$  ne dépend pas du terme de Foldy-Wouthuysen, tandis que la partie réelle de  $\langle S_z^{(2)} \rangle$  en dépend.

## 4.4 Conclusion et perspectives des modélisations numériques

L'approche adoptée qui est celle de l'atome d'hydrogène a permis de poser les bases de la dynamique magnéto-optique et de l'aimantation dans une expérience pompe-sonde ultra-rapide.

Nous avons étudié deux cas :  $Energie_{spin-orbite} \gg Energie_{Zeeman}$  et  $Energie_{spin-orbite} \ll Energie_{Zeeman}$ . Nous avons pu montrer que chaque terme pompe-sonde correspond à une réponse magnéto-optique et à une dynamique de l'aimantation propres. Nous avons également montré que la réponse cohérente magnéto-optique est fortement dépendante du désaccord aux transitions considérées.

Dans le cas où  $Energie_{spin-orbite} \gg Energie_{Zeeman}$ , l'interaction spin-orbite due au développement de Foldy-Wouthuysen n'a pas d'effet sur la dynamique d'aimantation, dans le second cas, elle agit directement sur la dynamique de spin mais ne contribue pas au signal magnéto-optique.

Ces modélisations sont la base pour étudier des systèmes avec interaction d'échange ou des systèmes ioniques des éléments de transition 3d sous l'effet du champ cristallin anisotrope [87]. Nous pourrions également envisager d'étudier plus spécifiquement l'effet du spectre du laser, notamment de sa dérive de fréquence [88]. D'autres configurations pour les impulsions pompe et sonde sont directement envisageables : ici nous avons calculé la réponse du système pour pompe et sonde parallèles polarisées  $\mathbf{s}$ . La configuration expérimentale la plus courante est celle où pompe et sonde sont polarisées  $\mathbf{p}$ , la pompe ayant un angle d'incidence. Il faut alors également prendre en compte les transitions dipolaires électriques de type  $\pi$  et la dynamique des composantes du spin orthogonales à l'axe de quantification.

Une autre suite possible à ce travail est d'étudier systématiquement l'effet magnéto-optique de la polarisation de la pompe par rapport à la sonde. Dans le domaine fréquentiel le tenseur de susceptibilité de la réponse magnéto-optique à l'ordre trois est largement étudié, contrairement au tenseur fonction réponse magnéto-optique d'ordre trois dans le domaine temporel, qui pourtant est essentiel à la compréhension des effets aux temps courts.

# Chapitre 5

## Partie expérimentale

L'objectif de ce travail est d'appliquer à des mesures magnéto-optiques une configuration expérimentale donnant accès sélectivement aux cohérences et aux populations, ce qui n'a encore jamais été réalisé. Dans ce chapitre nous présenterons d'abord l'échantillon et le montage expérimental à trois faisceaux. Nous détaillerons ensuite les résultats de la contribution cohérente obtenue lorsque la troisième impulsion subit un retard important de 300 fs et 500 fs, ce que nous illustrerons numériquement à l'aide du modèle hydrogéoïde à 8 niveaux. Puis nous montrerons que cette configuration expérimentale permet un accès direct à la dynamique d'aimantation. En particulier aux temps longs nous montrerons la précession de l'aimantation dans le signal correspondant à la dynamique d'aimantation.

### 5.1 Echantillon

Nous avons étudié un matériau ferrimagnétique dont la réponse magnéto-optique cohérente est résonante à la longueur d'onde 800 nm : il s'agit d'un grenat de formule  $(GdTmPrBi)_3(FeGa)_5O_{12}$  diélectrique magnétique et transparent pour la longueur d'onde 800 nm. L'adjectif ferrimagnétique désigne les matériaux ayant une aimantation spontanée en dessous d'une température donnée. Cette aimantation est due à l'arrangement antiparallèle dans plusieurs sous-réseaux de moments magnétiques interagissant fortement par interaction dipolaire [87].

#### Grenats

Les grenats sont des cristaux de formule générale  $P_3R_2Q_3O_{12}$  où P,Q,R désignent différents cations. Dans les grenats naturels, R désigne le cation  $Si^{4+}$ . Depuis 1957, des grenats synthétiques ferrimagnétiques ont été élaborés [89]. Les grenats dont Q et R contiennent les cations  $Fe^{3+}$  ont été énormément étudiés, en particulier les grenats de type  $P_3Fe_5O_{12}$  où P désigne au moins un ion terre rare tels que le YIG (yttrium iron garnet)  $\{Y_3\}[Fe_2]Fe_3O_{12}$ . Leurs propriétés magnéto-optiques sont bien connues [90] et leurs propriétés magnétiques peuvent être modifiées grâce à une structure cristalline permettant de nombreuses substitutions. Leur faible conduction implique que leurs propriétés magnétiques seront assez bien décrites par des modèles d'électrons localisés de type modèle de Heisenberg. L'approche en champ moléculaire est la plus simple, d'autant plus que leur structure cristalline est très complexe. Ce type de grenats a une structure cristalline complexe constituée de trois sous-réseaux.  $P^{3+}$  se trouve dans une maille dodécahédrique entouré de 8 oxygènes  $O^{2-}$ . Les ions ferriques trivalents  $Fe^{3+}$  sont placés sur des sites tétraédriques et sur des

sites octaédriques. Dans le cas simple où P correspond à l'ion non magnétique  $Y^{3+}$ , les propriétés magnétiques du grenat sont fixées par les ions ferriques qui possèdent un spin  $S=5/2$  et un moment orbital nul  $L=0$ . Ces cations sont couplés par une interaction de superéchange antiferromagnétique via les anions  $O^{2-}$ . Chaque ion ferrique porte le moment  $\pm 5\mu_B$ , et l'annulation réciproque des moments anti-parallèles conduit au moment résultant  $5\mu_B$  comme indiqué dans la figure 5.1 :

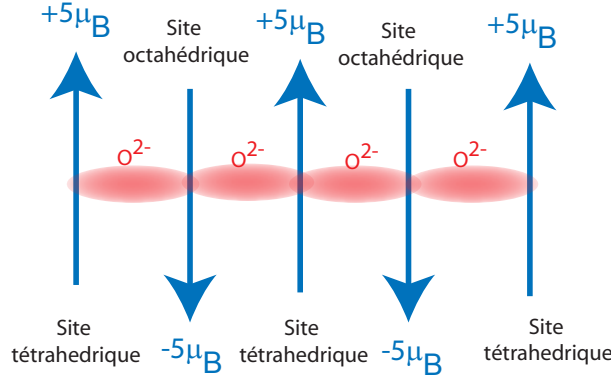


FIG. 5.1 – Structure antiparallèle des moments magnétiques des ions ferriques.

La composition du grenat  $(GdTmPrBi)_3(FeGa)_5O_{12}$  permet de fixer ses propriétés physiques. Ainsi Pr modifie l'anisotropie magnéto-cristalline [91], Bi renforce les propriétés magnéto-optiques de l'échantillon et Tm compense la différence de paramètre de maille avec le substrat. Gd modifie les propriétés magnétiques de l'échantillon mais les interactions antiferromagnétiques entre les ions ferriques sur les sites octaédriques et tétraédriques restent prédominantes par rapport aux interactions avec Gd :  $Fe_{tetra}^{3+} - Fe_{octa}^{3+} > Fe_{octa}^{3+} - Fe_{octa}^{3+} > Fe_{tetra}^{3+} - Fe_{tetra}^{3+} > Gd^{3+} - Fe_{tetra}^{3+} > Gd^{3+} - Fe_{octa}^{3+}$  [92].

Nous n'avons pas pu caractériser les propriétés magnétiques de cet échantillon unique car la mesure squid avec un champ magnétique appliqué perpendiculairement à la surface de l'échantillon nécessitait de le découper ce qui risquait de le détruire. Nous nous référons donc à une caractérisation issue de la littérature [92] : la température de compensation d'un échantillon similaire vaut 213 K et à 300 K, l'aimantation à saturation atteint  $1.8 * 10^{-3}$  emu sous 30 mT. Les auteurs ont constaté que 10 mT ne suffisent pas à saturer l'échantillon.

La température de compensation désigne la température à laquelle les moments magnétiques des sous-réseaux se compensent. La température de Néel ferrimagnétique, aussi appelée température de Curie par similarité avec les matériaux ferromagnétiques désigne la température au-dessus de laquelle le matériau devient paramagnétique.

## Elaboration

D'épaisseur  $7 \mu m$ , le grenat est déposé de part et d'autre d'un substrat de 0.5 mm de GGG ( $Gd_3Ga_5O_{12}$ ) par épitaxie en phase liquide. Il s'agit d'une technique permettant une croissance cristalline de composition homogène. Elle consiste à tremper le substrat en rotation dans une solution fondue sursaturée contenant les ions à déposer et le solvant, généralement  $PbO + B_2O_3$ . Le substrat est pour cela parfaitement poli et nettoyé. La croissance nécessite une température bien contrôlée de l'ordre de 700-1000°C. En trempant dans la solution le substrat, celui-ci joue le rôle de germe à partir duquel croît le cristal. La croissance cristalline a lieu sur les deux faces du substrat puis, lorsqu'elle est achevée,

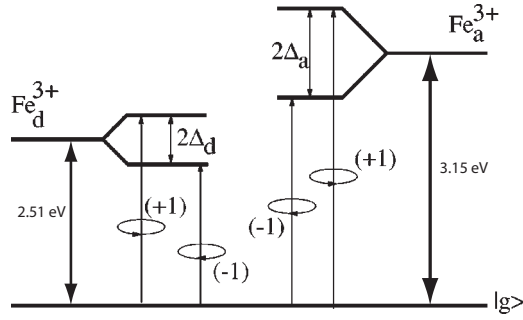


FIG. 5.2 – Transitions dipolaires électriques pour un laser polarisé circulaire + et circulaire - pour les sites octaédriques (a) et tétraédriques (d). Dans le cas du grenat  $\{Lu_{3-x-y-z}Y_yBi_xPb_z\}[Fe_{2-u_a}Ga_{u_a}][Fe_{3-u_d}Ga_{u_d}]O_{12}$ ,  $\Delta_a = 0.27$  eV et  $\Delta_d = 0.1$  eV. Les énergies nécessaires aux transitions dipolaires électriques sur les sites octaédriques et tétraédriques valent respectivement 3.15 eV et 2.51 eV [95].

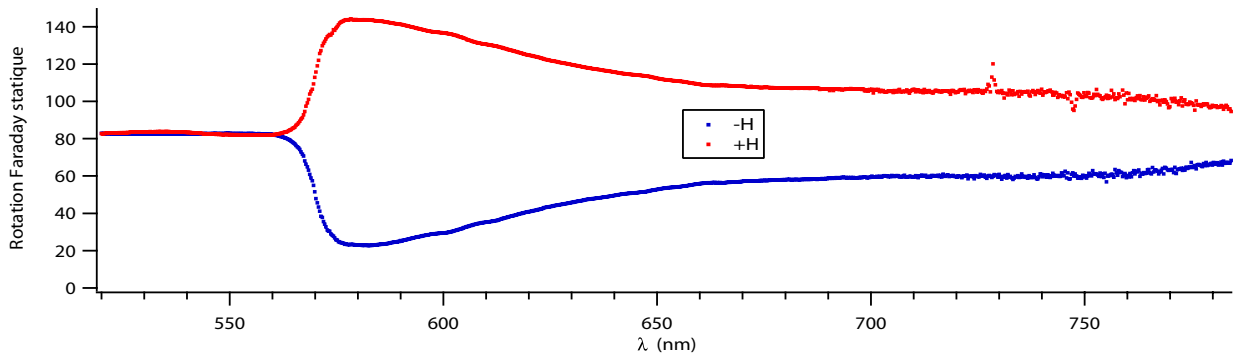


FIG. 5.3 – Rotation Faraday en degrés obtenue pour deux champs magnétiques opposés.

le solvant est évaporé par rotation rapide. De par la technique d'élaboration, la structure cristalline obtenue est régulière mais n'est pas parfaitement cubique. Comme la symétrie d'inversion est rompue, il doit être possible d'y observer également des effets non-linéaires d'ordre deux dans une configuration expérimentale appropriée.

Le substrat GGG est un matériau couramment utilisé en magnéto-optique. Son indice optique à 800 nm est de 1.96 et il est transparent dans le spectre allant de 0.6 à 6  $\mu\text{m}$ . Sa maille est cubique de paramètre de maille 12.383 à 12.3845 Å selon l'élaboration [93].

### Caractérisation magnéto-optique

La rotation Faraday importante de cet échantillon est due à  $Fe^{3+}$  et  $Bi^{3+}$ . En effet  $Bi^{3+}$  lève la dégénérescence des orbitales de  $Fe^{3+}$  par interaction covalente : ce sont en fait l'orbitale 6p de  $Bi^{3+}$ , l'orbitale 2p de  $O^{2-}$  et l'orbitale 3d de  $Fe^{3+}$  qui se recouvrent. Ce recouvrement conduit à l'écart énergétique dû au couplage spin-orbite  $2\Delta_i$  pour les sites tétraédriques et octaédriques comme indiqué sur la figure 5.2, où l'on voit également les transitions autorisées pour un laser polarisé circulairement [94].

Les spectres statiques peuvent être modélisés dans ce cas-là en ne considérant que les transitions indiquées à la figure 5.2. Les spectres de rotation Faraday obtenus pour le grenat que nous avons étudiés sont tracés sur la figure 5.3. Ils ont été obtenus avec un aimant permanent, pour un champ de 350 mT : la rotation Faraday a donc bien été mesurée pour une aimantation à saturation.

Nous voyons que la réponse magnéto-optique et l'aimantation sont portées par le fer. La dynamique magnéto-optique mesurée sur cet échantillon est complexe à interpréter et n'est pas l'objet de ce travail expérimental. Il a été montré que la rotation Faraday statique pour certains grenats ne reflète pas forcément fidèlement l'aimantation [96]. En effet les sites tétraédriques et octaédriques ne contribuent pas forcément de manière identique à la rotation Faraday. Or chaque site porte une partie de l'aimantation. Si un site contribue plus à la rotation Faraday, celle-ci ne sera pas fidèle à l'aimantation du matériau. L'étude détaillée de la structure de bande de ce grenat permettra une meilleure compréhension des mesures expérimentales, notamment en termes d'interaction cohérente entre photons, électrons et spins.

## Dynamique d'aimantation ultra-rapide de matériaux ferrimagnétiques

La dynamique de précession cohérente a été étudiée sur des grenats dans les travaux [54], [65], [21] et [97]. Nous ne nous intéresserons pas ici à l'aspect cohérent de la précession c'est-à-dire à sa dépendance vis à vis de la polarisation des impulsions incidentes. Nous nous focaliserons plutôt sur l'étude de notre nouvelle approche expérimentale à trois faisceaux. Celle-ci permettra notamment d'avoir accès aux cohérences du système {électrons+spins}.

## 5.2 Montage expérimental

Afin de produire des impulsions femtosecondes d'intensité suffisante, les sources laser commerciales sont constituées de deux étages : un oscillateur qui génère des impulsions femtosecondes relativement peu intenses et un amplificateur comme indiqué à la figure 5.4. Détaillons tout d'abord les caractéristiques de notre système laser, de la marque *Spectra-Physics*, avant de détailler le montage expérimental et l'étage de détection.

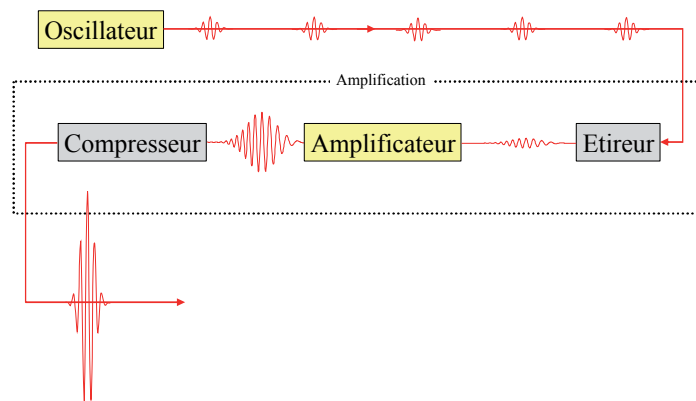


FIG. 5.4 – Schéma général d'une source femtoseconde [77].

L'oscillateur génère des impulsions à 800 nm de largeur spectrale 40 nm à un taux de répétition de 82 MHz. L'énergie par impulsion est de l'ordre de 5.9 nJ et la puissance moyenne émise vaut 480 mW. L'amplification laser est due à un cristal de saphire dopé par des ions  $Ti^{3+}$  pompé avec un laser continu *Millenia* fournissant 5 W à 532 nm. Le blocage des modes permettant de générer une impulsion laser se produit naturellement par effet Kerr : temporellement, l'effet Kerr permet de contribuer à la compensation de la dispersion





à bruit et de s'affranchir de signaux parasites. Elle fournit directement une mesure différentielle dans le cas de configurations à plusieurs impulsions. Elle nécessite de moduler un faisceau à l'aide d'une roue tournant à une fréquence de quelques centaines de Hz, non-harmonique des fréquences caractéristiques du rayonnement parasite (typiquement 100 Hz dû aux lampes dans la salle). Cette fréquence de modulation sera désignée comme étant la fréquence de référence. Le système de détection synchrone consiste alors à multiplier le signal détecté par une sinusoïde à la fréquence de référence  $f_{ref}$ . Le signal produit correspond alors à une grandeur différentielle : "faisceau modulé occulté" - "faisceau modulé coupé" comme le détaille la figure 5.6.

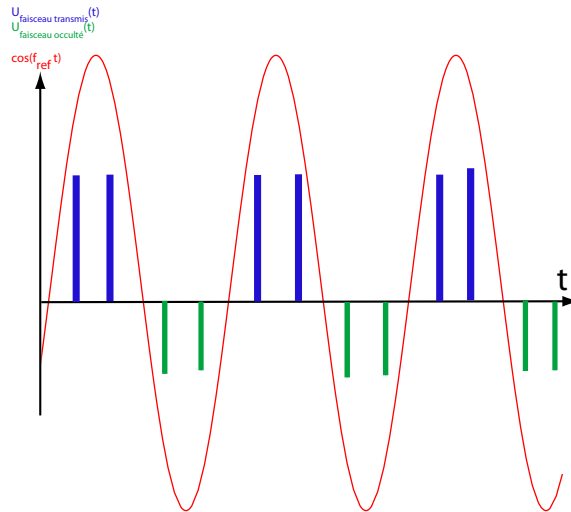


FIG. 5.6 – Le système de détection synchrone multiplie la sinusoïde de référence  $\cos(\omega_{ref}t)$  par la tension  $U(t)$  détectée sur les photodiodes. Le signal  $S(t) = U(t) \times \cos(\omega_{ref}t)$  est représenté en bleu lorsque le modulateur transmet le faisceau et en vert lorsque le modulateur coupe le faisceau. Dans le cas d'une configuration pompe-sonde par exemple, l'intégration de  $S$  dans le temps fournit une mesure différentielle "avec pompe" - "sans pompe".

La transformée de Fourier du signal produit possède alors deux composantes spectrales principales : l'une située près de la fréquence nulle, l'autre autour de  $2f_{ref}$ , toutes les autres contributions spectrales proviennent nécessairement de bruit parasite. Un filtre passe bas permet alors d'extraire le signal voulu, à savoir celui qui a été généré par le faisceau modulé.

### 5.3 Résultats expérimentaux

Dans les mesures expérimentales nous distinguons quatre échelles temporelles :

1. Le temps  $T_2$  à l'échelle duquel évoluent les phénomènes cohérents. La mesure est réalisée en faisant varier le délai  $\tau$  et en fixant  $T=300$  fs puis  $T=500$  fs.
2. La décroissance exponentielle de l'aimantation dont le temps caractéristique  $\tau_{spin-réseau}$  est de l'ordre de la picoeconde.
3. La décroissance exponentielle de la précession de l'aimantation et la diffusion de l'énergie électronique vers le réseau. Leur temps caractéristique est de l'ordre de la centaine de picosecondes.

4. La décroissance exponentielle du signal en l'espace d'une nanoseconde correspondant au transfert de chaleur vers le substrat. Les mesures n'atteignent pas ces délais, aussi, dans les ajustements nous considérerons ce terme comme une ordonnée à l'origine non nulle.

Toutes les mesures ont été obtenues avec un champ magnétique appliqué de 3.5 kGauss ce qui est équivalent à 350 mTeslas. Le schéma 5.7 permet de visualiser la géométrie du champ magnétique appliqué.

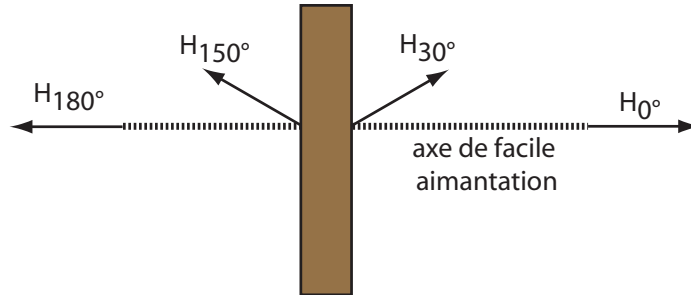


FIG. 5.7 – Directions de champ magnétique appliqué, l'échantillon est vu de dessus.

### Mesure du signal cohérent à T fixé

Nous avons fixé  $T=300$  fs et  $T=500$  fs. La valeur de  $T$  doit être suffisamment grande devant  $T_2$  et la durée de l'impulsion pour que les cohérences générées ne dépendent que du délai  $\tau$  et qu'elles soient bien nulles en  $T$ . Ainsi nous évitons également qu'il y ait des interférences entre les deux premières impulsions et la troisième. Il faut pour cela également diaphragmer les faisceaux dans la direction d'observation. Le signal est mesuré pour différents délais  $\tau$ . Nous supposons dans la suite que les trois faisceaux sont focalisés de la même manière sur l'échantillon. La comparaison des puissances mesurées pour chaque faisceau donnera donc une indication sur l'énergie surfacique relative de chaque faisceau :

$$E_{surfacique} = \frac{\text{Puissance}}{\text{Taux de répétition} \times \text{surface du waist}}$$

La puissance de l'impulsion arrivant au délai  $T$  vaut 2.75 mW. La puissance de l'impulsion arrivant au délai  $\tau$  vaut 1.98 mW sans modulateur. La puissance de l'impulsion fixe est 2.1 mW. Les figures 5.8, 5.9, 5.10 et 5.11 présentent les mesures moyennées sur 6 à 8 acquisitions. Dans le cas d'un système caractérisé par un déphasage inhomogène, ces courbes doivent être asymétriques. Dans le cas d'un déphasage homogène ou d'un grand nombre de niveaux tel que cela doit être le cas dans le grenat, le signal est symétrique par rapport à  $\tau$ .

Les ajustements correspondent à la gaussienne  $I(\tau) = y_0 + Ae^{-[\frac{\tau-x_0}{width}]^2}$ .

Nous obtenons un signal gaussien de l'ordre de la durée de l'impulsion : la dynamique cohérente n'est pas résolue car les impulsions sont trop longues. Le signal devrait correspondre à une autocorrélation de l'impulsion, qui en sortie du système laser dure 47 fs. Nous constatons que les largeurs mesurées varient entre 36 fs et 52 fs. Cette variation peut être due à l'épaisseur de l'échantillon :  $2 \times 7 \mu\text{m}$  et  $500 \mu\text{m}$  dus au substrat. L'ensemble est d'une part épais, d'autre part diffusant. Par ailleurs, l'optimisation du signal cohérent

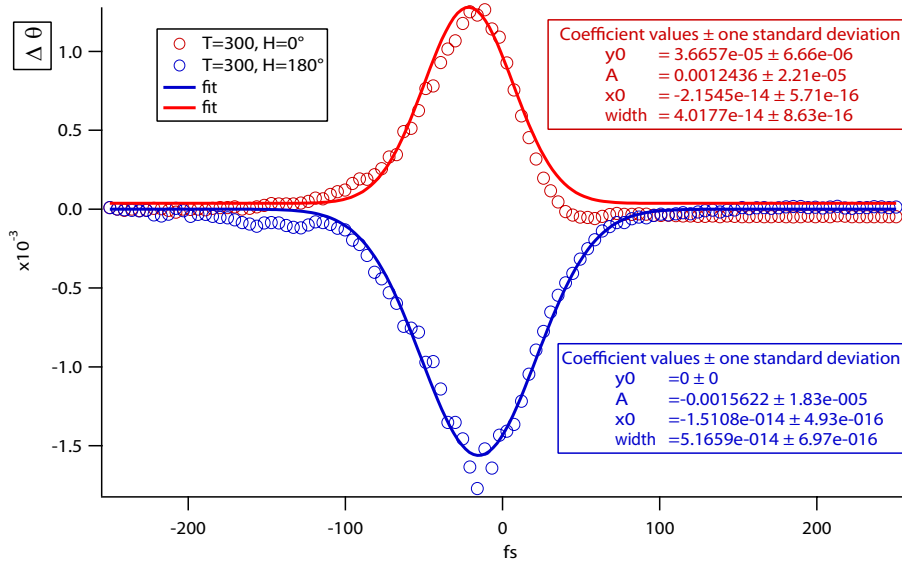


FIG. 5.8 – Rotation différentielle magnéto-optique dans la configuration à trois impulsions pour deux valeurs du champ magnétique  $H$  et  $T=300$  fs. L’ajustement fournit une durée de  $40.2 \text{ fs} \pm 0.9 \text{ fs}$  en  $H=0^\circ$  et  $51.7 \text{ fs} \pm 0.7 \text{ fs}$  en  $H=180^\circ$ .

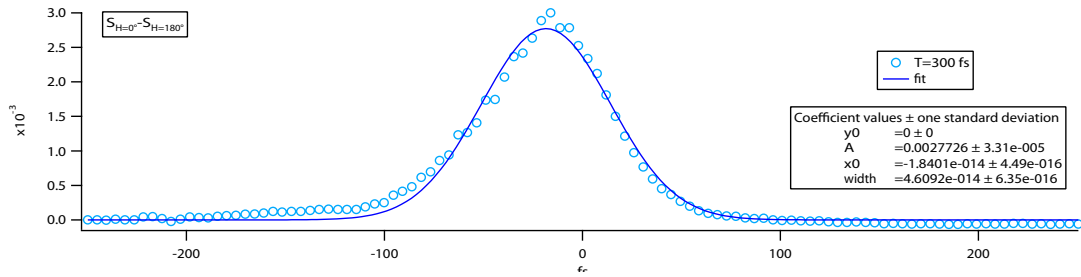


FIG. 5.9 – Différence entre les deux signaux de la figure 5.8. La largeur du signal cohérent est de  $46.1 \pm 0.6 \text{ fs}$ .

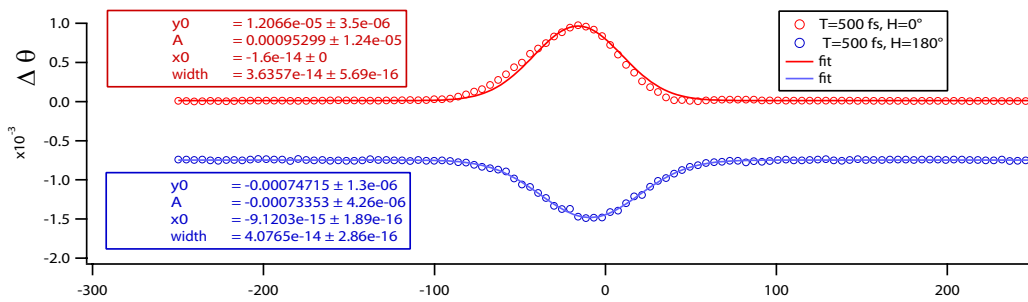


FIG. 5.10 – Rotation différentielle magnéto-optique dans la configuration à trois impulsions pour deux valeurs du champ magnétique  $H$  et  $T=500$  fs. L’ajustement fournit une durée de  $36.4 \text{ fs} \pm 0.6 \text{ fs}$  en  $H=0^\circ$  et  $40.8 \text{ fs} \pm 0.3 \text{ fs}$  en  $H=180^\circ$ .

est délicate car elle nécessite de minimiser le fond de diffusion statique, de maximiser le contraste et de réduire les éventuelles franges d’interférences apparaissant avec la diffusion. Nous constatons également que les signaux mesurés sont décalés temporellement de quelques picosecondes pour les angles  $0^\circ$  et  $180^\circ$ . L’aimant déplace-t-il légèrement l’échantillon et modifie-t-il ainsi la superposition des faisceaux? Cette hypothèse semble peu

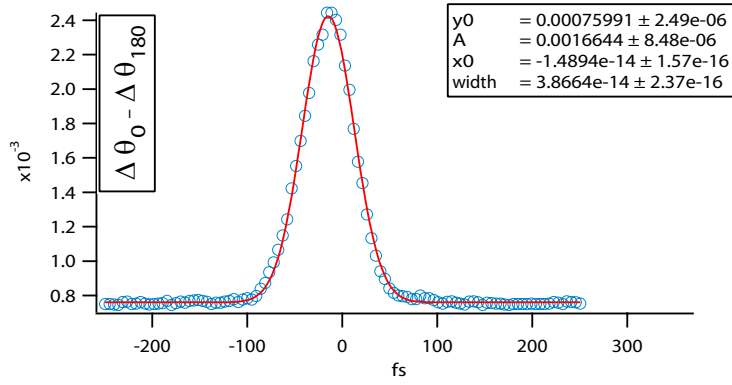


FIG. 5.11 – Différence entre les deux signaux de la figure 5.10. La largeur du signal cohérent est de  $38.7 \pm 0.2$  fs.

probable. Un déplacement des faisceaux pendant l'acquisition se manifesterait également par une baisse du signal, ce qui n'est pas le cas ici. Rappelons ici que notre but n'était pas d'effectuer une autocorrélation, qui aurait été bien plus simple à l'aide d'un cristal de BBO par exemple, parfaitement poli et optimisé pour cette application, mais de tester cette nouvelle configuration expérimentale.

### Mesure de la dynamique des populations à $\tau$ fixé

Nous avons mesuré le signal de populations en fixant  $\tau=0$  fs et en faisant varier  $T$ . L'intérêt de cette mesure est qu'elle ne fait pas intervenir le champ rayonné à l'ordre un comme c'est le cas dans une expérience pompe-sonde, ce qui permet d'interpréter plus directement le signal magnéto-optique.

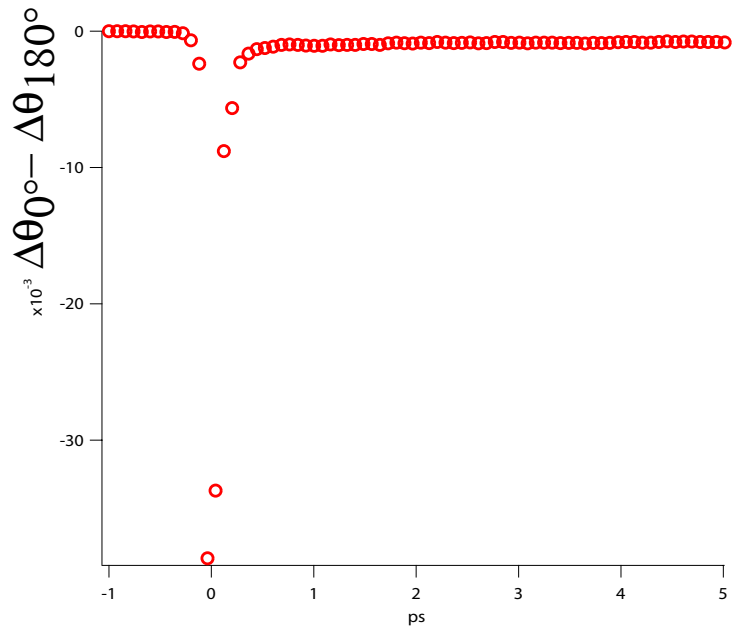


FIG. 5.12 – Signal différentiel magnéto-optique pour un champ appliqué de  $0^\circ$  et  $180^\circ$  en fonction du délai  $T$ . Le pic de signal aux temps courts est dû à l'interaction entre les trois impulsions. Le rapport entre l'amplitude du pic et le signal à 400 fs vaut environ 20. Cette figure est modélisée par la courbe 5.17.

Aux délais  $T$  inférieurs à 5 ps, nous avons estimé le temps caractéristique de transfert d'énergie des spins vers le réseau. Cette estimation est difficile dans ce système, dans la mesure où le signal cohérent aux temps plus courts peut influencer l'ajustement de l'exponentielle décroissante de temps caractéristique  $\tau_{spin-reseau}$  comme on le voit à la figure 5.12. Les mesures sont réalisées avec une puissance d'excitation 1.6 fois supérieure à celle utilisée à la courbe 5.14, c'est-à-dire que la puissance de l'impulsion arrivant au délai  $T$  vaut 2.7 mW. La puissance de l'impulsion arrivant au délai  $\tau$  vaut 2.1 mW sans modulateur. La puissance de l'impulsion fixe est 2.2 mW. Nous avons estimé  $\tau_{spin-reseau} \in [1.2, 1.8]$  ps d'après l'ajustement de la figure 5.13. Celui-ci a été obtenu avec le signal magnéto-optique différentiel mesuré pour les champs  $+180^\circ$  et  $0^\circ$ . Comme le champ magnétique est appliqué orthogonalement à l'échantillon, parallèlement à l'axe de facile aimantation, il n'y a pas de précession à observer.

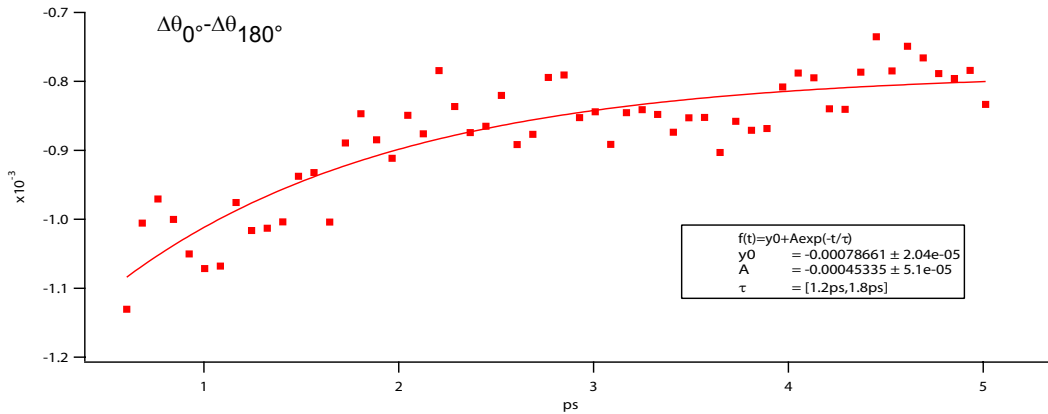


FIG. 5.13 – Ajustement du taux de transfert spin-réseau à partir du signal différentiel magnéto-optique.

Nous avons ensuite appliqué le champ magnétique avec les angles  $+30^\circ$  et  $+150^\circ$  par rapport à la normale à l'échantillon. L'aimantation est donc forcée hors de son axe de facile aimantation. Nous avons choisi  $\tau=0$  fs et avons mesuré la dynamique magnéto-optique en fonction de  $T$ . La puissance de l'impulsion arrivant au délai  $T$  vaut 1.7 mW. La puissance de l'impulsion arrivant au délai  $\tau$  vaut 1.25 mW sans modulateur. La puissance de l'impulsion fixe est 1.3 mW.

Nous observons bien une dynamique d'aimantation dans cette configuration puisque nous observons la précession de l'aimantation. Nous avons ajusté les courbes expérimentales par la fonction suivante :

$$I(T) = a + b \cos\left[2\pi \frac{T}{T_{precession}} + \phi\right] e^{-\frac{T-x_0}{\tau_{amortissement}}} + c e^{-\frac{T-x_0}{\tau_{diffusion}}} \quad (5.1)$$

$T_{precession}$  désigne la période de précession,  $\tau_{amortissement}$  représente l'amortissement de la précession et  $\tau_{diffusion}$  désigne le temps caractéristique de la diffusion de la chaleur du système {électrons + spins} vers le réseau.

Pour le champ  $+30^\circ$  : nous trouvons  $\tau_{amortissement}=206$  ps  $\pm$  13 ps,  $\tau_{diffusion}=156$  ps  $\pm$  4 ps, la période de précession vaut 143 ps  $\pm$  1 ps.

Pour le champ  $+150^\circ$  :  $\tau_{amortissement}=223$  ps  $\pm$  16 ps,  $\tau_{diffusion}=138$  ps  $\pm$  4 ps, la période de précession vaut 161 ps  $\pm$  1 ps.

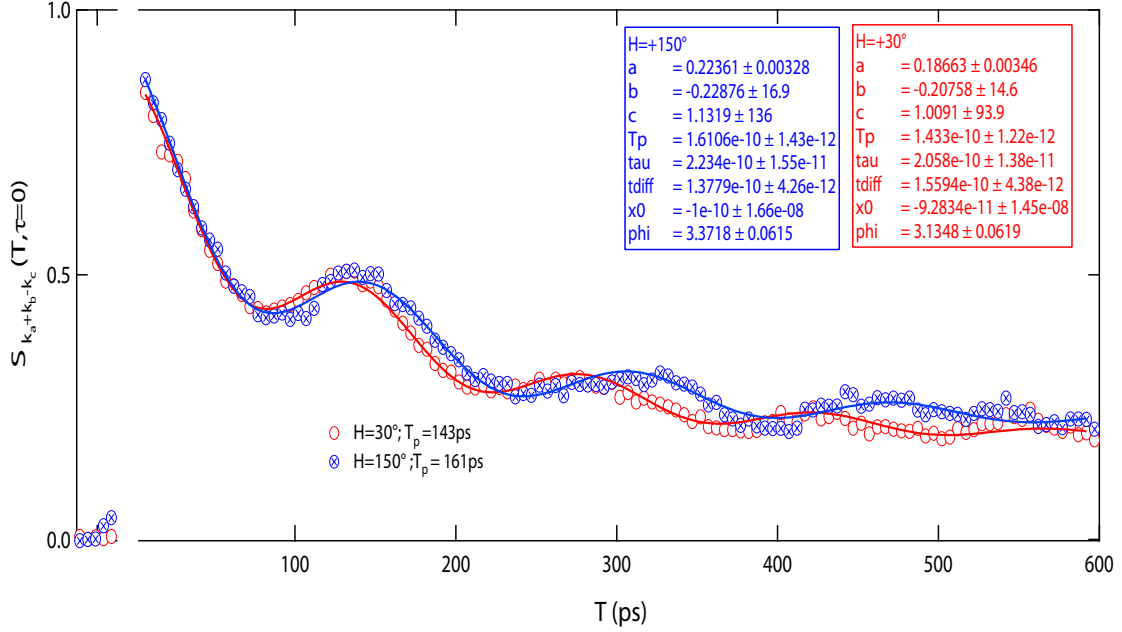


FIG. 5.14 – Rotation différentielle magnéto-optique dans la configuration à trois impulsions pour  $\tau = 0fs$ . Nous observons deux périodes de précession pour les deux champs et un amortissement exponentiel de la précession.

L'observation de la précession et les ordre des grandeur des temps de diffusion et d'amortissement obtenus permettent de valider la configuration magnéto-optique à trois faisceaux pour résoudre la dynamique d'aimantation due aux populations.

## 5.4 Résultats numériques pour la configuration en réseau transitoire à trois faisceaux

Cette section a pour objectif d'illustrer les mesures expérimentales aux délais inférieurs à 500 fs. Pour cela, nous avons considéré un désaccord de 0.08 % par rapport à la transition  $2s_{j=1/2} - 3p_{j=1/2}$ . Les temps de relaxation choisis sont  $T_1 = 1350$  fs,  $T_2 = 10$  fs. Les trois impulsions ont la même intensité. L'amplitude du champ électrique associé à chaque impulsion est de  $4 * 10^6$  V.m<sup>-1</sup>. Les impulsions incidentes sont polarisées selon  $e_x$ . Les courbes ont été obtenues avec le système à huit niveaux en champ magnétique faible B=0.05T.

Afin de pouvoir évaluer l'ordre de grandeur des effets non-linéaires, les figures correspondent au signal d'ordre 3 normalisé par le signal d'ordre 1. Par exemple dans le cas de la rotation nous traçons :

$$\begin{aligned}
 \frac{S_{MO}(\tau)}{S_{MO}^{(1)}} &= \frac{\Delta\theta}{\theta^{(1)}} = \frac{\theta_{+H}^{(3)} - \theta_{-H}^{(3)}}{\theta_{+H}^{(1)} - \theta_{-H}^{(1)}} \\
 &= \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} [ |E_{+H}^{(3)}(t, \tau)|^2 + |E_{-H}^{(3)}(t, \tau)|^2 ] \sin[2\alpha(t, \tau)] \cos[2\epsilon(t, \tau)] dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} [ |E_{+H}^{(1)}(t)|^2 + |E_{-H}^{(1)}(t)|^2 ] \sin[2\alpha_S(t)] \cos[2\epsilon_S(t)] dt}
 \end{aligned} \tag{5.2}$$

### 5.4.1 Terme cohérent

Pour pouvoir illustrer les mesures expérimentales, nous considérons une durée d'impulsion de 50 fs puis de 7 fs. Nous avons fixé le délai d'arrivée de la troisième impulsion à 500 fs.

#### Rotation et ellipticité magnéto-optiques du terme cohérent

Nous constatons que le terme cohérent de la rotation magnéto-optique est maximal pour le délai  $\tau = 9$  fs alors que l'ellipticité magnéto-optique est maximale pour le délai  $\tau = 3$  fs. Nous constatons qu'une informations sur la durée de vie des cohérences et le désaccord du laser par rapport aux transitions du système peut être obtenue en étudiant la rotation magnéto-optique de la configuration à trois faisceaux.

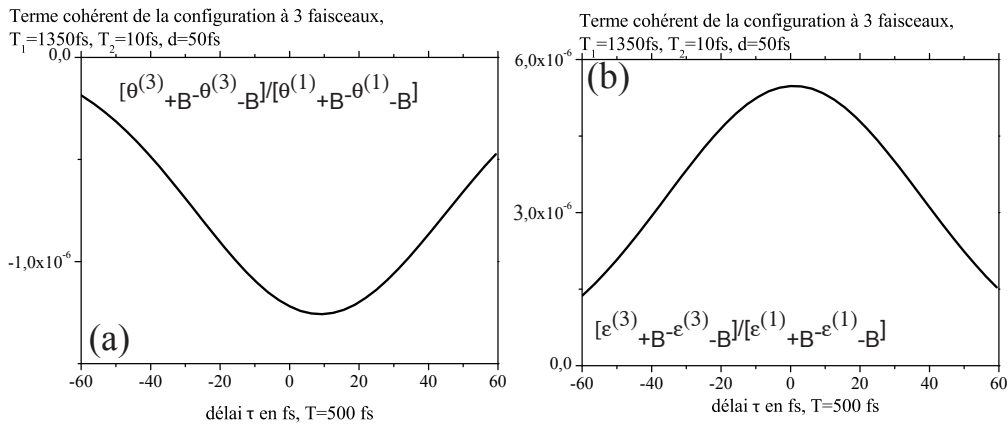


FIG. 5.15 – Figure a : Rotation magnéto-optique d'ordre 3 obtenue dans la direction  $-\mathbf{k}_\tau + \mathbf{k}_T + \mathbf{k}_0$  normalisée par la rotation magnéto-optique du premier ordre. Durée de l'impulsion : 50 fs.  $T_2=10$  fs pour un désaccord de 0.08 %. La largeur de la gaussienne obtenue est de 51 fs. Cette valeur est comparable à la largeur expérimentale obtenue à la figure 5.10. Figure b : ellipticité magnéto-optique d'ordre 3 (Les paramètres numériques et la largeur de la gaussienne obtenue sont identiques).

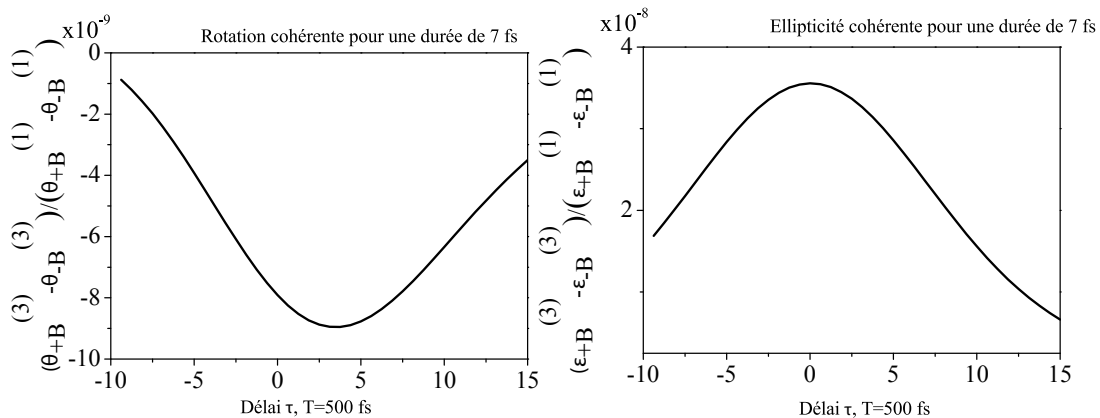


FIG. 5.16 – Figure de gauche : Rotation magnéto-optique d'ordre 3 obtenue dans la direction  $-\mathbf{k}_\tau + \mathbf{k}_T + \mathbf{k}_0$  normalisée par la rotation magnéto-optique du premier ordre. Durée de l'impulsion : 7 fs.  $T_2=10$  fs pour un désaccord de 0.08 %. Figure de droite : Ellipticité dans les mêmes conditions.



## 5.4.2 Terme de population

Nous avons calculé la réponse magnéto-optique issue du terme de population obtenue dans la direction  $-\mathbf{k}_\tau + \mathbf{k}_T + \mathbf{k}_0$  en fixant  $\tau=0$  fs. Les impulsions ont une durée de 50 fs. L'ellipticité évolue temporellement de manière similaire à l'intensité ; son maximum se situe autour du délai  $T=80$  fs. La rotation révèle un pic important au délai  $T=40$ fs. Une étude plus détaillée de ce phénomène est une perspective de ce modèle.

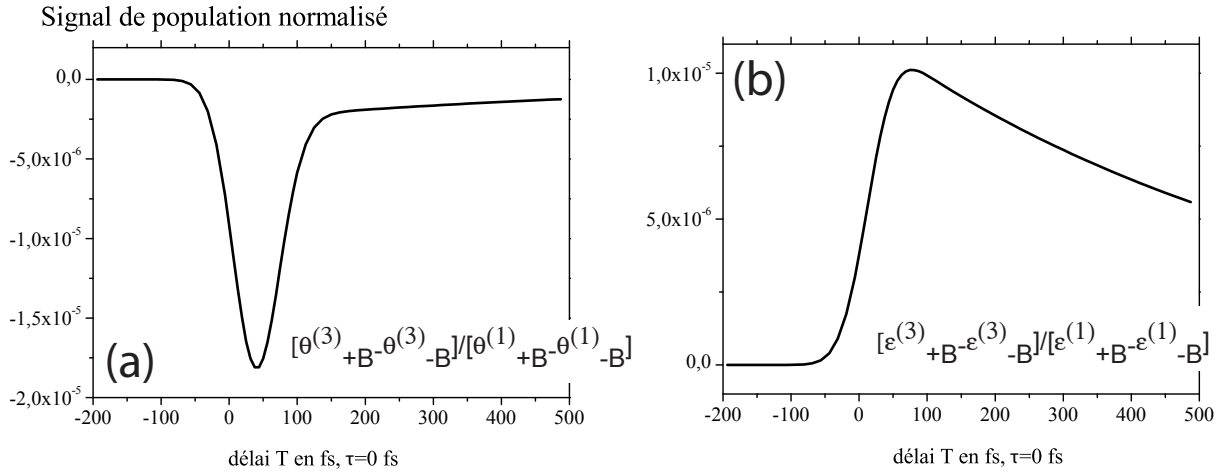


FIG. 5.17 – Figure a : Rotation magnéto-optique. Le rapport entre le maximum de la rotation magnéto-optique et la valeur à  $T=400$  fs vaut 12.9, de manière similaire aux courbes obtenues expérimentalement (figure 5.12). Figure b : Ellipticité magnéto-optique.

## 5.5 Conclusion de la partie expérimentale

Nous avons réalisé les premières mesures magnéto-optiques ultra-rapides à l'aide d'une configuration de mélange d'onde en réseau transitoire. Pour cela, nous avons étudié un grenat ferrimagnétique qui possède une réponse magnéto-optique cohérente très importante. Ces mesures nous ont permis d'accéder directement à la dynamique d'ordre trois, contrairement aux mesures de type pompe-sonde qui mélangent la réponse du système à l'ordre un et à l'ordre trois. Ainsi, l'analyse de la réponse magnéto-optique est plus directe.

Aux temps intermédiaires (jusqu'à 5 ps) nous avons pu extraire le temps caractéristique de transfert d'énergie entre les spins et le réseau, qui dans nos mesures est de l'ordre de 1.5 ps. Nous avons pu modéliser la dynamique obtenue expérimentalement à l'aide du modèle hydrogéoïde à 8 niveaux pour des délais inférieurs à 500 fs : on y voit un pic dû à l'interaction cohérente aux temps courts puis une décroissance lente du signal de populations.

Aux temps longs, ces mesures nous ont donné accès à la précession de l'aimantation. Celle-ci évolue avec une période dépendant de l'angle du champ magnétique appliqué. Pour un angle de  $30^\circ$  nous trouvons  $T_{\text{précession}} = 143$  ps et pour un angle de  $150^\circ$  nous obtenons  $T_{\text{précession}} = 163$  ps. L'amortissement de la précession a lieu avec un temps caractéristique d'environ 210 ps.

Aux temps courts nous n'avons pas pu accéder au temps de cohérence du système, les impulsions de 47 fs étant trop longues par rapport aux temps de cohérence électroniques qui dans un métal est estimé de l'ordre de 10 fs. L'utilisation d'impulsions plus courtes associées à la configuration expérimentale de mélange d'onde en réseau transitoire promettent des avancées importantes dans le domaine des effets magnéto-optiques cohérents. Il s'agit ici de premières mesures qui laissent envisager des applications dans le domaine du contrôle cohérent de l'aimantation.

# Conclusion

Ce travail de thèse s'intègre dans un domaine qui est actuellement l'objet d'intenses recherches au niveau international. En effet, l'étude de la dynamique d'aimantation à l'échelle de la femtoseconde promet des applications dans le domaine du stockage de données et pose des questions fondamentales sur l'interaction ultra-rapide entre photons et spins dans des matériaux ferromagnétiques.

Dans ce manuscrit nous avons d'abord détaillé l'origine des effets Kerr et Faraday qui permettent de remonter à la dynamique de l'aimantation ultra-rapide à l'aide d'expériences d'optique femtoseconde. Nous avons souligné l'importance de l'interaction spin-orbite entre le moment cinétique des électrons, leur spin et le champ électrique des ions pour relier les propriétés optiques linéaires d'un matériau à ses propriétés magnétiques. Dans le cas d'expériences d'optique non-linéaire, nous avons montré que la dynamique d'aimantation ultra-rapide dépend de manière non-linéaire du champ électrique laser, ce qui peut être décrit par l'effet Faraday inverse ou par le formalisme de Liouville de l'équation d'évolution de la matrice densité. Dans le cas de systèmes subissant l'interaction d'échange, la dynamique d'aimantation dépend également linéairement du champ électrique laser d'après les travaux de Zhang et al. [4]. Nous avons détaillé deux processus physiques couplés intervenant dans la dynamique d'aimantation ultra-rapide : les échanges énergétiques entre le système électronique excité, les phonons et les spins, et d'autre part le phénomène de précession. Enfin, nous avons introduit la notion de dynamique cohérente : pour les charges et pour l'aimantation.

Dans une seconde partie, nous avons introduit un modèle simple qui nous a permis d'explorer deux aspects des expériences magnéto-optiques ultra-rapides. Le premier aspect est le rôle joué par le terme d'interaction spin-orbite avec le champ laser issu du développement relativiste de Foldy-Wouthuysen. Le second aspect que nous avons étudié est le lien entre le signal magnéto-optique cohérent et la dynamique d'aimantation aux temps courts.

Nous avons choisi d'étudier un système constitué de huit niveaux de l'atome d'hydrogène subissant une interaction Zeeman forte ou faible par rapport à son couplage spin-orbite. Nous avons calculé la réponse magnéto-optique de ces deux systèmes à l'ordre trois d'interaction avec le laser tel qu'elle est obtenue dans une expérience pompe-sonde. Nous nous sommes basés sur le formalisme de la matrice densité évoluant sous l'effet de l'équation de Liouville avec des taux de relaxation  $T_2$  et  $T_1$  des cohérences et des populations. À l'aide de l'approche de Brito-Cruz et al. nous avons distingué la contribution magnéto-optique de "population", de la contribution magnéto-optique cohérente issue des termes de "pump-perturbed free induction decay" et de "pump-polarization coupling" [15].

Dans un premier temps, nous avons modélisé les mesures magnéto-optiques à résonance et hors résonance. Nous avons montré la contribution différente des termes de population, de pump-perturbed free induction decay et de pump-polarization coupling. Puis nous avons comparé ces mesures à la dynamique du moment angulaire total  $\mathbf{J}$ , du moment orbital  $\mathbf{L}$

et du moment de spin  $\mathbf{S}$  pour montrer comment les mesures de rotation et d'ellipticité différentielles d'ordre trois donnent une information sur la dynamique de l'aimantation à l'ordre deux en perturbation du laser.

Dans un second temps, nous avons montré que dans notre modèle simple, l'interaction spin-orbite issue du développement de Foldy-Wouthuysen influence la dynamique des spins dans le cas d'un système subissant une interaction Zeeman forte. Ce terme n'est cependant pas suffisant pour modifier la réponse magnéto-optique ultra-rapide dans notre modèle.

Enfin, nous avons étudié une configuration de mélange d'onde en réseau transitoire à trois faisceaux. Nous avons montré que celle-ci permet d'accéder plus directement au signal magnéto-optique d'ordre trois qu'une mesure de type pompe-sonde. Une expérience à trois faisceaux donne accès à la contribution cohérente à l'ordre trois mais également aux populations en fonction des délais entre impulsions choisis.

Nous avons illustré expérimentalement la mesure des populations et des cohérences à l'ordre trois à l'aide de la configuration de mélange d'onde à trois faisceaux. Nous avons étudié la réponse magnéto-optique d'un film fin de grenat. Ce diélectrique ferrimagnétique est transparent à la longueur d'onde 800 nm et possède une réponse magnéto-optique résonante à 580 nm. Il est donc bien adapté pour la mesure de dynamiques magnéto-optiques cohérentes à l'aide d'impulsions femtosecondes de 47 fs à 800 nm. Nous n'avons pas pu résoudre la dynamique magnéto-optique cohérente car pour cela les impulsions doivent avoir une durée maximale de l'ordre du temps de cohérence des électrons. Dans un métal, celui-ci est estimé à 10 fs. Néanmoins, ces expériences ont montré que l'on peut obtenir une réponse magnéto-optique cohérente efficace, en l'absence de toute contribution des populations. Par ailleurs, elles constituent une base pour planifier de futures mesures magnéto-optiques cohérentes à l'aide d'impulsions plus courtes. Grâce à la mesure des populations, nous avons pu évaluer le temps de relaxation des spins vers le réseau à 1.5 ps. Nous avons mesuré la précession de l'aimantation pour deux directions du champ magnétique. Pour un champ magnétique statique appliqué à  $30^\circ$  par rapport à l'axe de facile aimantation du grenat, la période de précession est de 143 ps et son temps caractéristique d'amortissement est de 200 ps. Ces mesures ont permis de démontrer que cette configuration expérimentale permet de découpler la dynamique magnéto-optique cohérente de la dynamique magnéto-optique liée aux populations. Elle promet des avancées dans la compréhension de l'interaction cohérente entre spins et photons dans les matériaux ferromagnétiques et elle permet d'envisager un contrôle cohérent de l'aimantation à l'échelle de la femtoseconde.

# Annexe A

## L'atome d'Hydrogène et quelques rappels de mécanique quantique

Nous détaillons quelques notions concernant l'atome d'Hydrogène afin de comprendre l'origine des niveaux d'énergie. Nous considérerons une interaction Zeeman faible devant l'interaction spin-orbite et rappellerons la structure de niveaux qui en découle. Nous évoquerons aussi la symétrie des fonctions d'onde et en déduiront les éléments de transition dipolaire électrique. Ce résumé est basé sur les références [99], [76], [100].

Lorsque nous écrirons les harmoniques sphériques nous utiliserons au lieu de  $l_z$  la notation  $m$  pour désigner le nombre quantique associé à la projection du moment orbital selon l'axe  $\mathbf{e}_z$ .

### A.1 Hamiltonien de l'atome d'Hydrogène

Considérons en coordonnées sphériques l'Hamiltonien d'un électron soumis au potentiel électrique d'un proton :

$$H = -\left[\frac{\hbar^2}{2\mu r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} r + \frac{1}{2\mu r^2} \mathbf{L}^2 - \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 r}\right] \quad (\text{A.1})$$

$\mathbf{L} = \mathbf{R} \wedge \mathbf{P}$  est le moment cinétique de l'électron et  $\mu = \frac{m_e m_p}{m_e + m_p}$  désigne la masse réduite de l'électron et du proton. Nous cherchons les fonctions d'ondes correspondant à une énergie électronique quantifiée  $E$ , solutions de l'équation :

$$H\psi(r, \theta, \phi) = E\psi(r, \theta, \phi) \quad (\text{A.2})$$

$H$  commute avec  $\mathbf{L}^2$  et  $L_z$ . Ces dernières observables ont pour fonctions propres les harmoniques sphériques  $Y_l^m(\theta, \phi)$  :

$$\begin{aligned} \mathbf{L}^2 Y_l^m(\theta, \phi) &= l(l+1)\hbar Y_l^m(\theta, \phi) \\ \mathbf{L}_z Y_l^m(\theta, \phi) &= m\hbar Y_l^m(\theta, \phi) \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

Les fonctions propres de  $H$  notées  $\psi$  peuvent donc s'écrire comme le produit d'une fonction "radiale" ne dépendant que de  $r$ , la distance de l'électron au noyau, et des harmoniques sphériques :

$$\psi(r, \theta, \phi) = R(r)Y_l^m(\theta, \phi)$$

A l'énergie propre  $E$  est associé le nombre quantique  $k$ . La composante radiale de l'équation A.2 montre que  $E$  dépend également de  $l$  :

$$-\left[\frac{\hbar^2}{2\mu r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} r + \frac{1}{2\mu r^2} l(l+1)\hbar - \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 r}\right]R(r) = E_{k,l}R(r) \quad (\text{A.4})$$

Les nombres quantiques  $k$ ,  $l$  et  $m$  définissent les valeurs propres des observables  $H$ ,  $\mathbf{L}^2$  et  $L_z$  :

$$\psi_{k,l,m}(r, \theta, \phi) = R_{k,l}(r)Y_l^m(\theta, \phi)$$

La résolution de l'équation A.4 conduit à écrire la fonction radiale comme un polynôme de Legendre multiplié par une fonction exponentielle décroissante. On retrouve le schéma de Bohr des niveaux d'énergie  $E_n = \frac{1}{n^2} \frac{\mu}{2\hbar^2} \left[\frac{q^2}{4\pi\epsilon_0}\right]^2$  avec  $n=k+l$ .

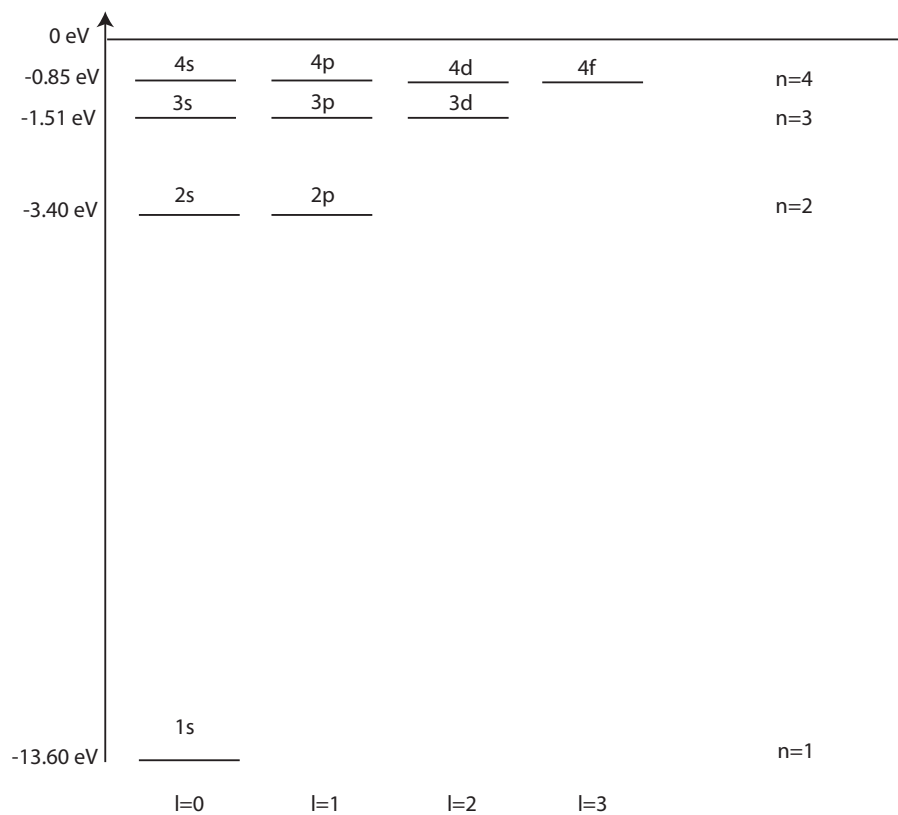


FIG. A.1 – Niveaux d'énergie de l'atome d'Hydrogène dans le modèle de Bohr.

## Fonctions radiales

Les fonctions radiales caractérisent le niveau énergétique. Comme  $n=k+l$ , nous les noterons par la suite  $R_{n,l}(r)$ . Rappelons qu'en coordonnées sphériques,  $r \geq 0$ . La table A.1 donne l'expression des fonctions radiales pour les niveaux s et p qui nous intéresseront par la suite en fonction du rayon de Bohr  $a_0 = 52.9177 pm$ .

$R_{3,0}(r) = \frac{2}{3(3a_0)^{3/2}} [3 - 6\frac{r}{3a_0} + 2(\frac{r}{3a_0})^2] e^{-r/3a_0}$	$R_{3,1}(r) = \frac{\sqrt{8}}{3(3a_0)^{5/2}} [2 - \frac{r}{3a_0}] r e^{-r/3a_0}$
$R_{2,0}(r) = \frac{2}{(2a_0)^{3/2}} (1 - \frac{r}{2a_0}) e^{-r/2a_0}$	$R_{2,1}(r) = \frac{1}{(2a_0)^{3/2} \sqrt{3}} \frac{r}{a_0} e^{-r/2a_0}$
$R_{1,0}(r) = \frac{2}{a_0^{3/2}} e^{-r/a_0}$	

## Harmoniques sphériques

Les harmoniques sphériques sont solutions des équations A.3. Elles sont fonctions propres de  $L^2$  et  $L_z$ . Leur parité est définie par  $l$  :

$$Y_l^m(\theta, -\phi) = (-1)^l Y_l^m(\theta, \phi) \quad (\text{A.5})$$

Par ailleurs :

$$Y_l^{m*}(\theta, \phi) = (-1)^m Y_l^{-m}(\theta, \phi) \quad (\text{A.6})$$

La relation de composition des harmoniques sphériques :

$$\int Y_{l_1}^{m_1} Y_{l_2}^{m_2} Y_{l_3}^{m_3} \sin(\theta) d\theta d\phi = (-1)^{m_3} \sqrt{\frac{(2l_1 + 1)(2l_2 + 1)}{4\pi(2l_3 + 1)}} \quad (\text{A.7})$$

est différente de zéro lorsque  $m_1 + m_2 + m_3 = 0$ , lorsqu'on peut former un triangle avec trois segments de longueur  $l_1$ ,  $l_2$  et  $l_3$ , et lorsque  $l_1 + l_2 - l_3$  est pair.

Les harmoniques sphériques pour  $l=1$  et  $l=0$  s'écrivent :

$Y_0^0(\theta, \phi) = \frac{1}{\sqrt{4\pi}}$
$Y_1^0(\theta, \phi) = \sqrt{\frac{3}{4\pi}} \cos(\theta)$
$Y_1^{\pm 1}(\theta, \phi) = \sqrt{\frac{3}{8\pi}} \sin(\theta) e^{\pm i\phi}$

Il est très utile pour la suite de réécrire les coordonnées cartésiennes en fonction des harmoniques sphériques :

$$\begin{aligned} x &= \sqrt{\frac{2\pi}{3}} r [Y_1^{-1}(\theta, \phi) - Y_1^1(\theta, \phi)] \\ y &= i \sqrt{\frac{2\pi}{3}} r [Y_1^{-1}(\theta, \phi) + Y_1^1(\theta, \phi)] \\ z &= \sqrt{\frac{4\pi}{3}} r Y_1^0(\theta, \phi) \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

## A.2 Structure fine de l'atome d'Hydrogène

L'Hamiltonien précédent ne décrit qu'approximativement la structure de l'atome d'hydrogène puisqu'il ne tient compte d'aucun effet relativiste notamment du spin. Dans le cas particulier de l'Hydrogène, les effet relativistes peuvent être pris en compte analytiquement. On obtient alors l'énergie des niveaux de structure fine. Celle-ci dépend de la constante de structure fine  $\alpha$ , de  $n$  et de  $j$  :

$$E_{n,j} = mc^2 \left[ \frac{1}{\sqrt{1 + \left( \frac{\alpha}{n-j-1/2 + \sqrt{(j+1/2)^2 - \alpha^2}} \right)^2}} - 1 \right]$$

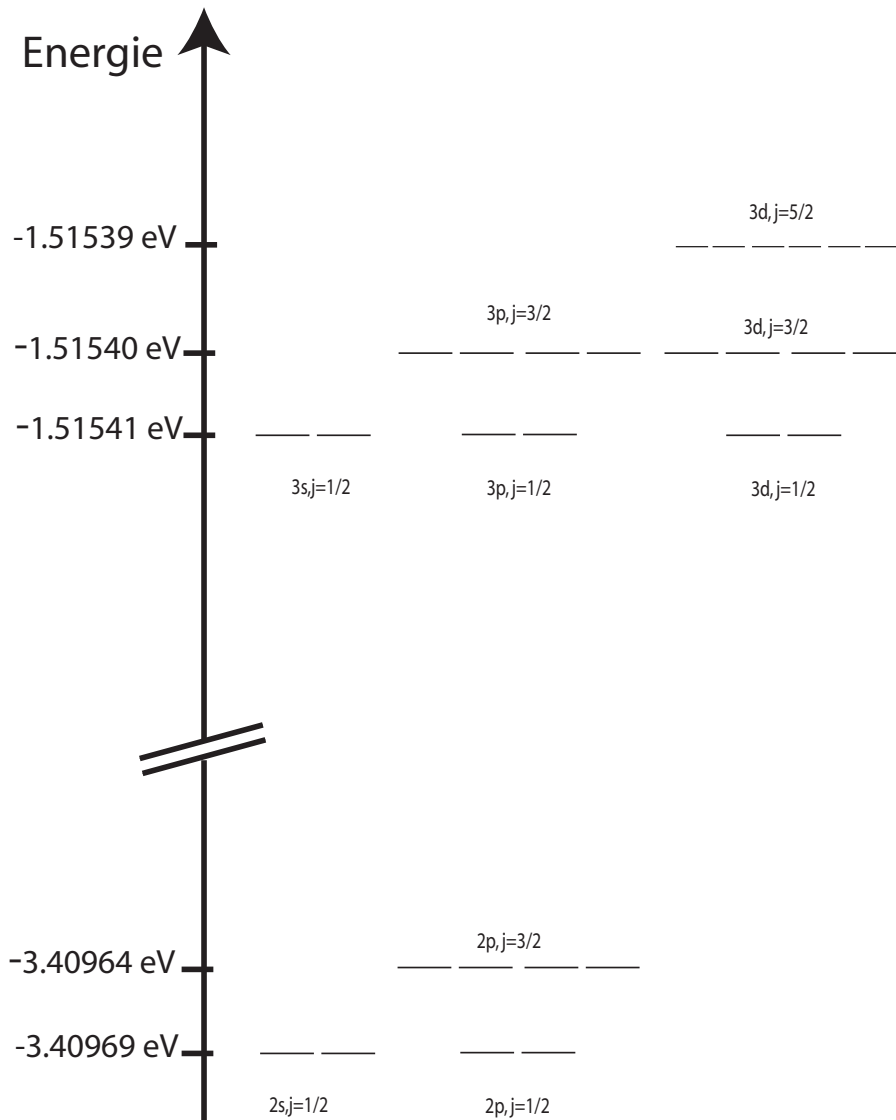


FIG. A.2 – Structure fine de l'atome d'Hydrogène pour  $n \in [1, 3]$  et  $l \in [0, 2]$ .



### A.3 Effet Zeeman

Pour un champ magnétique faible  $B_z$  s'appliquant sur un système décrit dans la base couplée définie par  $J$  et  $j_z$ , la levée de dégénérescence des niveaux de structure fine sous l'effet Zeeman correspond aux énergies calculées ci-dessous. Ici  $B_z$  est exprimé en Teslas.

$$\begin{aligned}\Delta E_{j_z} &= \frac{2l+2}{2l+1} \mu_B B_z j_z && \text{Pour } j=l+1/2 \\ \Delta E_{j_z} &= \frac{2l}{2l+1} \mu_B B_z j_z && \text{Pour } j=l-1/2\end{aligned}\tag{A.9}$$

Pour les niveaux  $s$  de nombres quantiques  $l=0$  et  $j=1/2$  :

$$\Delta E_{\pm 1/2} = \pm \mu_B B_z = \mp 5.7963 * 10^{-5} B_z eV\tag{A.10}$$

Pour les niveaux  $p$  de nombres quantiques  $l=1$  et  $j=1/2$

$$\Delta E_{\pm 1/2} = \pm \frac{1}{3} \mu_B B_z = \mp 1.9321 * 10^{-5} B_z eV\tag{A.11}$$

Pour les niveaux  $p$  de nombres quantiques  $l=1$  et  $j=3/2$

$$\begin{aligned}\Delta E_{\pm 1/2} &= \pm \frac{2}{3} \mu_B B_z = \mp 3.6842 * 10^{-5} B_z eV \\ \Delta E_{\pm 3/2} &= \pm 2 \mu_B B_z = \mp 11.5926 * 10^{-5} B_z eV\end{aligned}\tag{A.12}$$

La levée de dégénérescence due au couplage spin-orbite entre les niveaux  $3p_{j=3/2}$  et  $3p_{j=1/2}$  vaut  $1.34499 * 10^{-5}$  eV ;  $\Delta E$  dû au champ magnétique doit être bien plus faible que cette valeur. Nous ne pourrions donc pas considérer des champ magnétiques supérieurs à 0.05 Teslas.

### A.4 Transitions dipolaires électriques

Soit  $\mathbf{D} = q\mathbf{R}$  l'opérateur dipole électrique. Considérons tout d'abord l'effet de  $\mathbf{D}$  sur la base  $\psi_{n,l,m_l}$ .  $\mathbf{D}$  est un opérateur impair, il génère des transitions entre niveaux de l'atome d'Hydrogène en fonction de la parité de l'harmonique sphérique  $Y_l^m(\theta, \phi)$  associée à la fonctions d'onde  $\psi_{n,l,m_l}(r, \theta, \phi)$ .

Les règles de sélection pour les transitions générées par  $\mathbf{D}$  définissent les transitions dipolaires électriques :

$$\begin{aligned}\Delta l &= \pm 1 \\ \Delta l_z &= 0, \pm 1 \\ \Delta s_z &= 0\end{aligned}\tag{A.13}$$

Dans la base  $|l, s, j, j_z\rangle$  où  $l$  et  $s$  sont couplés, les règles de sélection deviennent :

$$\begin{aligned}\Delta j &= 0, \pm 1 \\ \Delta l &= \pm 1 \\ \Delta j_z &= 0, \pm 1\end{aligned}\tag{A.14}$$

## A.5 Transitions dipolaires magnétiques

Les transitions dipolaires magnétiques sont définies par leurs règles de sélection :

$$\begin{aligned}\Delta l &= 0 \\ \Delta l_z &= 0, \pm 1 \\ \Delta s_z &= 0, \pm 1\end{aligned}\tag{A.15}$$

Dans la base  $|l, s, J, m_J\rangle$  où  $l$  et  $s$  sont couplés, les règles de sélection deviennent :

$$\begin{aligned}\Delta j &= 0, \pm 1 \\ \Delta l &= 0 \\ \Delta j_z &= 0, \pm 1\end{aligned}\tag{A.16}$$

Ces transitions correspondent typiquement aux transitions induites par l'interaction entre le moment magnétique total de l'électron et un champ magnétique sinusoïdal  $\mathbf{B}_L$  :

$$W = -\frac{q}{2m}[\mathbf{L} + 2\mathbf{S}] \cdot \mathbf{B}_L\tag{A.17}$$

## A.6 Calcul des transitions en champ faible en jauge de Coulomb

L'Hamiltonien d'interaction avec le champ laser a été calculé à la section 2.2 :

$$H_{int} = -\frac{q}{m}\mathbf{\Pi} \cdot \mathbf{A}_L - \frac{q}{2m^2c^2}[(\mathbf{p} - q\mathbf{A}_M) \wedge \mathbf{S}] \cdot \mathbf{E}_L - \frac{q}{m}\mathbf{S} \cdot \mathbf{B}_L - \frac{iq\hbar}{4m^2c^2}\mathbf{S} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E}_L)$$

Avec l'opérateur moment cinétique  $\mathbf{\Pi} = \frac{m}{i\hbar}[\mathbf{R}, \mathbf{H}_0]$  :

$$\mathbf{\Pi} = \mathbf{p} - q\mathbf{A}_M + \frac{q}{2mc^2}\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i$$

Etudions les transitions générées par chaque terme de l'Hamiltonien d'interaction ainsi que l'ordre de grandeur des éléments de matrice associés. En considérant que  $\Lambda(t, \tau)$  est imaginaire pur, nous écrivons, dans le cas d'une polarisation circulaire :

$$\begin{aligned}\mathbf{A}_L &= [\Lambda(t, \tau)e^{-i\omega_L t} + \Lambda^*(t, \tau)e^{i\omega_L t}] \frac{\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y}{\sqrt{2}} \\ &= [\mathbf{\Lambda}(t, \tau)e^{-i\omega_L t} + \mathbf{\Lambda}^*(t, \tau)e^{i\omega_L t}]\end{aligned}\tag{A.18}$$

Le champ électrique associé est parallèle à  $\mathbf{A}_L$  dans la jauge de Coulomb. Son expression est :

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_L &= -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}_L \\ &= -\left[\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{\Lambda}(t, \tau)e^{-i\omega_L t} + \frac{\partial}{\partial t}\mathbf{\Lambda}^*(t, \tau)e^{i\omega_L t} - i\omega_L\mathbf{\Lambda}(t, \tau)e^{-i\omega_L t} + \mathbf{\Lambda}^*(t, \tau)i\omega_L e^{i\omega_L t}\right]\end{aligned}\tag{A.19}$$

Si les termes  $\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{\Lambda}(t, \tau)$  sont négligés :

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_L &= i\omega_L[\Lambda(t, \tau)e^{-i\omega_L t} - \Lambda^*(t, \tau)e^{i\omega_L t}]\frac{\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y}{\sqrt{2}} \\ &= [\epsilon(t, \tau)e^{-i\omega_L t} + \epsilon^*(t, \tau)e^{i\omega_L t}]\frac{\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y}{\sqrt{2}} \\ &= \epsilon(t, \tau)e^{-i\omega_L t} + \epsilon^*(t, \tau)e^{i\omega_L t}\end{aligned}\quad (\text{A.20})$$

D'où le passage entre  $\Lambda$  et  $\epsilon$  :

$$\begin{aligned}\epsilon(t, \tau) &= i\omega_L\Lambda(t, \tau) \\ \epsilon^*(t, \tau) &= -i\omega_L\Lambda^*(t, \tau)\end{aligned}\quad (\text{A.21})$$

Soit  $I_1 = \int dr r^2 R_{31} \frac{dR_{20}}{dr}$ ,  $I_2 = \int dr r^3 R_{31} R_{20}$ ,  $I_3 = \int dr R_{31} R_{20}$ .

### Terme $\mathbf{p}\cdot\mathbf{A}_L$ :

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  du laser :

$$\begin{aligned}\langle 4 | -\frac{q}{m}\mathbf{p}\cdot\mathbf{\Lambda} | 1 \rangle &= \frac{iq\hbar\Lambda\sqrt{2}}{m}I_1 = -1.05 * 10^{-13} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 7 | -\frac{q}{m}\mathbf{p}\cdot\mathbf{\Lambda} | 1 \rangle &= \langle 4 | -\frac{q}{m}\mathbf{p}\cdot\mathbf{\Lambda} | 1 \rangle \frac{1}{\sqrt{2}} = -7.43 * 10^{-14} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 8 | -\frac{q}{m}\mathbf{p}\cdot\mathbf{\Lambda} | 2 \rangle &= \langle 4 | -\frac{q}{m}\mathbf{p}\cdot\mathbf{\Lambda} | 1 \rangle \frac{\sqrt{3}}{\sqrt{2}} = -1.29 * 10^{-13} \frac{\epsilon}{\omega_L}\end{aligned}\quad (\text{A.22})$$

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  du laser :

$$\begin{aligned}\langle 3 | -\frac{q}{m}\mathbf{p}\cdot\mathbf{\Lambda} | 2 \rangle &= -1.05 * 10^{-13} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 6 | -\frac{q}{m}\mathbf{p}\cdot\mathbf{\Lambda} | 2 \rangle &= -7.43 * 10^{-14} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 5 | -\frac{q}{m}\mathbf{p}\cdot\mathbf{\Lambda} | 1 \rangle &= -1.29 * 10^{-13} \frac{\epsilon}{\omega_L}\end{aligned}\quad (\text{A.23})$$

### Terme $\mathbf{A}_M\cdot\mathbf{A}_L$ :

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  du laser :

$$\begin{aligned}\langle 4 | \frac{q^2}{m}\mathbf{A}_M\cdot\mathbf{\Lambda} | 1 \rangle &= \frac{iq^2 B \Lambda \sqrt{2}}{2m}I_2 = 3.23 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B \\ \langle 7 | \frac{q^2}{m}\mathbf{A}_M\cdot\mathbf{\Lambda} | 1 \rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} \langle 4 | \frac{q^2}{m}\mathbf{A}_M\cdot\mathbf{\Lambda} | 1 \rangle = 2.28 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B \\ \langle 8 | \frac{q^2}{m}\mathbf{A}_M\cdot\mathbf{\Lambda} | 2 \rangle &= \frac{\sqrt{3}}{\sqrt{2}} \langle 4 | \frac{q^2}{m}\mathbf{A}_M\cdot\mathbf{\Lambda} | 1 \rangle = 3.95 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B\end{aligned}\quad (\text{A.24})$$

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  du laser :

$$\begin{aligned}
\langle 3 | \frac{q^2}{m} \mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= -3.23 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B & (A.25) \\
\langle 6 | \frac{q^2}{m} \mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= 2.28 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B \\
\langle 5 | \frac{q^2}{m} \mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A} | 1 \rangle &= 3.95 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B
\end{aligned}$$

Terme  $[\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A}_L$  :

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  du laser :

$$\begin{aligned}
\langle 4 | -\frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 1 \rangle &= i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{8\pi\epsilon_0 m^2 c^2} I_3 [1 - 1] = 0 & (A.26) \\
\langle 7 | -\frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 1 \rangle &= i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{4\pi\epsilon_0 m^2 c^2} I_3 [\sqrt{2} + \frac{1}{\sqrt{2}}] = 5.81 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\
\langle 8 | -\frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= -i \frac{\sqrt{3} q^3 \hbar \Lambda}{4\pi\epsilon_0 m^2 c^2 \sqrt{2}} I_3 = -4.74 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L}
\end{aligned}$$

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  du laser :

$$\begin{aligned}
\langle 3 | -\frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{4\pi\epsilon_0 m^2 c^2} I_3 = 1.37 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L} & (A.27) \\
\langle 6 | -\frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{4\pi\epsilon_0 m^2 c^2} I_3 [\sqrt{2} - \frac{1}{\sqrt{2}}] = 1.94 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\
\langle 5 | -\frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 1 \rangle &= -4.74 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L}
\end{aligned}$$

Terme  $[\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \mathbf{E}_L$  :

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  du laser :

$$\begin{aligned}
\langle 4 | -\frac{q}{2m^2c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 1 \rangle &= -\frac{q \hbar^2 \epsilon \sqrt{2\pi}}{2\sqrt{2} m^2 c^2} I_1 \int \int \sin(\Theta) d\Theta d\phi & (A.28) \\
&\times \left[ \frac{\sqrt{2}}{3} Y_1^{-1} Y_1^1 Y_0^0 \langle \downarrow | \downarrow \rangle - \frac{\sqrt{2}}{3} Y_1^0 Y_1^0 Y_0^0 \langle \uparrow | \uparrow \rangle \right] \\
&= 0 \\
\langle 7 | -\frac{q}{2m^2c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 1 \rangle &= -\frac{q \hbar^2 \epsilon}{\sqrt{2} m^2 c^2} I_1 = 6.73 * 10^{-35} \epsilon \\
\langle 8 | -\frac{q}{2m^2c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 2 \rangle &= -\frac{\sqrt{3} q \hbar^2 \epsilon}{4m^2 c^2} I_1 = 4.12 * 10^{-35} \epsilon
\end{aligned}$$

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  du laser :

$$\begin{aligned}
\langle 3 | -\frac{q}{2m^2c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 2 \rangle &= -\frac{q \hbar^2 \epsilon}{\sqrt{2} m^2 c^2} I_1 = 6.73 * 10^{-35} \epsilon & (A.29) \\
\langle 6 | -\frac{q}{2m^2c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 2 \rangle &= 0 \\
\langle 5 | -\frac{q}{2m^2c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 1 \rangle &= -\frac{\sqrt{3} q \hbar^2 \epsilon}{4m^2 c^2} I_1 = 4.12 * 10^{-35} \epsilon
\end{aligned}$$

### Terme $[\mathbf{A}_M \wedge \mathbf{S}].\mathbf{E}_L$ :

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  du laser :

$$\begin{aligned} \langle 4 | \frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{A}_M \wedge \mathbf{S}].\boldsymbol{\epsilon} | 1 \rangle &= \frac{q^2 \hbar \epsilon}{2\sqrt{2}m^2c^2} I_2 = 1.04 * 10^{-39} B\epsilon \\ \langle 7 | \frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{A}_M \wedge \mathbf{S}].\boldsymbol{\epsilon} | 1 \rangle &= -\frac{q^2 \hbar \epsilon}{4m^2c^2} I_2 = -7.31 * 10^{-40} B\epsilon \\ \langle 8 | \frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{A}_M \wedge \mathbf{S}].\boldsymbol{\epsilon} | 2 \rangle &= \frac{\sqrt{3}q^2 \hbar \epsilon}{4m^2c^2} I_2 = 1.27 * 10^{-39} B\epsilon \end{aligned} \quad (\text{A.30})$$

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  du laser :

$$\begin{aligned} \langle 3 | \frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{A}_M \wedge \mathbf{S}].\boldsymbol{\epsilon} | 2 \rangle &= 1.04 * 10^{-39} B\epsilon \\ \langle 6 | \frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{A}_M \wedge \mathbf{S}].\boldsymbol{\epsilon} | 2 \rangle &= -7.31 * 10^{-40} B\epsilon \\ \langle 5 | \frac{q^2}{2m^2c^2} [\mathbf{A}_M \wedge \mathbf{S}].\boldsymbol{\epsilon} | 1 \rangle &= 1.27 * 10^{-39} B\epsilon \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

Ce terme pourra être négligé par la suite au vu des ordres de grandeur des éléments de la matrice d'interaction associés.

### Terme $\mathbf{S}.\mathbf{B}_L$ :

Ce terme génère des transitions de  $s_z$  vers  $s_z \pm 1$ . Par exemple entre les niveaux 1 et 2. Les éléments de matrice sont très faibles et correspondent à des fréquences de transitions très petites par rapport à la pulsation du laser. Nous ne les considérerons pas.

## A.7 Calcul des transitions en champ fort en jauge de Coulomb

Nous utilisons les mêmes notations que dans l'annexe A.6. Nous considérons ici la base quantique en champ fort définie dans la section 2.5.

### Terme $\mathbf{p}.\mathbf{A}_L$ :

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  du laser :

$$\begin{aligned} \langle 5 | -\frac{q}{m} \mathbf{p}.\boldsymbol{\Lambda} | 1 \rangle &= \frac{iq\hbar\Lambda\sqrt{2}}{m} I_1 = -1.29 * 10^{-13} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 8 | -\frac{q}{m} \mathbf{p}.\boldsymbol{\Lambda} | 2 \rangle &= \langle 4 | -\frac{q}{m} \mathbf{p}.\boldsymbol{\Lambda} | 1 \rangle = -1.29 * 10^{-13} \frac{\epsilon}{\omega_L} \end{aligned} \quad (\text{A.32})$$

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  du laser :

$$\begin{aligned} \langle 3 | -\frac{q}{m} \mathbf{p}.\boldsymbol{\Lambda} | 1 \rangle &= 1.29 * 10^{-13} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 6 | -\frac{q}{m} \mathbf{p}.\boldsymbol{\Lambda} | 2 \rangle &= 1.29 * 10^{-13} \frac{\epsilon}{\omega_L} \end{aligned} \quad (\text{A.33})$$

### Terme $\mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A}_L$ :

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  du laser :

$$\begin{aligned} \langle 5 | \frac{q^2}{m} \mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A} | 1 \rangle &= \frac{i q^2 B \Lambda \sqrt{3}}{2m} I_2 = 3.95 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B \\ \langle 8 | \frac{q^2}{m} \mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= \frac{i q^2 B \Lambda \sqrt{3}}{2m} I_2 = 3.95 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B \end{aligned} \quad (\text{A.34})$$

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  du laser :

$$\begin{aligned} \langle 3 | \frac{q^2}{m} \mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A} | 1 \rangle &= -\frac{i q^2 B \Lambda \sqrt{3}}{2m} I_2 = -3.95 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B \\ \langle 6 | \frac{q^2}{m} \mathbf{A}_M \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= -\frac{i q^2 B \Lambda \sqrt{3}}{2m} I_2 = -3.95 * 10^{-18} \frac{\epsilon}{\omega_L} B \end{aligned} \quad (\text{A.35})$$

### Terme $[\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A}_L$ :

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  du laser :

$$\begin{aligned} \langle 5 | -\frac{q^2}{2m^2 c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 1 \rangle &= -i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{4\pi \epsilon_0 m^2 c^2} \sqrt{\frac{3}{2}} I_3 = -1.67 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 7 | -\frac{q^2}{2m^2 c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 1 \rangle &= i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{4\pi \epsilon_0 m^2 c^2} \sqrt{3} I_3 = 2.37 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 8 | -\frac{q^2}{2m^2 c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{4\pi \epsilon_0 m^2 c^2} \sqrt{\frac{3}{2}} I_3 = 1.67 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L} \end{aligned} \quad (\text{A.36})$$

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  du laser :

$$\begin{aligned} \langle 3 | -\frac{q^2}{2m^2 c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 1 \rangle &= -i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{4\pi \epsilon_0 m^2 c^2} \sqrt{\frac{3}{2}} I_3 = -1.67 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 6 | -\frac{q^2}{2m^2 c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{4\pi \epsilon_0 m^2 c^2} \sqrt{\frac{3}{2}} I_3 = 1.67 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L} \\ \langle 4 | -\frac{q^2}{2m^2 c^2} [\mathbf{S} \wedge \mathbf{E}_i] \cdot \mathbf{A} | 2 \rangle &= -i \frac{q^3 \hbar \Lambda}{4\pi \epsilon_0 m^2 c^2} \sqrt{3} I_3 = -2.37 * 10^{-19} \frac{\epsilon}{\omega_L} \end{aligned} \quad (\text{A.37})$$

### Terme $[\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \mathbf{E}_L$ :

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_+$  du laser :

$$\begin{aligned} \langle 5 | -\frac{q}{2m^2 c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 1 \rangle &= -\frac{\sqrt{3} q \hbar^2 \epsilon}{4m^2 c^2} I_1 = 4.1 * 10^{-35} \epsilon \\ \langle 7 | -\frac{q}{2m^2 c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 1 \rangle &= -\frac{\sqrt{\frac{3}{2}} q \hbar^2 \epsilon}{2m^2 c^2} I_1 = 5.83 * 10^{-35} \epsilon \\ \langle 8 | -\frac{q}{2m^2 c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 2 \rangle &= \frac{\sqrt{3} q \hbar^2 \epsilon}{4m^2 c^2} I_1 = -4.1 * 10^{-35} \epsilon \end{aligned} \quad (\text{A.38})$$

Pour une polarisation circulaire  $\sigma_-$  du laser :

$$\begin{aligned}
\langle 6 | -\frac{q}{2m^2c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 2 \rangle &= \frac{\sqrt{3}q\hbar^2\epsilon}{4m^2c^2} I_1 = -4.1 * 10^{-35} \epsilon & (A.39) \\
\langle 4 | -\frac{q}{2m^2c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 2 \rangle &= \frac{\sqrt{\frac{3}{2}}q\hbar^2\epsilon}{2m^2c^2} I_1 = -5.83 * 10^{-35} \epsilon \\
\langle 3 | -\frac{q}{2m^2c^2} [\mathbf{p} \wedge \mathbf{S}] \cdot \boldsymbol{\epsilon} | 1 \rangle &= -\frac{\sqrt{3}q\hbar^2\epsilon}{4m^2c^2} I_1 = 4.1 * 10^{-35} \epsilon
\end{aligned}$$

## A.8 Opérateurs vectoriels

Un opérateur vectoriel  $\mathbf{V}$  est tel que lors d'une rotation infinitésimale  $\mathbf{V} \cdot \mathbf{u}$  se transforme en  $\mathbf{V} \cdot \mathbf{u}'$  où  $\mathbf{u}'$  est le transformé de  $\mathbf{u}$  par la rotation infinitésimale.

Soit  $\mathbf{J}$ , le moment cinétique total du système, alors  $\mathbf{V}$  obéit aux relations de commutations suivantes :

$$\begin{aligned}
[J_x, V_x] &= 0 & (A.40) \\
[J_x, V_y] &= i\hbar V_z \\
[J_x, V_z] &= i\hbar V_y
\end{aligned}$$

Ainsi qu'à toutes celles qui s'en déduisent par permutations circulaires.

Pour un opérateur vectoriel  $\mathbf{V}$  où  $V_{\pm} = V_x \pm iV_y$  les règles de transition sont :

$$\begin{aligned}
V_z &\rightarrow \Delta j_z = 0 & (A.41) \\
V_+ &\rightarrow \Delta j_z = +1 \\
V_- &\rightarrow \Delta j_z = -1
\end{aligned}$$

### Opérateur de spin

Rappelons l'écriture des opérateurs de spin :

$$\begin{aligned}
S_x &= \frac{S_+ + S_-}{2} & (A.42) \\
S_y &= \frac{S_+ - S_-}{2i} \\
S_z |\uparrow\rangle &= \frac{\hbar}{2} |\uparrow\rangle \\
S_z |\downarrow\rangle &= -\frac{\hbar}{2} |\downarrow\rangle \\
S_- |\uparrow\rangle &= \hbar |\downarrow\rangle \\
S_- |\downarrow\rangle &= 0 \\
S_+ |\downarrow\rangle &= \hbar |\uparrow\rangle \\
S_+ |\uparrow\rangle &= 0
\end{aligned}$$

# Annexe B

## Formalisme de Liouville : relaxations et solution analytique au 3<sup>e</sup> ordre

Cette partie a été rédigée à partir des références suivantes : [101],[78], [79], [102]. Considérons différents types de relaxations  $i\partial_t\rho_{nm}|_{relaxation}$  :

$$i\partial_t\rho_{nm} = \frac{1}{\hbar}[H_0 - \vec{V} \cdot \vec{E}_{laser}, \rho]_{nm} + i\partial_t\rho_{nm}|_{relaxation} \quad (\text{B.1})$$

### B.1 Relaxation transverses

Les relaxations des cohérences sont appelées relaxations transverses. Le modèle phénoménologique le plus simple consiste à écrire :

$$\partial_t\rho_{nm}|_{relaxation} = -\gamma_{nm}\rho_{nm} \quad (\text{B.2})$$

Il faut  $\gamma_{nm} = \gamma_{mn}$  pour assurer le caractère hermitien de la matrice densité. L'état d'équilibre des cohérences correspond à des cohérences nulles.

### B.2 Relaxation longitudinales

Les relaxations des populations sont appelées relaxations longitudinales.

#### Modèle uni-niveau

Le cas le plus simple consiste à considérer que la relaxations s'effectue pour un niveau vers son état d'équilibre.

$$\partial_t\rho_{nn}|_{relaxation} = -\gamma_{nn}(\rho_{nn} - \rho_{nn}^{(0)}) \quad (\text{B.3})$$

Pour conserver la trace de la matrice densité il faut alors que tous les taux de relaxation  $\gamma_{nn}$  soient identiques. Pour que les populations soient positives il faut que  $\gamma_{nn}$  soit positif. Pour que  $|\rho_{jk}(t)| \leq \sqrt{\rho_{jj}(t)\rho_{kk}(t)}$  il suffit que  $2\gamma_{jk} - \gamma_{jj} - \gamma_{kk} > 0$



## Modèle en cascade

Ce modèle n'autorise que les relaxations vers les niveaux inférieurs. Il dépend de la population des autres niveaux.

$$\partial_t \rho_{nn|relaxation} = \sum_{l>n} -\Gamma_{ln}(\rho_{ll} - \rho_{ll}^{(0)}) - \sum_{l<n} \Gamma_{lj}(\rho_{jj} - \rho_{jj}^{(0)}) \quad (\text{B.4})$$

Ce modèle conserve la trace de la matrice densité. Pour que les populations soient positives il faut que  $\gamma$  soit positif. Pour que  $|\rho_{jk}(t)| \leq \sqrt{\rho_{jj}(t)\rho_{kk}(t)}$  il faut que  $2\gamma_{jk} \geq \sum_{l<j} \Gamma_{lj} + \sum_{l<k} \Gamma_{lk}$

## Modèle de l'équation maîtresse de Pauli

Ce modèle autorise les relaxations vers tous les niveaux.

$$\begin{aligned} \partial_t \rho_{nn|relaxation} &= \sum_{l \neq n} W_{ln} \rho_{ll} - \sum_{l \neq n} W_{nl} \rho_{nn} \\ W_{nl} &= W_{ln} e^{\frac{E_l - E_n}{kT}} \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

A l'équilibre on obtient alors :

$$\rho_{nn}^{(0)} = \frac{e^{-\frac{E_n}{kT}}}{\sum_l e^{-\frac{E_l}{kT}}} \quad (\text{B.6})$$

Ce modèle conserve la trace de la matrice densité. Pour que les populations soient positives il faut que  $W$  soit positif. Pour que  $|\rho_{jk}(t)| \leq \sqrt{\rho_{jj}(t)\rho_{kk}(t)}$  il faut que  $2\gamma_{jk} \geq \sum_{l<j} \gamma_{lj} + \sum_{l<k} \gamma_{lk} - \sqrt{W_{jk}W_{kj}}$

## B.3 Solution analytique pour le mélange d'ondes avec des impulsions de Dirac et une polarisation linéaire. Cas du système à 8 niveaux.

Nous résolvons ici les équations de la section précédente à l'ordre trois pour trois impulsions de Dirac  $\delta(t - t_1)$ ,  $\delta(t - t_2)$  et  $\delta(t - t_3)$  interagissant avec le système aux instants  $t_1 \leq t_2 \leq t_3$ . Dans la suite nous considérerons deux cas :

En champ fort :  $l=1$  et  $n,m,k \in \{3, 5, 7\}$  ou  $l=2$  et  $n,m,k \in \{4, 6, 8\}$

En champ faible :  $l=1$  et  $n,m,k \in \{4, 5, 7\}$  ou  $l=2$  et  $n,m,k \in \{3, 6, 8\}$

A l'ordre 1 après l'impulsion  $\delta(t - t_1)\epsilon$ , nous obtenons :

$$\tilde{\rho}_{nl}^{(1)}(y) = \frac{i}{2\hbar} e^{i[\omega_L - \omega_{nl} + \frac{\gamma}{T_{nl}}](y - t_1)} \Theta(y - t_1) v_{nl} \rho_{ll}^{(0)} \epsilon$$

A l'ordre 1 après l'impulsion  $\delta(t - t_1)\epsilon^*$ , nous obtenons :

$$\tilde{\rho}_{ln}^{(1)}(y) = -\frac{i}{2\hbar} e^{-i[\omega_L - \omega_{ln} - \frac{i}{T_{nl}}](y-t_1)} \Theta(y - t_1) v_{ln} \rho_{ll}^{(0)} \epsilon^*$$

A l'ordre 2 après l'impulsion  $\delta(t - t_2)\epsilon^*$ , nous obtenons :

$$\begin{aligned} \Delta n_{nl}^{(2)}(y'') &= [2|v_{nl}|^2 e^{i[\omega_L - \omega_{nl} + \frac{i}{T_{nl}}](t_2-t_1)} + |v_{ml}|^2 e^{i[\omega_L - \omega_{ml} + \frac{i}{T_{ml}}](t_2-t_1)} + |v_{kl}|^2 e^{i[\omega_L - \omega_{kl} + \frac{i}{T_{kl}}](t_2-t_1)}] \\ &\quad \times \frac{1}{4\hbar^2} e^{-\frac{y''}{T_1}} \Theta(y'' - t_2) \Theta(t_2 - t_1) \rho_{ll}^{(0)} \epsilon^* \epsilon \\ \rho_{nm}^{(2)}(y'') &= \frac{1}{4\hbar^2} e^{-[i\omega_{nm} + \frac{1}{T_{nm}}](y''-t_2)} v_{lm} v_{nl} \Theta(y'' - t_2) \Theta(t_2 - t_1) \rho_{ll}^{(0)} \epsilon^* \epsilon \\ \rho_{ll}^{(2)}(y'') &= -\frac{1}{4} [\Delta n_{nl}^{(2)} + \Delta n_{kl}^{(2)} + \Delta n_{ml}^{(2)}] \end{aligned}$$

A l'ordre 2 après l'impulsion  $\delta(t - t_2)\epsilon$ , nous obtenons :

$$\begin{aligned} \Delta n_{nl}^{(2)}(y'') &= [2|v_{nl}|^2 e^{-i[\omega_L - \omega_{ln} - \frac{i}{T_{nl}}](t_2-t_1)} + |v_{ml}|^2 e^{-i[\omega_L - \omega_{lm} - \frac{i}{T_{ml}}](t_2-t_1)} \\ &\quad + |v_{kl}|^2 e^{-i[\omega_L - \omega_{lk} + \frac{i}{T_{kl}}](t_2-t_1)}] \frac{1}{4\hbar^2} e^{-\frac{(y''-t_2)}{T_1}} \Theta(y'' - t_2) \Theta(t_2 - t_1) \rho_{ll}^{(0)} \epsilon \epsilon^* \\ \rho_{nm}^{(2)}(y'') &= \frac{1}{4\hbar^2} e^{-[i\omega_{nm} + \frac{1}{T_{nm}}](y''-t_2)} v_{lm} v_{nl} \Theta(y'' - t_2) \Theta(t_2 - t_1) \rho_{ll}^{(0)} \epsilon \epsilon^* \\ \rho_{ll}^{(2)}(y'') &= -\frac{1}{4} [\Delta n_{nl}^{(2)} + \Delta n_{kl}^{(2)} + \Delta n_{ml}^{(2)}] \\ &= -[|v_{nl}|^2 e^{-i[\omega_L - \omega_{nl} - \frac{i}{T_{nl}}](t_2-t_1)} + |v_{ml}|^2 e^{-i[\omega_L - \omega_{ml} - \frac{i}{T_{ml}}](t_2-t_1)} \\ &\quad + |v_{kl}|^2 e^{-i[\omega_L - \omega_{kl} - \frac{i}{T_{kl}}](t_2-t_1)}] \frac{1}{4\hbar^2} e^{-\frac{(y''-t_2)}{T_1}} \Theta(y'' - t_2) \Theta(t_2 - t_1) \rho_{ll}^{(0)} \epsilon \epsilon^* \end{aligned}$$

A l'ordre 3 après l'impulsion  $\delta(t - t_3)\epsilon$ , pour la combinaison  $\epsilon\epsilon^*\epsilon$  nous obtenons :

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{nl}^{(3)}(y''', \tau) &= \frac{-i}{8\hbar^3} e^{i(\omega_L - \omega_{nl})(y'''-t_3) - \frac{y'''-t_3}{T_{nl}}} \Theta(y''' - t_3) \Theta(t_3 - t_2) \Theta(t_2 - t_1) v_{nl} e^{-\frac{t_3-t_2}{T_1}} 2\rho_{ll}^{(0)} \epsilon \epsilon^* \epsilon \\ &\quad \times [2|v_{nl}|^2 e^{i[\omega_L - \omega_{nl} + \frac{i}{T_{nl}}](t_2-t_1)} + |v_{ml}|^2 e^{i[\omega_L - \omega_{ml} + \frac{i}{T_{ml}}](t_2-t_1)} + |v_{kl}|^2 e^{i[\omega_L - \omega_{kl} + \frac{i}{T_{kl}}](t_2-t_1)}] \end{aligned}$$

A l'ordre 3 après l'impulsion  $\delta(t - t_3)\epsilon$ , pour la combinaison  $\epsilon\epsilon\epsilon^*$  nous obtenons :

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{nl}^{(3)}(y''', \tau) = & \frac{-2}{8\hbar^3} e^{i(\omega_L - \omega_{nl})(y''' - t_3) - \frac{y'''}{T_{nl}} - t_3} \Theta(y''' - t_3) \Theta(t_3 - t_2) \Theta(t_2 - t_1) \rho_{11}^{(0)} \epsilon \epsilon \epsilon^* v_{nl} e^{-\frac{t_3 - t_2}{T_1}} 2 \\ & \times [2|v_{nl}|^2 e^{-i[\omega_L - \omega_{ln} - \frac{i}{T_{nl}}](t_2 - t_1)} + |v_{ml}|^2 e^{-i[\omega_L - \omega_{lm} - \frac{i}{T_{ml}}](t_2 - t_1)} \\ & + |v_{kl}|^2 e^{-i[\omega_L - \omega_{lk} - \frac{i}{T_{kl}}](t_2 - t_1)}] \end{aligned}$$

## B.4 Principe du code

Nous avons schématisé ici la structure du code Fortran parallélisé avec openMP qui permet d'obtenir la dynamique de l'intensité, de la réponse magnéto-optique et de l'aimantation jusqu'au troisième ordre de perturbation.

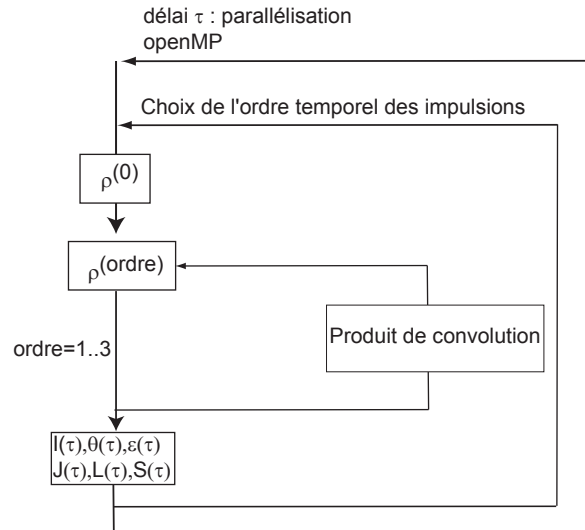


FIG. B.1 – Le code est formé d'une triple boucle : le choix du délai pomp-sonde, le choix de la séquence d'impulsions (terme de populations, PPFID ou PPC) et le calcul de la matrice densité à l'ordre trois.

## Bibliographie

- [1] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel. *Physical Review Letters*, 76(22) :4250, May 1996.
- [2] W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom, and J. Bokor. Electron thermalization in gold. *Physical Review B*, 46(20) :13592–13595, November 1992.
- [3] Rogier H. M. Groeneveld, Rudolf Sprik, and Ad Lagendijk. Femtosecond spectroscopy of electron-electron and electron-phonon energy relaxation in ag and au. *Physical Review B*, 51(17) :11433–11445, May 1995.
- [4] G. P. Zhang and W. Huebner. Laser-Induced ultrafast demagnetization in ferromagnetic metals. *Physical Review Letters*, 85(14) :3025, October 2000.
- [5] C. Boeglin, E. Beaurepaire, V. Halte, V. Lopez-Flores, C. Stamm, N. Pontius, H. A. Durr, and J.-Y. Bigot. Distinguishing the ultrafast dynamics of spin and orbital moments in solids. *Nature*, 465(7297) :458–461, May 2010.
- [6] Jean-Yves Bigot, Mircea Vomir, and Eric Beaurepaire. Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses. *Nat Phys*, 5(7) :515–520, 2009.
- [7] Andrei Kirilyuk, Alexey V. Kimel, and Theo Rasing. Ultrafast optical manipulation of magnetic order. *Rev. Mod. Phys.*, 82 :2731–2784, Sep 2010.
- [8] E. Carpene, E. Mancini, C. Dallera, M. Brenna, E. Puppini, and S. De Silvestri. Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron films. *Phys. Rev. B*, 78 :174422, Nov 2008.
- [9] M. Battiato, K. Carva, and P. M. Oppeneer. Superdiffusive spin transport as a mechanism of ultrafast demagnetization. *Physical Review Letters*, 105(2) :027203, July 2010.
- [10] B. Koopmans, J. J. M. Ruigrok, F. Dalla Longa, and W. J. M. de Jonge. Unifying ultrafast magnetization dynamics. *Physical Review Letters*, 95(26) :267207, December 2005.
- [11] Michael Krauß, Tobias Roth, Sabine Alebrand, Daniel Steil, Mirko Cinchetti, Martin Aeschlimann, and Hans Christian Schneider. Ultrafast demagnetization of ferromagnetic transition metals : The role of the coulomb interaction. *Phys. Rev. B*, 80 :180407, Nov 2009.
- [12] Petros N. Argyres. Theory of the faraday and kerr effects in ferromagnetics. *Physical Review*, 97(2) :334, January 1955.
- [13] Herbert S. Bennett and Edward A. Stern. Faraday effect in solids. *Phys. Rev.*, 137(2A) :A448–A461, Jan 1965.
- [14] P. M. Oppeneer, V. N. Antonov, T. Kraft, H. Eschrig, A. N. Yaresko, and A. Y. Perlov. Calculated magneto-optical Kerr spectra of  $XPt_3$  compounds (X = V, Cr, Mn, Fe and Co). *Journal of Physics Condensed Matter*, 8 :5769–5780, July 1996.
- [15] C.H. Brito Cruz, J.P. Gordon, P.C. Becker, R.L. Fork, and C.V. Shank. Dynamics of spectral hole burning. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 24(2) :261 –269, February 1988.

- [16] G. P. Zhang, W. Hubner, Georgios Lefkidis, Yihua Bai, and Thomas F. George. Paradigm of the time-resolved magneto-optical kerr effect for femtosecond magnetism. *Nat Phys*, 5(7) :499–502, July 2009.
- [17] Karel Carva, Marco Battiato, and Peter M. Oppeneer. Is the controversy over femtosecond magneto-optics really solved? *Nature Physics*, 7 :665–665, September 2011.
- [18] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001)fe/(001)cr magnetic superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 61 :2472–2475, Nov 1988.
- [19] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Phys. Rev. B*, 39 :4828–4830, Mar 1989.
- [20] A. Laraoui, M. Albrecht, and J.-Y. Bigot. Femtosecond magneto-optical kerr microscopy. *Optics Letters*, 32(8) :936–938, April 2007.
- [21] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing. All-optical magnetic recording with circularly polarized light. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :047601, Jul 2007.
- [22] M B Agranat, S I Ashitkov, A B Granovskii, and G I Rukman. Interaction of picosecond laser pulses with the electron, spin and phonon subsystems of nickel. *Sov. Phys. JETP.*, 59(4) :804–806, Apr. 1984.
- [23] A. Vaterlaus, D. Guarisco, M. Lutz, M. Aeschlimann, M. Stampanoni, and F. Meier. Different spin and lattice temperatures observed by spin polarized photoemission with picosecond laser pulses. *Journal of Applied Physics*, 67(9) :5661 –5663, may 1990.
- [24] A. Herpin. Le champ moléculaire. *Journal de physique*, Colloque C 1, supplément au no 2-3(Tome 32) :C 1 – 4, Février-Mars 1971.
- [25] W. Heisenberg. Zur theorie des ferromagnetismus. *Zeitschrift fr Physik A Hadrons and Nuclei*, 49 :619–636, 1928. 10.1007/BF01328601.
- [26] Edmund C. Stoner. Collective electron ferromagnetism. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 165(922) :372–414, 1938.
- [27] J. C. Slater. Electronic structure of alloys. *Journal of Applied Physics*, 8(6) :385–390, jun 1937.
- [28] T. Moriya. Recent progress in the theory of itinerant electron magnetism. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 14(1) :1 – 46, 1979.
- [29] A. Scholl, L. Baumgarten, R. Jacquemin, and W. Eberhardt. Ultrafast spin dynamics of ferromagnetic thin films observed by fs spin-resolved two-photon photoemission. *Phys. Rev. Lett.*, 79 :5146–5149, Dec 1997.
- [30] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, 240(826) :pp. 599–642, 1948.

- [31] J. H. van Vleck. On the anisotropy of cubic ferromagnetic crystals. *Phys. Rev.*, 52 :1178–1198, Dec 1937.
- [32] J.-P. Castéra. Effets et matériaux magnéto-optiques. *Base documentaire électro-nique des Techniques de l'Ingénieur*, 1997.
- [33] HR Hulme. The faraday effect in ferromagnetics. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, 135(826) :237, 1932.
- [34] J. Callaway and J. Callaway. *Quantum theory of the solid state*, volume B. Academic Press New York, 1974.
- [35] Collectif. *Introduction a l'électrodynamique quantique*. EDP Sciences, January 1987.
- [36] P. Bruno, Y. Suzuki, and C. Chappert. Magneto-optical kerr effect in a paramagnetic overlayer on a ferromagnetic substrate : A spin-polarized quantum size effect. *Phys. Rev. B*, 53 :9214–9220, Apr 1996.
- [37] LE GALL, H. Spin-photon interactions in magnetic crystals, magneto-optical and related effects. *J. Phys. Colloques*, 32 :C1–590–C1–598, 1971.
- [38] H Ebert. Magneto-optical effects in transition metal systems. *Reports on Progress in Physics*, 59(12) :1665, 1996.
- [39] T. Kraft, P. M. Oppeneer, V. N. Antonov, and H. Eschrig. Relativistic calculations of the magneto-optical kerr spectra in (001) and (111) us, use, and ute. *Phys. Rev. B*, 52 :3561–3570, Aug 1995.
- [40] L.Bertrand. Notes de cours. In Ecole Polytechnique de Montreal, editor, *Lasers*, [www.cours.polymtl.ca/phs3202](http://www.cours.polymtl.ca/phs3202), 2000.
- [41] Guoping Zhang, Wolfgang Hübner, Eric Beaurepaire, and Jean-Yves Bigot. Laser-Induced ultrafast demagnetization : Femtomagnetism, a new frontier ? In Burkard Hillebrands and Kamel Ounadjela, editors, *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures I*, volume 83, pages 245–289. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg.
- [42] JT Wang, S. Hall, Y. Zhen, and DS Guo. Accurate formulation of faraday, magnetic circular dichroism (mcd) and kerr effect of light in ferroelectromagnet. *Journal of superconductivity and novel magnetism*, 23(6) :1155–1160, 2010.
- [43] C.-K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli, E. P. Ippen, and J. G. Fujimoto. Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold. *Physical Review B*, 50(20) :15337–15348, November 1994.
- [44] N. Del Fatti, R. Bouffanais, F. Vallée, and C. Flytzanis. Nonequilibrium electron interactions in metal films. *Physical Review Letters*, 81(4) :922–925, July 1998.
- [45] Bigot Jean-Yves. Femtosecond magneto-optical processes in metals. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IV - Physics*, 2(10) :1483–1504, December 2001.
- [46] E. Carpenne. Ultrafast laser irradiation of metals : Beyond the two-temperature model. *Phys. Rev. B*, 74 :024301, Jul 2006.

- [47] Guray Tas and Humphrey J. Maris. Electron diffusion in metals studied by picosecond ultrasonics. *Physical Review B*, 49(21) :15046–15054, June 1994.
- [48] C. Suarez, W. E. Bron, and T. Juhasz. Dynamics and transport of electronic carriers in thin gold films. *Physical Review Letters*, 75(24) :4536–4539, December 1995.
- [49] Vitalyi E. Gusev and Oliver B. Wright. Ultrafast nonequilibrium dynamics of electrons in metals. *Physical Review B*, 57(5) :2878–2888, February 1998.
- [50] Charles Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. Wiley, 8 edition, November 2004.
- [51] Y. Guillet. *Dynamique de la rponse optique non-linaire ultra-rapide d'une assemble de nanoparticules d'or*. PhD thesis, UPMC, <http://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/27/30/02/PDF/ManuscritYGuillet.pdf>, dec. 2007.
- [52] Luca Guidoni, Eric Beaurepaire, and Jean-Yves Bigot. Magneto-optics in the ultrafast regime : Thermalization of spin populations in ferromagnetic films. *Physical Review Letters*, 89(1) :017401, June 2002.
- [53] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fahnle, T. Roth, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann. Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization. *Nat Mater*, 9(3) :259–265, March 2010.
- [54] I. Radu, G. Woltersdorf, M. Kiessling, A. Melnikov, U. Bovensiepen, J.-U. Thiele, and C. H. Back. Laser-Induced magnetization dynamics of Lanthanide-Doped permalloy thin films. *Physical Review Letters*, 102(11) :117201, March 2009.
- [55] C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, R. Mitzner, T. Quast, K. Holldack, S. Khan, C. Lupulescu, E. F. Aziz, M. Wietstruk, H. A. Durr, and W. Eberhardt. Femtosecond modification of electron localization and transfer of angular momentum in nickel. *Nat Mater*, 6(10) :740–743, October 2007.
- [56] W. Hübner and G. P. Zhang. Ultrafast spin dynamics in nickel. *Phys. Rev. B*, 58 :R5920–R5923, Sep 1998.
- [57] B Koopmans, M van Kampen, and W J M de Jonge. Experimental access to femtosecond spin dynamics. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 15(5) :S723, 2003.
- [58] E. Carpena, E. Mancini, C. Dallera, M. Brenna, E. Puppini, and S. De Silvestri. Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron films. *Phys. Rev. B*, 78 :174422, Nov 2008.
- [59] Lukasz Cywinski and L. J. Sham. Ultrafast demagnetization in the *sp-d* model : A theoretical study. *Phys. Rev. B*, 76 :045205, Jul 2007.
- [60] M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. Real space trajectory of the ultrafast magnetization dynamics in ferromagnetic metals. *Physical Review Letters*, 94(23) :237601, June 2005.
- [61] J.Y. Bigot, M. Vomir, LHF Andrade, and E. Beaurepaire. Ultrafast magnetization dynamics in ferromagnetic cobalt : The role of the anisotropy. *Chemical physics*, 318(1-2) :137–146, 2005.

- [62] O. Chubykalo-Fesenko, U. Nowak, R. W. Chantrell, and D. Garanin. Dynamic approach for micromagnetics close to the curie temperature. *Phys. Rev. B*, 74 :094436, Sep 2006.
- [63] P M Oppeneer and A Liebsch. Ultrafast demagnetization in ni : theory of magneto-optics for non-equilibrium electron distributions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 16 :5519–5530, August 2004.
- [64] A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov, and Th. Rasing. Ultrafast non-thermal control of magnetization by instantaneous photomagnetic pulses. *Nature*, 435(7042) :655–657, June 2005.
- [65] Fredrik Hansteen, Alexey Kimel, Andrei Kirilyuk, and Theo Rasing. Nonthermal ultrafast optical control of the magnetization in garnet films. *Phys. Rev. B*, 73 :014421, Jan 2006.
- [66] P. S. Pershan, J. P. van der Ziel, and L. D. Malmstrom. Theoretical discussion of the inverse faraday effect, raman scattering, and related phenomena. *Phys. Rev.*, 143 :574–583, Mar 1966.
- [67] J. P. van der Ziel, P. S. Pershan, and L. D. Malmstrom. Optically-induced magnetization resulting from the inverse faraday effect. *Phys. Rev. Lett.*, 15 :190–193, Aug 1965.
- [68] D. Popova, A. Bringer, and S. Blügel. Theory of the inverse faraday effect in view of ultrafast magnetization experiments. *Physical Review B*, 84(21) :214421, 2011.
- [69] Y. Hirschberger. Dynamique quantique relativiste d’un électron soumis à des impulsions laser breves et intenses. Master’s thesis, Université De Strasbourg, 2009.
- [70] Leslie L. Foldy and Siegfried A. Wouthuysen. On the dirac theory of spin 1/2 particles and its Non-Relativistic limit. *Physical Review*, 78(1) :29, April 1950.
- [71] Francois A Reuse. *Electrodynamique et optique quantiques*. PPUR, November 2007.
- [72] R.M. White and B. Bayne. *Quantum theory of magnetism*, volume 32. Springer-Verlag, 1983.
- [73] L.I. Schiff. Quantum mechanics. *American Journal of Physics*, 24 :118–118, 1956.
- [74] Jürg Fröhlich and Urban M. Studer. Gauge invariance and current algebra in non-relativistic many-body theory. *Reviews of Modern Physics*, 65(3) :733, July 1993.
- [75] Y. Hirschberger and P.A. Hervieux. Foldy–wouthuysen transformation applied to the interaction of an electron with ultrafast electromagnetic fields. *Physics Letters A*, 2012.
- [76] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloë. *Mécanique quantique II*. Hermann, October 1997.
- [77] Manuel Joffre. Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde.
- [78] Robert W. Boyd. *Nonlinear Optics, Third Edition*. Academic Press, 3 edition, April 2008.



- [79] Shaul Mukamel. *Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy*. Oxford University Press, USA, April 1999.
- [80] Y. R. Shen. *Principles of Nonlinear Optics*. Wiley-Interscience, first edition edition, May 1984.
- [81] A. M. Weiner, S. De Silvestri, and E. P. Ippen. Three-pulse scattering for femtosecond dephasing studies : theory and experiment. *Journal of the Optical Society of America B*, 2(4) :654–662, April 1985.
- [82] Jose-Philippe Perez. *Optique : Fondements et applications*. Dunod, 7e edition edition, August 2004.
- [83] AV Kimel, F. Bentivegna, VN Gridnev, VV Pavlov, RV Pisarev, and T. Rasing. Room-temperature ultrafast carrier and spin dynamics in gaas probed by the photoinduced magneto-optical kerr effect. *Physical Review B*, 63(23) :235201, 2001.
- [84] JH Versluis, AV Kimel, VN Gridnev, DR Yakovlev, G. Karczewski, T. Wojtowicz, J. Kossut, A. Kirilyuk, and T. Rasing. Photoinduced magneto-optical kerr effect and ultrafast spin dynamics in cdte/cdmgte quantum wells during excitation by shaped laser pulses. *Physical Review B*, 80(23) :235326, 2009.
- [85] J. Chovan, EG Kavousanaki, and IE Perakis. Ultrafast light-induced magnetization dynamics of ferromagnetic semiconductors. *Physical review letters*, 96(5) :57402, 2006.
- [86] M. D. Kapetanakis, P. C. Lingos, C. Piermarocchi, J. Wang, and I. E. Perakis. All-optical four-state magnetization reversal in (ga,mn)as ferromagnetic semiconductors. *Applied Physics Letters*, 99(9) :091111, 2011.
- [87] A.H. Morrish. *The physical principles of magnetism*, volume 246. Wiley New York, 1965.
- [88] W. Hübner G. Zhang, G. Lefkidis and Y. Bai. Manipulating femtosecond magnetization in ferromagnets and molecular magnets through laser chirp. In *56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials*, 2011.
- [89] F. Bertaut and F. Forrat. Comptes rendus 242 (1956) 382. *F. Bertaut, F. Forrat, A. Herpin and P. Meriel : Comptes rendus*, 243 :898, 1956.
- [90] W. Wettling. Magneto-optics of ferrites. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 3(1-2) :147–160, 1976.
- [91] C. Kittel. Theory of ferromagnetic resonance in rare earth garnets. iii. giant anisotropy anomalies. *Phys. Rev.*, 117 :681–687, Feb 1960.
- [92] V Joch, P Molho, and L Ranno. Magnetization processes in a dot of ferrimagnetic garnet near the compensation temperature. *Journal of Physics : Conference Series*, 303 :012006, July 2011.
- [93] Darwin L. Wood and Kurt Nassau. Optical properties of gadolinium gallium garnet. *Applied Optics*, 29(25) :3704–3707, 1990.
- [94] W. A. Crossley, R. W. Cooper, J. L. Page, and R. P. van Staple. Faraday rotation in rare-earth iron garnets. *Phys. Rev.*, 181 :896–904, May 1969.

- [95] L.Helseth, R. Hansen, E. Ilyashenko, M. Baziljevich, and T. Johansen. Faraday rotation spectra of bismuth-substituted ferrite garnet films with in-plane magnetization. *Physical Review B*, 64(17) :174406, 2001.
- [96] H. Matthews, S. Singh, and R. C. LeCraw. Sublattice contributions to the infrared rotary dispersion in yig. *Applied Physics Letters*, 7 :165, 1965.
- [97] MI Kurkin, NB Bakulina, and RV Pisarev. Transient inverse faraday effect and ultrafast optical switching of magnetization. *Physical Review B*, 78(13) :134430, 2008.
- [98] M. Pessot, J. Squier, G. Mourou, and D.J. Harter. Chirped-pulse amplification of 100-fsec pulses. *Optics letters*, 14(15) :797–799, 1989.
- [99] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloë. *Mécanique quantique I*. Hermann, October 1997.
- [100] B.H. Bransden and C.J. Joachain. *Physics of Atoms and Molecules*. Longman Publishing Group, September 1982.
- [101] Brigitte Bidégaray-Fesquet. *Hiérarchie de modèles en optique quantique : de Maxwell-Bloch à Schrödinger non-linéaire*. Springer, 2006.
- [102] Dieter Suter. *The Physics of Laser-Atom Interactions*. Cambridge University Press, October 1997.