

UNIVERSITÉ DE STRASBOURG
ÉCOLE DOCTORALE de Physique et Chimie-Physique
Institut de physique et chimie des matériaux de Strasbourg (IPCMS) UMR 7504

THÈSE

présentée par :

Matthias Pacé

soutenue le : 22/09/2023

pour obtenir le grade de :

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE STRASBOURG

Discipline / Spécialité : Matière condensée

Génération de courants d'électrons polarisés en spin par désaimantation ultra-rapide : processus fondamentaux et applications pour l'électronique THz.

THÈSE dirigée par :

Mme Boeglin Christine
M Bailleul Matthieu

- Directeur de recherches, IPCMS, Université de Strasbourg
- Directeur de recherches, IPCMS, Université de Strasbourg

RAPPORTEURS :

Mme Richter Christine
M Jaffrès Henri

- Professeur, Université Cergy Paris
- Directeur de recherches, Unité mixte de Physique CNRS-Thalès

EXAMINATEURS :

M Alouani Mebarek
M Gorchon Jon

- Professeur, IPCMS, Université de Strasbourg
- Chargé de Recherche, Institut Jean Lamour

INVITÉS :

M Bubendorff Jean-Luc
M Vomir Mircea

- Professeur, Institut de Science des Matériaux de Mulhouse (IS2M)
- Ingénieur de Recherche, IPCMS, Université de Strasbourg

Résumé

Sous la tutelle de Christine Boeglin, j'étudie la désaimantation dans un alliage ferrimagnétique de Co₆₁Gd₃₉. En parallèle, je me suis intéressé au profil de concentration de ces couches minces et je les ai reliées aux dynamiques de désaimantation observées. Les alliages de métaux de transition et de terres rares (MT-TR) sont intéressants d'un point de vue fondamental et applicatif. Ce travail est réalisé sur les Très Grandes Infrastructures de Recherche (TGIR) de HZB - BESSY à Berlin et de SOLEIL à Orsay, Paris.

Sous la tutelle de Matthieu Bailleul, je fais partie d'une équipe dont l'objectif est d'utiliser un émetteur spintronique pour émettre des ondes THz. Ce type d'émetteur est composé d'une couche générant des électrons chauds à la suite d'une excitation optique, qui est ensuite converti, par les couches métalliques adjacentes, en courants de charge, responsables de l'émission d'un champ électromagnétique dans l'espace libre. Mon travail s'est concentré sur la simulation et la réalisation en salle blanche, d'antennes améliorant cette émission en espace libre.

Remerciements

L'achèvement de ces quatre années de thèse représente pour moi à la fois un accomplissement, et un nouveau départ. Durant cette période, j'ai pu approfondir mes connaissances, réaliser des expériences intéressantes et rencontrer des gens passionnants. C'est à eux que je dédie cette page.

J'aimerais tout d'abord remercier Christine Boeglin, qui m'a proposé cette thèse, après ma candidature pour le sujet Européen. Je n'aurais probablement rien pu réaliser à l'IPCMS sans son aide. J'aimerais aussi la remercier pour son encadrement durant ces quatre années, sa présence et son soutien, notamment lors de nos déplacements vers les très grands instruments de recherche (TGIR), tel que BESSY et le XFEL.

Je remercie également Matthieu Bailleul, pour avoir accepté d'être mon co-directeur de thèse, pour son aide et sa rigueur contagieuse. Je lui suis reconnaissant d'avoir fait de son mieux pour que je puisse avoir accès au matériel dont j'avais besoin pour la poursuite de cette thèse, et de m'avoir permis de la réaliser dans des conditions optimales.

Merci à Nicolas Bergeard, pour toutes les précisions apportées, tant techniques que scientifiques. Son encadrement à Soleil et à Bessy II, la bonne humeur dont il a fait preuve ainsi que sa patience ont été des éléments clefs pour la réussite de ce projet.

Merci à Mircea Vomir pour m'avoir encadré sur le montage de caractérisation des émetteurs THz, et pour avoir calibré les différents éléments ayant permis la mesure.

Merci à Michel Hehn pour avoir réalisé toutes les multicouches présentées dans ce manuscrit.

Merci également à Jean-Sébastien et à Jean-Pierre Froberger. Nos discussions consistant à changer le monde à grands coups de "si" étaient des plus agréables.

J'aimerais également remercier Sabine Siegwald, Romain Bernard et Hicham Majjad pour m'avoir formé aux différents appareils présents en salle blanche, ainsi que José Solano et Mathias Grassi, pour m'avoir énormément aidé lors de mes manipulations.

Merci également à Deeksha Gupta pour sa présence et sa bonne humeur.

Je remercie également ma fiancée, Olga, pour son soutien inconditionnel durant ce projet.

Merci aussi à mon petit frère Tanguy, pour sa présence tout du long de la thèse.

J'aimerais enfin remercier mes parents, Serge et Yvette, pour m'avoir bricolé, et soutenu : leur présence durant ces quatre années de labeur a été le pilier qui m'a permis de finaliser cette thèse.

Out of the night that covers me,
Black as the pit from pole to pole,
I thank whatever gods may be
For my unconquerable soul.

In the fell clutch of circumstance
I have not winced nor cried aloud.
Under the bludgeonings of chance
My head is bloody, but unbowed.

Beyond this place of wrath and tears
Looms but the Horror of the shade,
And yet the menace of the years
Finds and shall find me unafraid.

It matters not how strait the gate,
How charged with punishments the scroll,
I am the master of my fate :
I am the captain of my soul.

Invictus
William Ernest Henley

Table des matières

I	Dynamique de désaimantation d'un échantillon de CoGd provoqué par un courant d'électrons chauds polarisés en spin.	14
I	Introduction des méthodes expérimentales au Département Surface-Interface : Dynamique de désaimantation ultrarapide, propriétés des alliages MT-TR, méthodologie des mesures.	15
I.1	Désaimantation ultrarapide : comportement physique et modèle théorique	16
I.1.1	Chronologie de la désaimantation ultrarapide . . .	16
I.1.2	Désaimantation ultrarapide induite par des électrons chauds polarisés en spin	17
I.1.3	Modèles de la désaimantation ultrarapide.	17
I.2	Alliages entre métaux de transition et terres rares (MT-TR)	19
I.2.1	Caractéristiques magnétostatiques du Gd élémentaire.	20
I.2.2	Caractéristiques magnétostatiques du Co élémentaire.	20
I.2.3	Caractéristiques magnétostatiques du CoGd.	22
I.2.4	Modèle de la dynamique de désaimantation MT-TR	24
I.3	Concepts et techniques expérimentales	26
I.3.1	Dichroïsme magnétique circulaire des rayons X (XMCD)	26
I.3.2	XMCD résolu en temps	31
I.3.3	Photoémission par rayons X	32
II	Description des montages et lignes expérimentales	36
II.1	Description des montages expérimentaux	36
II.1.1	Montage pour la caractérisation au laboratoire. . .	36
II.1.2	Les synchrotrons	38
II.1.3	Description des synchrotrons utilisés.	38
II.2	Description des lignes et des stations expérimentales	39
II.2.1	TEMPO à SOLEIL : mesures statiques	40
II.2.2	PM3 à BESSY II : mesures statiques	41
II.2.3	UE56-ZPM à BESSY II : mesures dynamiques . . .	42
III	Echantillons : structure et fabrication	46
III.1	Méthode de pulvérisation cathodique	46

III.2	Structure des échantillons	47
III.2.1	Caractérisations statiques et femtoslicing.	47
III.2.2	Caractérisations par photoémission des niveaux de cœur.	50
IV	Caractérisation magnétique des couches Co_xGd_{1-x}	51
IV.1	Anisotropie des couches minces : étude de l'axe facile de l'aimantation par effet Kerr magnéto optique	51
IV.2	Résultats par spectroscopie XMCD	58
IV.3	Structure des couches supérieures : Pt(5)/Cu(60)	68
V	Désaimantation ultrarapide induite par des électrons chauds polarisés en spin dans un alliage de $Co_{61}Gd_{39}$	72
V.1	Echantillon	72
V.2	Dépendance de la désaimantation en fonction de la fluence IR	73
V.3	Résultats pompe-sonde au Gd M_5	73
V.3.1	Dynamique ultrarapide aux temps longs (0-200 ps) par femtoslicing.	74
V.3.2	Dynamique ultrarapide aux temps courts (0-20 ps) par femtoslicing.	75
V.4	Conclusion	76
VI	Résultats par spectroscopie de photoémission des niveaux de cœur.	77
VI.1	Composition de la couche magnétique molle et résultats de spectroscopie de photoémission des niveaux de cœurs $Gd_{3d,4f}$ et Co_{3p}	78
VI.1.1	Introduction	78
VI.1.2	Description et présentation des résultats expérimentaux	79
VI.1.3	Données numériques.	85
VI.1.4	Interprétation	92
II	Utilisation de courants d'électrons chauds polarisés en spin pour l'émission en espace libre d'ondes THz.	97
VII	Introduction à la physique des ondes térahertz	98
VII.1	Introduction	98
VII.2	Définition	100
VII.3	Génération des ondes THz	102
VII.3.1	Rectification Optique	102

VII.3.2	Sources photoconductrices	109
VII.3.3	Emetteur spintronique	114
VII.4	Antennes électromagnétiques	121
VII.4.1	Fréquence d'émission d'une antenne dipôle	121
VII.4.2	Antennes large-bande	126
VIII	Méthodes	128
VIII.1	Introduction	128
VIII.2	Simulations électromagnétiques	128
VIII.2.1	Description générale de la simulation	128
VIII.2.2	Géométrie et matériaux	129
VIII.2.3	Discrétisation et maillage	131
VIII.2.4	Déroulement de la simulation	133
VIII.2.5	Géométrie de l'antenne	135
VIII.2.6	Optimisation	139
VIII.3	Réalisation des échantillons et fabrications des antennes sur des émetteurs spintroniques	141
VIII.4	Caractérisation	143
VIII.4.1	Détection d'onde THz grâce au Tellurure de Zinc.	144
VIII.4.2	Système de détection pompe-sonde	145
IX	Résultats	149
IX.1	Résultat des simulations	149
IX.1.1	Travail préparatoire	149
IX.1.2	Antennes	153
IX.2	Résultat de la fabrication	166
IX.3	Résultats des mesures	167
IX.3.1	Résultats pompe focalisée	167
IX.3.2	Résultats obtenus avec la pompe défocalisée	171
IX.4	Comparaison entre simulation et expériences.	174
IX.5	Conclusion générale de la partie II	176
III	appendices	190
.1	Appendice 0 : Historique et description des synchrotrons.	192
.2	Appendice 1 : Liens entre spectres XMCD et moments M_s et M_L	194
.3	Appendice 2 : Tableaux de résultat du chapitre 4	197
.4	Appendice 3 : Code ayant permis la modélisation de l'ab- sorption des électrons	201
.5	Appendice 4 : Code de Nicolas Bergeard, ayant permis l'ac- céleration du traitement des données de slicing.	203
.6	Appendice 5 : Algorithme génétique	207
.6.1	Algorithme de résolution.	207
.6.2	Présentation de la modélisation	210

.7	Appendice 6 : Dernière version de l'algorithme génétique ayant permis d'obtenir les profils bruts	216
.8	Appendice 7 : Dernière version du code de correction manuel ayant permis de corriger les profils bruts	225
.9	Appendice 8 : Protocole utilisé en salle blanche pour réaliser les échantillons	235
.10	Appendice 9 : Code ayant permis la réalisation des poly- gones nécessaires à la fabrication des antennes spirales. . .	237
.11	Appendice 10 : Résultats de simulations du champ lointain.	240

Introduction

L'électron possède une charge et une masse, comme toute particule élémentaire. Cet électron possède également un moment cinétique intrinsèque : le spin. Cette propriété interne a la particularité de ne pas avoir d'équivalent classique, contrairement aux autres observables, comme la position ou l'énergie, et d'être à l'origine des champs magnétiques que l'on observe aux échelles macroscopiques. En effet, le spin d'un électron est à l'origine d'un moment magnétique, pouvant se coupler au moment magnétique orbital des électrons, et ainsi générer un champ rémanent.

À la fin des années 80, les études de la magnétorésistance géante donnent une interprétation nouvelle pour les courants d'électrons chauds polarisés en spin. Le domaine prend le nom de spintronique. En effet, s'il est possible de contrôler l'aimantation grâce à des champs magnétiques externes issus d'électro-aimant, il est également possible de contrôler en partie les courants d'électrons grâce à des champs magnétiques extérieurs. Depuis les années 90, il a été montré qu'il est possible de manipuler optiquement l'aimantation de manière rapide. D.Weller et son équipe y sont ainsi parvenus dès 1988 [86]. Bien d'autres études ont été réalisées depuis cette date et à des échelles de temps de plus en plus petites.

E. Beaurepaire [9] et son équipe sont parvenus, en 1996, à modifier l'aimantation, de manière ultrarapide (60 fs), d'un échantillon de Nickel en utilisant des impulsions femtosecondes lasers infra-rouges (IR). Ceci a suscité un engouement certain dans la communauté scientifique, qui s'est intéressée au sujet durant les deux dernières décennies. [89, 56, 111, 110, 28, 120, 49, 92, 12, 37, 60, 73, 54] En effet, le temps caractéristique de la désaimantation est de l'ordre de la picoseconde, ce qui est trois ordres de grandeur plus rapide que le contrôle observé lors de l'utilisation d'un champ magnétique extérieur. Afin de comprendre le phénomène, E. Beaurepaire et ses collaborateurs ont proposé un modèle empirique à trois températures. Notons que dans celui-ci, la variation de la température des électrons est le seul élément à l'origine de la désaimantation ultrarapide. D'autres sources peuvent être utilisées pour induire une désaimantation ultrarapide. Parmi ces autres sources, des impulsions ultracourtes de courants d'électrons chauds peuvent

être à l'origine de la perturbation de l'ordre magnétique dans un matériau magnétique. Une tentative de démonstration a été proposée par Eschenlohr et son équipe en 2013 : ce courant était généré par des impulsions IR. [37] Ce premier travail a cependant donné lieu à une controverse [59, 35], le blindage optique permettant l'absorption du faisceau de pompe IR, ayant été incomplet. Il est cependant nécessaire de noter que cette première tentative a donné lieu, à son tour, à une étude extensive de la dynamique ultrarapide de la désaimantation provoquée par des courants d'électrons chauds pulsés.[36, 121, 95, 75, 3, 43, 53, 125, 129, 113]

À partir de cette littérature, nous nous sommes intéressés à deux aspects de la physique mettant en jeu les impulsions ultracourtes d'électrons chauds polarisés en spin. Ces aspects sont au cœur du développement technologique actuel dans le domaine de l'enregistrement et de la transmission de données.

Dans un premier temps, je vais présenter et discuter les résultats et les motivations des études de la désaimantation induites par des électrons chauds polarisés en spin.

Dans un deuxième temps, je vais présenter et discuter les résultats et les motivations de l'étude de l'optimisation de l'émission d'un émetteur THz spintronique.

Les études de la littérature nous ont amenés à nous interroger sur l'impact des différents degrés de liberté des électrons chauds. En effet, malgré les recherches réalisées dans ce domaine, aucun modèle ne parvient à expliquer seul les résultats observés. Cette difficulté s'explique par la quantité importante de mécanismes physiques différents, qui se manifestent lors de la désaimantation, ainsi que par leur importance respective. Ainsi, au-delà de l'excitation thermique créée par l'impulsion de courants d'électrons chauds, on peut chercher à connaître l'impact du spin de l'électron sur la dynamique de désaimantation. Cette problématique avait été évoquée par T.Ferté dans sa thèse [39] sans développer l'importance du spin.

En effet, il existe peu d'études dans la littérature sur les dynamiques des alliages métaux de transition - terres rares (MT-TR) différenciant les deux sous-réseaux [89, 48, 44, 119, 11, 90] et celles-ci se concentrent sur une excitation optique. Ceci s'explique par le développement récent des techniques par rayons X permettant les caractérisations expérimentales. En 2017, T.Ferté s'est penché sur le cas de l'excitation par électrons chauds. [113] Mon travail cherche à répondre à la problématique suivante : quel est l'impact du spin des électrons chauds dans la désaimantation d'alliage de CoGd ? Pour cela, la dynamique ultrarapide d'une couche ferrimagnétique en CoGd a été étudiée dans une structure de vanne de spin, au synchrotron de BESSY II.

Cette vanne de spin, composée de la couche d'intérêt surmontée d'une couche magnétique dure de CoPt a été étudiée dans une configuration parallèle (P) et une configuration antiparallèle (AP). Les résultats montrent une réponse plus rapide de la dynamique de désaimantation dans la configuration (P), le temps caractéristique étant de 9ps, contre 15 pour la configuration (AP), ceci pouvant s'expliquer par le caractère antiparallèle des aimantations du Co, présent dans les deux couches et impactant l'aimantation du Gd par couplage interatomique. Il est également nécessaire de noter que la composition de la couche de CoGd n'est pas uniforme. Un profil de concentration de l'alliage CoGd a été extrait grâce à une série d'expériences au synchrotron SOLEIL. Ce résultat est essentiel pour la compréhension de la dynamique de la couche de CoGd, étant donné le faible libre parcours moyen des électrons chauds polarisés en spin qui est de l'ordre de quelques nanomètres.

En parallèle de l'étude de la désaimantation d'une couche magnétique excitée par des électrons chauds polarisés en spin, je me suis également intéressé à la création et à la maximisation de l'amplitude de signaux THz émis en espace libre par un courant d'électrons chauds polarisés spin. Cette thématique est liée à la première par le phénomène physique à l'origine de l'émission des ondes en espace libre. En effet, le phénomène d'émission THz spintronique met à profit le spin des électrons chauds pour fonctionner. La conversion spin vers charge est assurée par l'effet Hall de spin inverse [103] s'exerçant dans une couche de métal lourd en contact avec le matériau ferromagnétique excité optiquement [98, 99]. L'histoire des recherches autour de la gamme de fréquences THz est vaste et de nombreuses méthodes ont été étudiées afin d'émettre et de détecter des ondes dont les fréquences se situent dans un gap d'accessibilité. [70, 106]

Ces ondes THz, dont la fréquence est à la frontière entre le domaine de la radio et de l'optique, sont peu exploitées, en raison de la difficulté d'émettre et de détecter sur ces plages de fréquence. Malgré ces difficultés, ces ondes ont de nombreuses applications industrielles. Ainsi, leurs hautes fréquences, comparées à celles généralement utilisées en télécommunication, représentent un atout permettant une plus grande vitesse de transmission [55], ainsi qu'une désaturation des plages de fréquences habituelles. Leur caractère non-ionisant en fait un avantage dans les domaines de la médecine et de la sécurité, ces ondes interagissant avec les oscillations thermiques et torsions de certaines molécules, tout en n'impactant que peu les tissus vivants. Notons que les méthodes usuelles de génération d'ondes THz reposent sur la charge de l'électron, tandis que l'émission THz spintronique que nous allons utiliser, repose aussi sur son spin.

L'idée du projet porté par l'équipe que j'ai intégrée au DMON repose sur trois articles [64, 98, 129]. Ceux-ci décrivent le couplage entre des systèmes spintroniques et des ondes électro-magnétiques à des fréquences de l'ordre du THz. Ce travail vise à adapter des géométries d'antennes usuelles à un émetteur THz spintronique pour augmenter son efficacité, l'utilité d'une antenne ayant déjà été démontrée [76]. Une fois familiarisé avec l'état de l'art et le savoir faire de l'équipe, mon travail a été réalisé en trois étapes. Une première étape a été consacrée à des simulations électromagnétiques grâce au logiciel CST studio. L'objectif était de chercher des géométries d'antenne pouvant améliorer l'émission en espace libre des émetteurs térahertz spintroniques et de tester plusieurs substrats. Toutes présentent un spectre d'émission centré sur 1 THz. On distingue des géométries larges bandes et une géométrie bande étroite. La deuxième étape a été de fabriquer les antennes par deux étapes de lithographie. En effet, l'échantillon est reçu de l'Institut Jean Lamour de telle sorte que l'émetteur est présent sur tout le substrat. La tri-couche est d'abord retirée sur la majeure partie de l'échantillon pour réaliser des émetteurs isolés puis deux couches de Au(60nm) et de Ti(10nm) sont pulvérisées pour obtenir les antennes. Il est enfin nécessaire de caractériser les émetteurs, et deux séries de mesures ont été réalisées pour déterminer leur réponse temporelle et fréquentielle. La mesure est réalisée par échantillonnage électro-optique, grâce à un montage pompe-sonde. Ces mesures permettent cependant de proposer une comparaison entre les différents signaux, mais pas de donner de mesure de puissance avec ce système.

Ainsi, ce manuscrit est divisé en deux grandes parties distinctes. Dans la première, composée de six chapitres, je traite de l'observation de la dynamique de désaimantation d'un échantillon de CoGd provoqué par un courant d'électrons chauds polarisés en spin, ainsi que du profil de concentration de Gd dans l'alliage de CoGd. Les sujets abordés dans les chapitres sont les suivants :

- 1) Le premier chapitre présente un résumé de la théorie relative à la désaimantation ultrarapide des échantillons ainsi que des méthodes de mesures, à savoir le dichroïsme magnétique circulaire à rayons X résolu en temps.
- 2) Le deuxième chapitre décrit les différentes expérimentations à BESSY II et SOLEIL, ainsi que les géométries des expériences.
- 3) Le troisième chapitre décrit les échantillons, leurs différentes couches, ainsi que leurs utilités et la technique de fabrication de ceux-ci.
- 4) Le quatrième chapitre décrit la caractérisation statique des échantillons par Kerr et dichroïsme magnétique circulaire de rayons X (XMCD).
- 5) Le cinquième chapitre décrit les résultats des mesures de la dynamique de désaimantation de la couche de CoGd.
- 6) Le sixième chapitre discute de la composition de la couche de CoGd et du profil de concentration de celle-ci, afin de la mettre en lien avec les résultats du chapitre précédent.

Dans la seconde partie, je traite de l'adaptation d'antennes usuelles à des

émetteurs spintroniques THz, afin d'améliorer leur émission en espace libre et de produire des ondes polarisées linéairement et circulairement.

7) Le septième chapitre réalise un résumé de la théorie relative à l'émission d'ondes en espace libre, et plus particulièrement des mécanismes mis en jeu par l'émission de l'émetteur spintronique THz en les comparant avec deux émetteurs usuels.

8) Le huitième chapitre présente les méthodes de travail afin de réaliser des adaptations pertinentes d'antennes électromagnétiques usuelles aux émetteurs spintroniques.

9) Le neuvième chapitre présente les résultats obtenus dans le cadre de la réalisation et de la caractérisation de nos émetteurs THz spintronique équipés d'antennes.

Première partie

Dynamique de désaimantation
d'un échantillon de CoGd
provoqué par un courant
d'électrons chauds polarisés en
spin.

Chapitre I

Introduction des méthodes expérimentales au Département Surface-Interface : Dynamique de désaimantation ultrarapide, propriétés des alliages MT-TR, méthodologie des mesures.

Ce chapitre présente les mécanismes physiques à l'origine de l'aimantation de manière générale et de sa dynamique sur des temps de l'ordre de la picoseconde dans un premier temps. Dans un second temps les propriétés des alliages étudiés, composés de métaux de transition et de terres rares (MT-TR) seront présentées. Enfin, la dernière partie détaillera les techniques expérimentales utilisées pour réaliser les mesures sur les échantillons MT-TR.

I.1 Désaimantation ultrarapide : comportement physique et modèle théorique

Dans cette partie, nous allons présenter un historique de la désaimantation ultrarapide due à une excitation infrarouge, mais aussi ayant des électrons chauds comme origine. Nous présenterons ensuite un modèle de ce phénomène.

I.1.1 Chronologie de la désaimantation ultrarapide

Il est possible de changer le comportement d'un matériau magnétique, sur des temps courts de plusieurs façons. Nous nous concentrerons dans ce paragraphe sur l'emploi d'un laser IR. La première désaimantation ultrarapide (≈ 1 ps) magnétique pilotée de façon optique a été réalisée à l'IPCMS en 1996.[9] Une pompe de longueur d'onde 620 nm (2eV) excite l'échantillon avec des impulsions de 60 fs pour désaimanter un film de Ni. Ceci a ouvert la voie à de nombreuses recherches. Ainsi, de façon précoce R.F.C Farrow et son équipe, étudie la rotation de l'aimantation à l'interface de deux couches ferromagnétiques et antiferromagnétiques [56]. Cet intérêt persiste aujourd'hui, avec, par exemple, l'étude de la dynamique de désaimantation dans le bulk d'un échantillon de Ni(15 nm)/Pd(35 nm), réalisé par J Emmanuelle et al. [54]. En effet, le contrôle optique reste une méthode importante pour l'étude de l'aimantation [12] et la littérature à ce sujet est abondante. [56, 111, 110, 28, 120, 49, 92, 12, 37, 60, 73, 54]. La longueur d'onde utilisée pour la plupart des expériences est $\lambda = 780 - 800$ nm, soit $E_h\nu = 1,55$ eV, qui se situe dans l'infrarouge (IR). La lumière laser est utilisée pour exciter optiquement le matériau. Le processus peut être décrit en trois étapes successives (figure I.1). Dans la première étape, des électrons absorbent l'énergie portée par les photons, ce qui induit des transitions électroniques. Comme nous le verrons plus tard, les électrons excités de cette façon peuvent se déplacer dans le matériau sur plusieurs nanomètres. La densité d'état ne suit alors plus une distribution de Fermi-Dirac : elle est alors hors équilibre. On ne peut d'ailleurs pas définir de température pour le matériau à ce stade. Pendant les 100 fs suivantes, les électrons chauds vont échanger de l'énergie avec le reste du nuage électronique, par chocs successifs. Ce processus conduit le nuage électronique à la thermalisation des électrons (figure I.1). Lorsque la thermalisation est effectuée, il est possible de définir une température électronique T_e . Aux temps ultra-courts, celle-ci est plus importante que la température du réseau T_r . Cette dernière va d'ailleurs augmenter en échangeant de l'énergie avec les électrons. Le matériau va ensuite dissiper l'énergie sous forme thermique. À l'équilibre, un matériau ferro ou ferrimagnétique, présente les moments de spin aligné de manière colinéaire dans une direction. Lors des étapes 2 et 3 présentées dans la figure I.1, les spins des électrons excités ne seront plus ordonnés comme dans l'état à l'équilibre, et

l'aimantation macroscopique de l'échantillon va diminuer [9] ou éventuellement changer de signe [67].

S'il est possible de réaliser une désaimantation ultrarapide directement par une excitation optique, il est aussi possible d'utiliser des électrons chauds pour perturber le nuage électronique du matériel magnétique. Les études suivantes mettent en évidence cet effet pour des MT et des alliages MT-TR.[36, 121, 95, 75, 113, 3, 43, 53, 125, 129]. Plusieurs mécanismes opérant de manière simultanée sont responsables de la désaimantation. Mon travail consiste à évaluer l'effet du spin sur la dynamique de désaimantation du matériau magnétique excité par des électrons chauds.

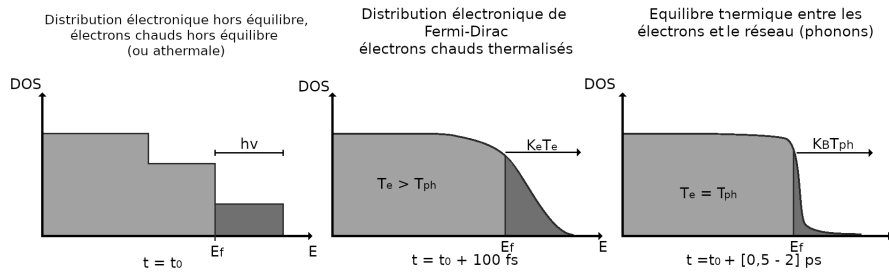


FIGURE I.1 – Densité d'état d'une population électronique : à la suite de l'absorption d'une excitation optique à t_0 (à gauche), à 100 fs après thermalisation du nuage électronique (au centre), à +500 fs à droite après la thermalisation du nuage électronique avec le réseau. [50]

I.1.2 Désaimantation ultrarapide induite par des électrons chauds polarisés en spin

Ferté et al. [113] se sont intéressés à l'impact de ces électrons chauds sur les TR dans les alliages $\text{Co}_{74}\text{Tb}_{26}$ et $\text{Co}_{71}\text{Dy}_{29}$. En effet, leur moment magnétique est principalement porté par l'orbitale 4f. Dans cette étude, plusieurs structures des échantillons sont proposées. Trois couches importantes ont été distinguées. Une première couche supérieure permet la génération d'électrons chauds par un contrôle optique. Cette couche est généralement composée de platine, d'aluminium et de tantale. Une deuxième couche, composée de cuivre permet d'absorber le rayonnement IR. Enfin, la désaimantation d'une couche composée d'un alliage MT-TR a été observée.

I.1.3 Modèles de la désaimantation ultrarapide.

Le premier modèle visant à expliquer le comportement du matériau lors d'une désaimantation ultrarapide a été proposé par Beaurepaire et al. [9]. Ce modèle thermodynamique, décrit la désaimantation d'un point de vue macroscopique, et ne prend pas en compte les mécanismes ayant lieu à l'échelle atomique. Il décrit trois réservoirs d'énergies représentant les électrons, leur

spin et les phonons, énergie du réseau. À l'équilibre, les trois bains ont la même température et sont à l'équilibre. Le passage des électrons d'une distribution de Fermo-Dirac à une distribution athermale, par l'excitation lumineuse, est considérée comme instantanée, car bien plus rapide que les phénomènes de thermalisation. Cette transition à une distribution athermale, ne peut pas être décrite par le modèle, puisque les bains thermiques représentent l'ensemble des éléments qui les composent. On ne peut donc pas faire de distinction entre les électrons ayant été excités et les autres. Les électrons se thermalisent et la chaleur est alors répartie entre tous les électrons. Le bain peut atteindre des températures de l'ordre du millier de degrés en un temps de l'ordre de 100 fs. L'énergie est ensuite répartie entre les deux autres bains, en fonction de leur constante de couplage et de leurs capacités thermiques respectives. Il est à noter que le modèle ne prend pas en compte un couplage avec un thermostat extérieur. Ceci s'explique par le temps caractéristique de refroidissement du matériau beaucoup plus long que les autres temps caractéristiques.

Un élément faisant défaut dans ce modèle thermodynamique est l'absence de la description du transfert du moment angulaire lors de la désaimantation. Pour répondre à cette problématique, je présente ici plusieurs modèles théoriques proposés depuis. Battiato et al a proposé un modèle de transport superdiffusif du spin [7, 21, 8]. Selon ce modèle, les électrons sont transportés de façon balistique et diffusive, hors du matériel magnétique. Il est à noter que le spin majoritaire a généralement un libre parcours moyen entre deux collisions inélastiques supérieur au spin minoritaire. Le déplacement étant plus aisé pour les électrons d'une des populations de spin, ce qui explique la désaimantation du matériau magnétique. Le modèle prédit ainsi une désaimantation non-homogène en fonction de l'épaisseur du film déposé sur un substrat conducteur. En effet, ne sont considérés que les électrons excités par le laser : les électrons chauds, hors équilibre. Selon Shen et al. [101], le modèle de Battiato et al. n'explique cependant pas la désaimantation ultrarapide d'un film de nickel déposé sur du verre [9]. Des mécanismes physiques différents sont donc à priori responsables et leur contribution respective est activement débattue à ce jour.

Koopman et al a ainsi proposé un modèle microscopique à 3 températures appelé m3TM [2]. Dans ce modèle, se basant sur le modèle à trois températures, un mécanisme supplémentaire, selon lequel le spin d'un électron peut se retourner, explique la désaimantation. Il est appelé "spin flip" et il est de type Elliot-Yafet. Dans ce modèle, le retournement du spin a lieu lors de l'interaction entre l'électron et un phonon ou une impureté. La probabilité de retournement est notée " a_{sf} ". Ce modèle permet d'expliquer de nombreux résultats expérimentaux constatés lors de désaimantation de TR et de MT, avec pour seul ajustement la valeur de a_{sf} . Ce modèle prédit l'existence de désaimantation de type I avec un seul temps caractéristique de désaimantation et II avec deux temps caractéristiques. Le rapport T_c/μ_{at} est responsable du type de dynamique, avec T_c la température de Curie du

matériau et μ_{at} est le moment magnétique atomique. Ce modèle a été utilisé dans de nombreux articles [40, 14] et explique les résultats obtenus notamment pour les TR. Il est aussi suffisamment polyvalent pour expliquer des désaimantations dont l'origine est une impulsion d'électrons chauds, comme présenté dans [36, 75]. Il est cependant à noter que la valeur de a_{sf} est généralement trop faible pour expliquer la désaimantation à l'aide du seul mécanisme de "spin-flip", laissant supposer que d'autres mécanismes additionnels participent à la désaimantation.

Ces modèles ne parviennent pas à expliquer seuls les résultats expérimentaux. Ainsi, la problématique actuelle est de déterminer l'importance de chaque phénomène physique dans le cadre de la désaimantation ultra-rapide pour un matériau donné. Une des méthodes préconisées est de séparer les différents mécanismes pour mieux les identifier.

I.2 Alliages entre métaux de transition et terres rares (MT-TR)

Dans cette section, nous nous intéresserons aux effets de température sur la structure des réseaux des métaux de transition et des terres rares dans un premier temps, et en particulier l'impact de ce paramètre sur l'aimantation du matériau. Ceci permettra d'introduire, dans une deuxième partie le modèle employé pour décrire la dynamique de désaimantation des alliages MT-TR.

I.2.1 Caractéristiques magnétostatiques du Gd élémentaire.

Nous allons décrire dans ce paragraphe les caractéristiques magnétiques du Gd. Cet élément fait partie des terres rares (TR) et plus particulièrement des lanthanides, des matériaux suivant le remplissage successif des niveaux 4f. La configuration électronique est trivalente $4f^7 5d^1 6s^2$. Le Gd est un métal dont la bande de conduction est formée par les électrons itinérants 5d6s.

L'aimantation provient des moments magnétiques de spin des électrons 4f. En effet, le Gd ($4f^7$) est bien connu pour ses propriétés magnétiques en fonction de l'occupation de l'orbitale 4f. Comme la couche 4f est à moitié remplie, le nombre quantique de spin S est $S = 7/2$ tandis que le nombre quantique orbital L est nul [24]. Enfin, $m^T = 2 S = 7 \mu_B/\text{at}$. En raison de leur nature localisée, les états 4f maintiennent le moment de type atomique dans la phase condensée. L'ordre magnétique dans ces métaux se produit par interaction indirecte via la polarisation de spin des électrons de conduction. Ainsi, les moments magnétiques du Gd peuvent être divisés en deux sous-systèmes : le moment magnétique localisé 4f majeur et induit 5d6s mineur. Le moment magnétique total est ainsi décrit par l'équation suivante :

$$\mu_{at} = \mu_{4f} + \mu_{5d6s} \quad (\text{I.1})$$

Le moment magnétique par atome μ_{at} suit les règles de Hund ($\mu_{\text{Gd}} = 7,55 \mu_B$), où l'excès par rapport à la valeur entière est attribué à la polarisation de spin des électrons de conduction 5d6s. Bien que ceux-ci portent un moment magnétique induit faible, leur nature médiatrice dans l'ordre magnétique est cruciale pour l'ordre ferromagnétique, observé en dessous de la température ambiante du Gd. Notons une transition de phase magnétique, de ferro à paramagnétique, à $T_c = 293 \text{ K}$. Le Gd est un cas particulier présentant un moment cinétique orbital L nul provenant d'un demi-remplissage des niveaux 4f se traduit par des orbitales sphériques à faible interaction avec le réseau dans un échantillon de Gd.

I.2.2 Caractéristiques magnétostatiques du Co élémentaire.

Nous allons décrire dans ce paragraphe, les caractéristiques magnétiques du Co. Cet élément fait partie des métaux de transition (MT), des matériaux suivant le remplissage successif des niveaux 3d. La configuration électronique est $3d^7 4s^2$. Le Co élémentaire est un métal dont la bande de conduction est formée par les électrons itinérants de la bande 3d.

L'aimantation provient des moments magnétiques orbitaux et de spin des bandes 3d. Les propriétés magnétiques (T_c , anisotropie) du Co sont issues de l'occupation de l'orbitale 3d. La couche d est plus qu'à moitié remplie, ainsi, le nombre quantique de spin S est $S = 3/2$ tandis que le nombre quantique

orbital L est 0,069 [124]. En raison de leur nature délocalisée, les états 3d permettent d'obtenir une T_C élevée de 1121 ° C, proche de son point de fusion. (1495 ° C).

Le moment magnétique par atome μ_{at} ne suit pas les règles de Hund, prévoyant une valeur $\mu_{Co} = 2 \mu_B/at$ alors que l'on observe une valeur de 1,7 μ_B/at [124, 13].

I.2.3 Caractéristiques magnétostatiques du CoGd.

Les alliages MT-TR ont les avantages combinés de chaque élément séparé. Notons ainsi une température de Curie T_C supérieure à la température ambiante, typique des MT, ainsi qu'une aimantation importante à basse température, et portée par les électrons 4f de la TR.

Comportement du réseau MT-TR et effet de la température

Certains MT et TR ont un moment magnétique. Nous traiterons ici le Cobalt(Co) et le Gadolinium(Gd) car ce sont les composants de nos alliages $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$.

L'aimantation des MT est issue de l'orbitale 3d, remplie partiellement et délocalisée. Ceci est à l'origine d'un fort couplage d'échanges entre les orbitales 3d, ce qui, à l'échelle macroscopique, se traduit par une température de Curie T_C élevée (1400 ° K pour le cobalt [112]). L'aimantation est par contre plus faible comparativement aux TR, ceci s'expliquant par une population de spins majoritaires plus faible.

La bande 5d, ne contribuant pas ou peu à l'aimantation dans les TR, l'aimantation des TR provient principalement des orbitales 4f. Celles-ci étant très fortement localisées, il y a peu de recouvrement entre orbitales. Il existe par contre un couplage de type RKKY, résultat des interactions 4f-5d intra-atomiques et 5d-5d interatomiques. Ceci explique que la température de Curie est faible pour les terres rares. Ainsi $T_C(\text{Gd})=282,15$ °K.

L'objectif des alliages MT-TR est donc de réaliser un matériau ayant à la fois une température de Curie supérieure à la température ambiante, et un moment magnétique important. Il est à noter que dans ces cas il y a une interaction d'échange entre les orbitales 5 d de la TR et 3 d du MT. Cependant, les directions d'aimantation des TR et des MT sont opposées dans ces alliages (ferrimagnétiques). Cette propriété est visible de manière macroscopique avec l'apparition d'une température dite de compensation T_{comp} . En effet, si les deux moments magnétiques ont la même température de Curie, leur évolution est différente en fonction de la température. Il existe ainsi, dans certains alliages, une température à laquelle l'aimantation globale est nulle. L'aimantation des sous-réseaux est opposée de part et d'autre de cette température (figure I.2) et le champ coercitif de l'alliage diverge à l'approche de cette température. Enfin, cette température est sensible à la concentration relative des MT et TR dans l'alliage. Sa mesure permet ainsi de connaître avec précision les concentrations relatives des espèces chimiques. [119]

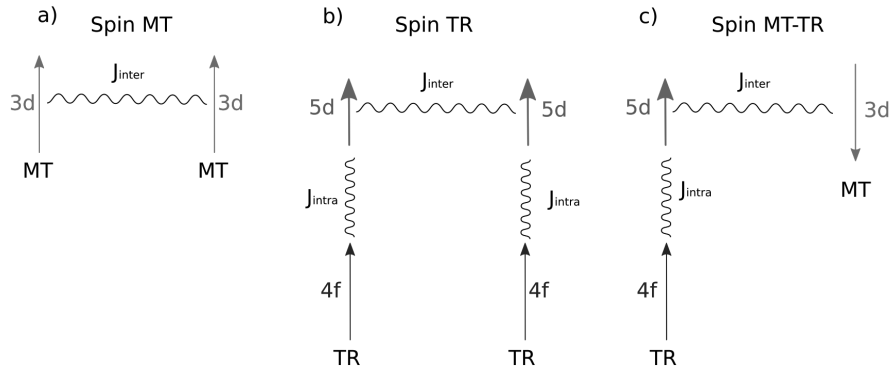


FIGURE I.2 – Représentation des couplages entre spins : a) couplage 3d-3d d'un MT, b) couplage intra-atomique 5d-4f et inter-atomique 5d-5d d'une TR c) couplage entre les orbitales 3d, 5d, et 4f d'un alliage MT-TR. [16, 19, 46, 112]

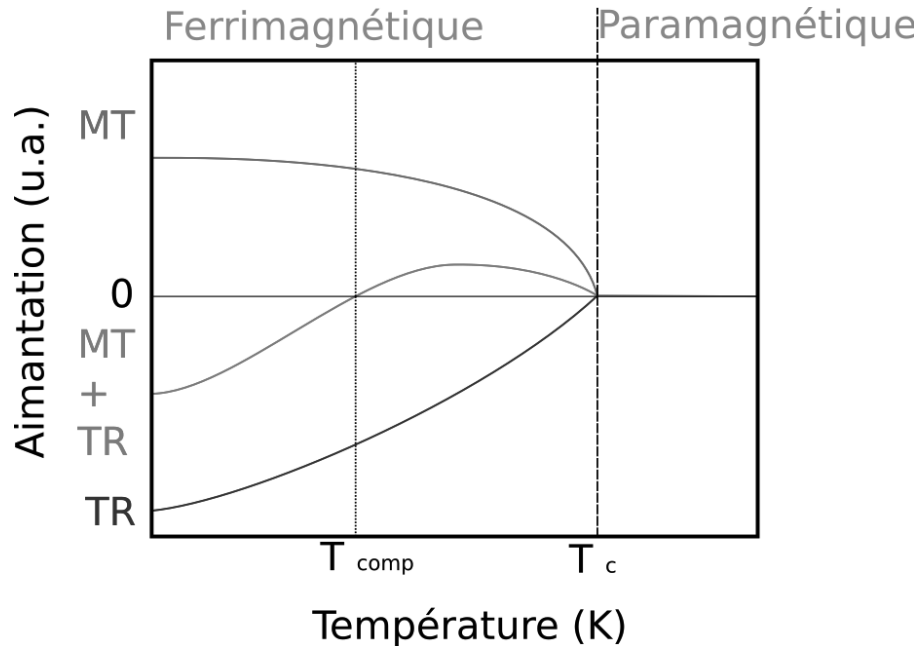


FIGURE I.3 – Évolution de l'aimantation en fonction de la température d'un alliage MT-TR(violet) et des deux sous réseaux MT (rouge) et TR (bleu). Issu de la thèse de T.Ferté. [39]

I.2.4 Modèle de la dynamique de désaimantation MT-TR

Les dynamiques ultrarapides des alliages MT-TR ont été étudiées depuis plus de dix ans en utilisant une pompe IR laser ultra brève (de durée d'impulsion d'environ 60 fs). [89, 119, 11] La longueur d'onde utilisée est de 800 nm et l'énergie des photons est ainsi de 1,55 eV. Cette énergie permet l'excitation des électrons des bandes 3d des MT et des 5d des TR. Ceci entraîne une transition électronique vers un niveau d'énergie au-dessus du niveau de Fermi. Notons cependant qu'un électron présent dans la bande 4f des TR ($E_{liaison}^{4f} \sim 5$ eV) ne peut pas être excité par un photon IR. En effet, ces derniers ont une énergie trop faible. Leurs excitations se font de manière indirecte via les états 5d.

Le comportement dynamique des deux sous-réseaux MT et TR à la suite de l'excitation optique sont différents. Ceci se constate dans la bibliographie relative à la dynamique ultra-rapide de la désaimantation des alliages MT-TR où les mesures sont chimiquement sélectives (rayons X). La différence se constate par rapport à l'amplitude de cette désaimantation, plus importante pour les TR, et pour les temps caractéristiques de désaimantation et de rétablissement, plus importants, là encore, pour les TR que pour les MT. À notre connaissance, peu d'études chimiquement sélectives de la désaimantation ultra-rapide ont été réalisées sur des alliages de MT-TR. Le sujet des différents articles [44, 48, 11, 90, 112, 119] est principalement centré sur le retournement tout optique de l'aimantation. Dans les articles [11, 90, 119], la désaimantation de différents alliages MT-TR est directement étudiée. Lopez et al. [119] constate un ralentissement de la dynamique de désaimantation ultrarapide des TR 4f lorsque la température de l'échantillon est supérieure à sa température de compensation. La proposition est que lorsque la température de l'échantillon est proche de la température de Curie, une fluctuation des spins 4f ralentit la dynamique de désaimantation. Notons également que selon T. Ferté et al., on peut constater une accélération de la dynamique des 4f dans les alliages MT-TR lorsque la température de travail se rapproche de T_C [38]. Ceci pourrait sembler contradictoire, mais notons que Lopez et al. n'ont pas mesuré la variation de la vitesse de la dynamique en fonction de la température, contrairement à T. Ferté. Le résultat présenté dans [119] compare donc la dynamique avant et au-delà de T_{comp} , ne laissant pas présager son évolution entre T_{comp} et T_C .

Bergeard et al. [11] constatent, entre les deux sous-réseaux de l'alliage de CoTb, un transfert de moment angulaire pendant une centaine de femtosecondes après l'excitation optique. Nous pouvons illustrer les différents couplages entre les bains d'électrons, de spins et de phonons en améliorant le modèle à trois bains précédemment présentés, en rajoutant un bain de spin. Celui-ci permet de différencier les spins de la TR et ceux du MT, permettant une description indépendante des aimantations des deux espèces chimiques composant l'alliage. La littérature nous propose des valeurs de

temps caractéristiques relatives aux transferts de chaleur : [2, 96, 119, 11, 90]. Ces transferts sont schématisés sur la figure I.4. Celle-ci permet une compréhension des phénomènes, mais, comme pour le modèle à trois bains, n'est qu'une description phénoménologique, et ne présente pas tous les mécanismes physiques présents lors d'une désaimantation ultrarapide.

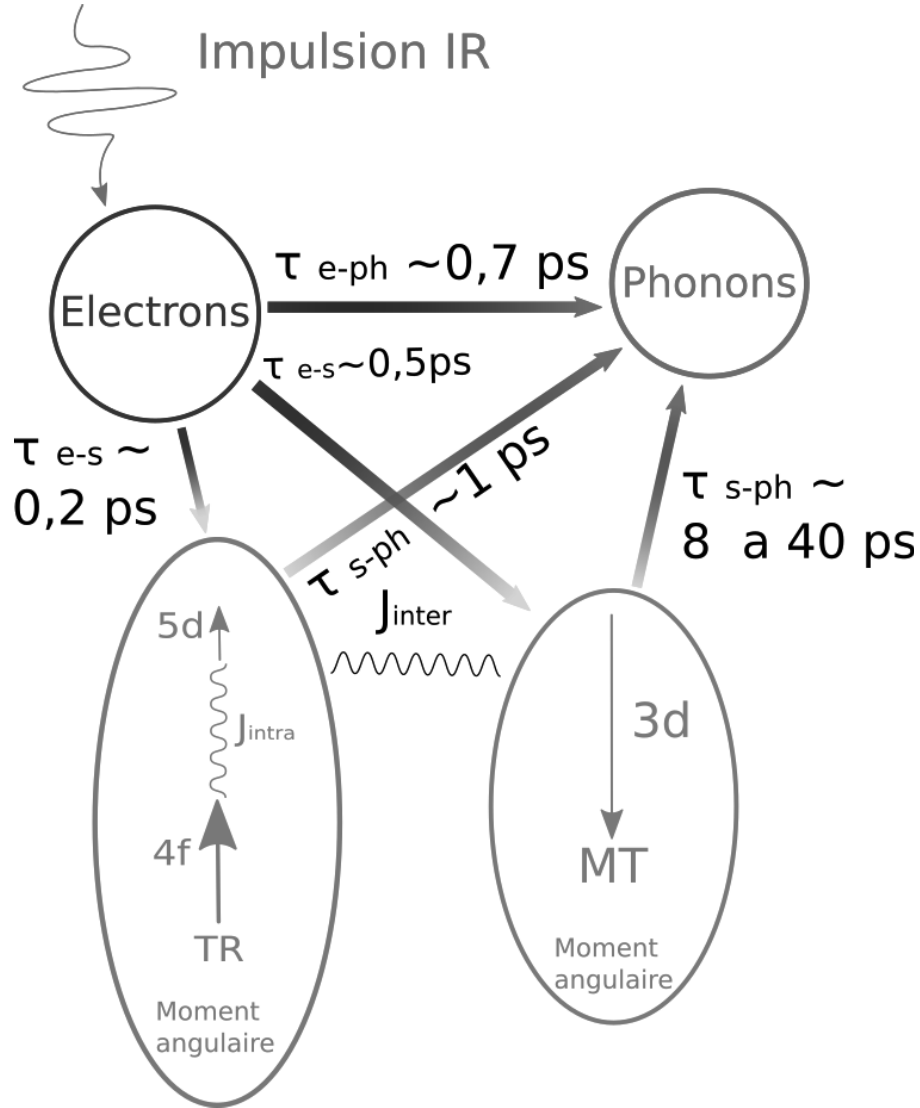


FIGURE I.4 – Modèle à 4 températures correspondant à un alliage MT-TR : on retrouve le bain d'électrons, de phonons, et deux bains de spin (3d et 5d). Modèle proposé par T.Ferté : [39].

Lors de l'excitation de l'échantillon par une impulsion lumineuse, l'énergie transportée par les photons IR est transférée au bain d'électrons. Cette énergie est ensuite transférée entre ce bain, les bains de spins et le réseau, appelé "phonons" dans la figure I.4. La bibliographie réalise une différence entre le bain de spin des MT et celui des TR, avec un couplage entre les deux. Nous suivons cette modélisation ici. C'est pour cette raison que l'étude de

la dynamique ultrarapide de l'aimantation d'un alliage MT-TR nécessite la mesure, de façon séparée, de la dynamique d'aimantation des MT (bande 3d), et des TR (bande 4f). La technique de dichroïsme magnétique circulaire des rayons X, aux seuils MT $L_{2,3}$ et TR $M_{4,5}$ pour les TR est la plus adaptée pour réaliser cette étude.

I.3 Concepts et techniques expérimentales

Dans cette partie, je me concentrerai sur les concepts et les techniques expérimentales. Dans un premier temps, je parlerai du dichroïsme magnétique circulaire des rayons X, (XMCD). Je discuterai ensuite de l'utilisation de cette technique pour les expériences résolues en temps. Enfin, je traiterai des techniques de photoémission utilisées pour étudier la composition de surface des échantillons.

I.3.1 Dichroïsme magnétique circulaire des rayons X (XMCD)

En 1975 Erskine et Stern [34] ont prédit l'effet produit par le dichroïsme magnétique circulaire dans un matériau magnétique. La démonstration expérimentale a été réalisée par Schütz et al. [97] en 1987. La technique du XMCD a plusieurs avantages. Comme indiqué dans les paragraphes précédents, la technique est chimiquement sélective et permet de mesurer de façon distincte les moments magnétiques orbitaux et de spin. Enfin, sa sensibilité élevée, capable de réaliser des mesures sur une mono-couche atomique rend cette technique incontournable dans l'étude des nano-matériaux. Il est cependant à noter que, puisqu'on mesure l'absorption des rayons X sur un échantillon, la valeur moyenne de l'échantillon est obtenue. Une sensibilité particulière aux premiers nanomètres de la surface peut-être obtenue dans certaines configurations expérimentales, comme le Total Yield ou la photoémission.

La règle d'or de Fermi (obtenue à partir de la méthode des perturbations dépendant du temps et l'approximation dipolaire électrique) décrit la probabilité de transition d'un état discret initial vers, soit un état discret, soit un continuum d'état final en fonction du temps. Dans l'équation suivante, H_{int} est défini comme l'hamiltonien d'interaction entre lumière et matière.

$$W_{i \rightarrow j} \propto \langle f | H_{int} | i \rangle^2 \quad (\text{I.2})$$

Lorsque la lumière, polarisée circulairement, excite un matériel magnétique, il en découle de l'absorption d'un photon suivant les règles de transition particulières. Les règles de sélection qui en découlent sont :

$$\Delta L = L_f - L_i = \pm 1 \quad \Delta M_L = M_{L_f} - M_{L_i} = \pm 1$$

$$\Delta S = S_f - S_i = 0 \qquad \Delta M_S = M_{S_f} - M_{S_i} = 0 \qquad (\text{I.3})$$

L_i et L_f sont les nombres quantiques orbitaux de l'état initial et final.

M_{L_f} et M_{L_i} sont les moments magnétiques orbitaux de l'état initial et final.

S_i et S_f sont les nombres quantiques de spin initiaux et finaux.

M_{S_i} et M_{S_f} sont les moments magnétiques de spin de l'état initial et final.

Les relations I.3 montrent que le spin est conservé entre l'état final et initial. Ce n'est pas le cas du moment orbital, dont la valeur change. La mesure du signal XMCD se fait au seuil $L_{2,3}$ pour les MT. La transition électronique produite par l'absorption des rayons X entraîne une transition entre un état électronique de la couche 2p vers la couche 3d. Les deux transitions à partir des seuils $L_{2,3}$ sont :

$$2p_{1/2} \rightarrow 3d \qquad \text{et} \qquad 2p_{3/2} \rightarrow 3d \qquad \Delta L = +1 \qquad (\text{I.4})$$

La densité d'états vides entre les populations de spins majoritaires et minoritaires est distincte pour les matériaux magnétiques. Nous représentons dans la figure I.5 la différence de population dans l'orbitale 3 d. Cette différence de population dans l'état final impacte la probabilité de transition pour un électron, en fonction du spin de l'électron excité, et la polarisation des photons X. Ceci se traduit par des différences de probabilités de transitions décrites par la règle d'or de Fermi. Le signal XMCD, proportionnel au moment magnétique de l'élément chimique, a pour origine la différence de probabilité de transition entre une polarisation circulaire gauche, et une polarisation circulaire droite des rayons X.

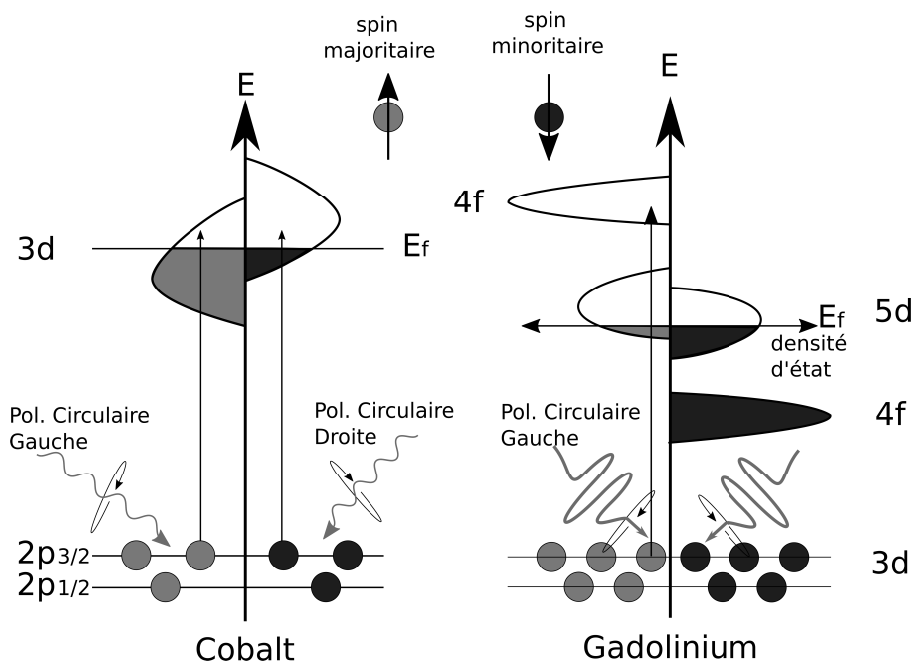


FIGURE I.5 – Schéma représentant les transitions électroniques induites par l'absorption de rayons X polarisés circulairement au Co L_{2,3}, à gauche, et au Gd M_{4,5} à droite.

La figure I.6 est un spectre présentant l'absorption de rayons X pour deux champs magnétiques opposés telle qu'obtenue expérimentalement au $\text{Co}L_{2,3}$. La différence d'absorption de rayons X (XAS) entre les deux signaux permet d'obtenir le spectre XMCD. De la même façon que pour les MT, l'aimantation des TR est étudiée par XMCD. Les transitions utilisées pour nos mesures sont celles à partir du seuil $M_{4,5}$ sont :

$$3d_{3/2} \rightarrow 4f \quad \text{et} \quad 3d_{5/2} \rightarrow 4f \quad (\text{I.5})$$

Les règles de sommes, en annexe .2, permettent d'extraire les moments magnétiques de spin et d'orbitale des spectres d'absorption. Ces règles ont été formulées par Tholes et al. [117] et Carra et al. [20].

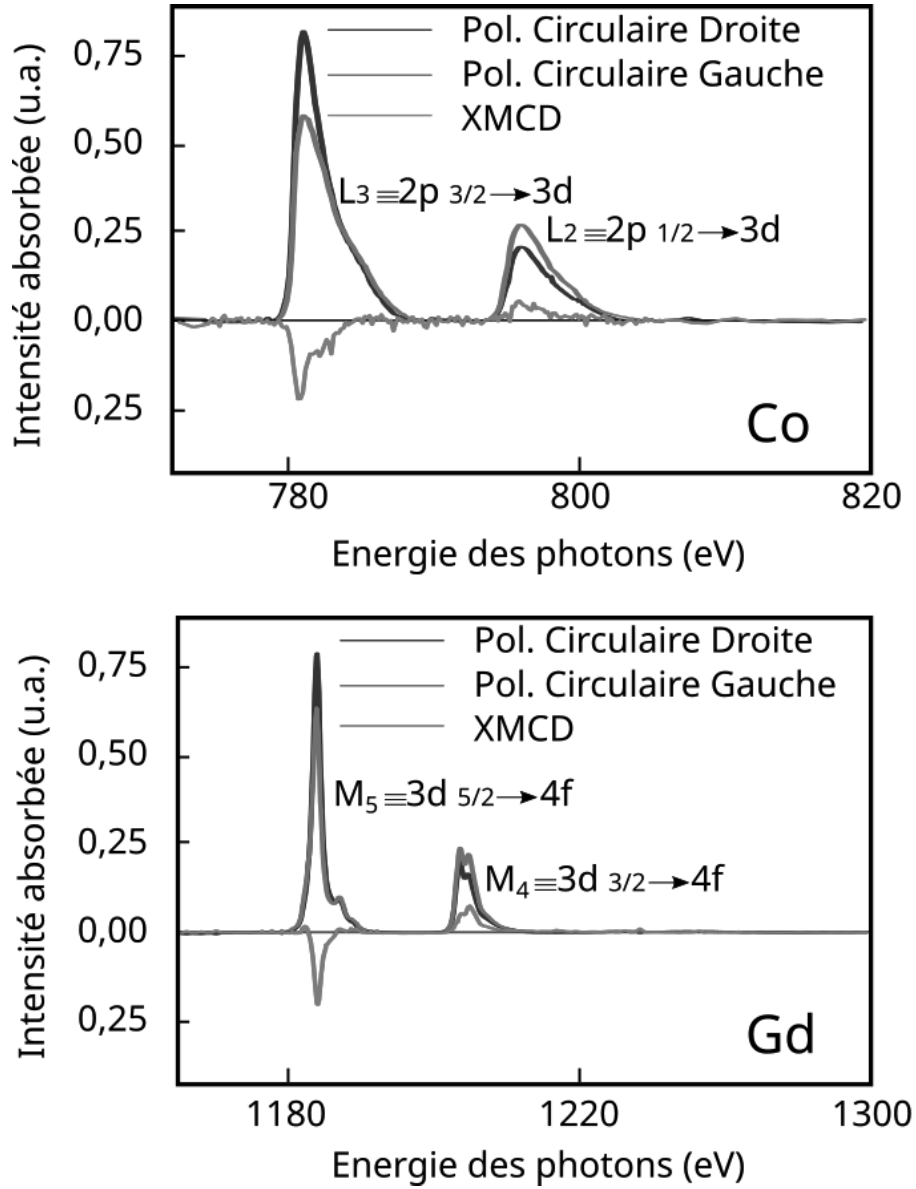


FIGURE I.6 – Spectres XAS et XMCD aux seuils $\text{Co}L_{2,3}$, en haut, et aux seuils $\text{Gd}M_{4,5}$, en bas.

Il est cependant à noter que, pendant l'expérience, on inverse généralement le champ magnétique auquel est soumis l'échantillon. En effet, un changement de population, c'est-à-dire à une échelle macroscopique, en changeant la saturation magnétique pour une direction opposée, cela a un effet similaire à un changement de polarisation, beaucoup plus long et difficile à obtenir. Un autre avantage de ce procédé est de pouvoir normaliser plus facilement le signal $I_{(XAS)}$ par l'intensité incidente des rayons X, appelée I_0 . Pour ces raisons, on préfère généralement réaliser les expériences XMCD avec une polarisation circulaire donnée et un champ magnétique capable de saturer l'échantillon dans deux directions opposées.

I.3.2 XMCD résolu en temps

Afin de mesurer la dynamique de l'aimantation d'un élément chimique constituant l'échantillon, il est nécessaire de réaliser des expériences XMCD résolues en temps. Pour cela, un système pompe-sonde est utilisé, les rayons X polarisés circulairement étant utilisés comme sonde. La pompe utilise un laser femtoseconde à 800 nm. La sonde est générée par un synchrotron qui est une très grande infrastructure scientifique (TGIR). Celle-ci permet de mesurer le signal XMCD de l'échantillon, soumis à un champs magnétique extérieur dont la direction est modifiable. Dans ce manuscrit, les mesures réalisées sur les MT sont faites au seuil L_3 . En effet, pour le Cobalt, le signal obtenu à ce seuil est proportionnel au moment magnétique total de l'orbitale 3d. Il en va de même pour le seuil M_5 pour les TR, ici le Gadolinium, et son orbitale 4f.

Dans notre expérimentation, la pompe, un laser dont la longueur d'onde est dans le domaine des IR et dont la durée d'impulsion est de l'ordre de 100 fs, qui excite l'échantillon, ne provoque pas directement la désaimantation. En effet, celle-ci va générer des électrons chauds qui vont se propager jusqu'à la couche magnétique pour provoquer la désaimantation. Le faisceau IR est placé sur une ligne de retard, ce qui permet de modifier le délai entre l'impulsion de la sonde et l'impulsion de la pompe (figure I.7). Il est cependant nécessaire que la différence temporelle soit suffisamment faible pour que les deux trains d'ondes se superposent. On appelle cette condition la superposition temporelle. Une condition de superposition spatiale entre la pompe et la sonde est aussi nécessaire pour ces expérimentations.

Une fois le système excité, il est nécessaire qu'il retourne dans un état de repos avant de pouvoir réaliser la prochaine mesure. Le temps caractéristique pour retourner à l'état initial est inférieur à $1\mu s$, ce qui permet de réaliser des mesures à une fréquence de l'ordre du MHz. À l'instant initial, la température du cryostat impose celle de l'échantillon. Cependant, l'excitation optique de la pompe réchauffe localement ce dernier. Un gradient thermique se met alors en place entre la zone excitée et le thermostat. Ce phénomène est désigné comme le réchauffement lié au laser de pompe. À échantillon identique, cette différence de température est liée à la fréquence de mesures et à la puissance de la pompe. L'intensité de la pompe est ajustable en début de manipulation alors que le taux de répétition est fixe sur les synchrotrons. Plus ces deux paramètres sont importants, plus l'écart de température augmente. Une expérience XMCD résolue en temps nécessite trois conditions principales : la superposition spatiale, la superposition temporelle, et la réversibilité de l'état final de l'échantillon après une mesure. Ce dernier point fait que la mesure est théoriquement non destructive.

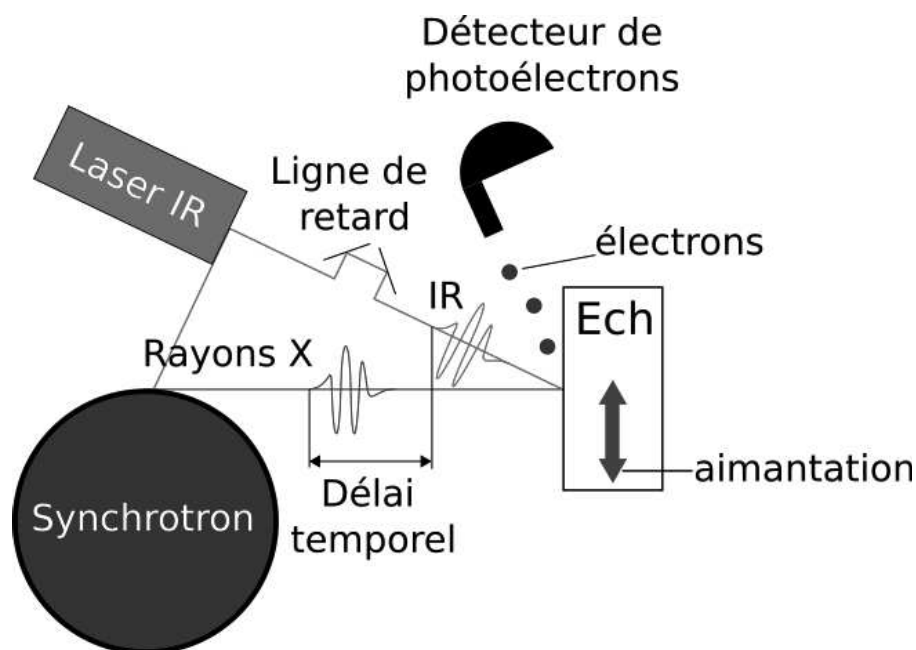


FIGURE I.7 – Schéma d’une expérience résolue en temps de spectroscopie par photoémission. Les impulsions lasers IR sont synchronisées avec les paquets d’électrons et donc avec les impulsions de rayons X.

Les mesures réalisées sont obtenues par la mesure de l’intensité de rayons X transmise. La mesure a été réalisée grâce à une diode dans la chambre de Femtoslicing du synchrotron de BESSY II (figure I.7).

I.3.3 Photoémission par rayons X

Afin de comprendre les dynamiques de désaimantation décrites dans le travail de thèse de T.Ferté dans son étude des alliages CoGd, il est nécessaire de s’assurer de la composition de l’échantillon. En effet, dans une couche d’alliage de CoGd, les tensions de surface sont très différentes et peuvent induire une ségrégation entre les deux espèces chimiques. Il est donc nécessaire de définir les concentrations de la couche de CoGd en fonction de l’épaisseur "z". Comme présenté dans la figure I.9, l’article de N.Bergeard [74] suppose une concentration de Gd importante en surface, qui se rapproche par la suite de la concentration moyenne de l’échantillon.

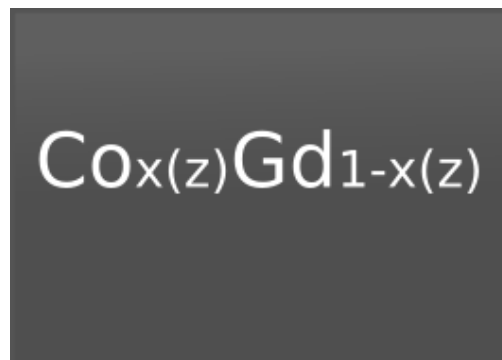


FIGURE I.8 – Schéma de la concentration de la couche d'intérêt. Le gradient de couleur indique une variation de la concentration de Gd, avec en bleu les zones riches en Gd et en gris les zones pauvres en Gd.

Pour ce faire, on s'intéresse ici à l'émission de photoélectrons lors de l'absorption de rayons X par un échantillon. Cette absorption va générer des transitions électroniques produisant l'ionisation du matériau. L'électron va alors s'échapper avec une certaine énergie cinétique. Un détecteur, discriminant les électrons en fonction de leurs énergies cinétiques, va pouvoir les détecter. On obtient ainsi des intensités proportionnelles au nombre d'électrons en fonction de leur énergie cinétique ce qui nous renseigne sur l'orbitale dont est issu cet électron. Ceci nous permet ainsi de déterminer l'ensemble des éléments chimiques composant l'échantillon, ainsi que leurs concentrations respectives. L'intérêt de cette méthode est que le photoélectron a un faible libre parcours moyen, 2 nm au plus. On détecte ainsi uniquement les électrons, et donc la composition, issus des couches dont la profondeur est inférieure ou égale à trois fois ce libre parcours moyen.

Il est possible de changer l'angle d'incidence de l'échantillon pour diminuer la profondeur sondée. Il est aussi possible de changer l'énergie des rayons X afin d'augmenter ou de diminuer l'énergie cinétique des électrons et de modifier leur libre parcours moyen dans le matériau. Ces deux méthodes permettent d'obtenir la composition des premières couches de l'échantillon ou un profil de concentration.

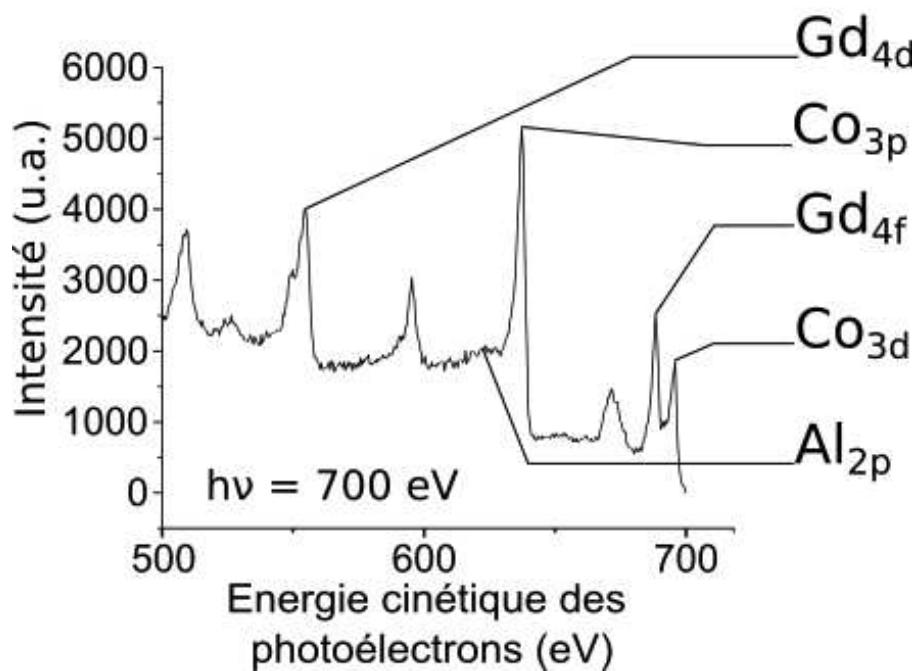


FIGURE I.9 – Spectre de photoémission représenté en fonction de l'énergie cinétique. 5 pics d'émissions correspondant aux énergies des orbitales du Co, du Gd et de l'Al sont présentés. ($h\nu=700$ eV)

Avec trois valeurs d'énergie cinétique d'un photoélectron donné, il est possible de proposer une concentration des différentes espèces chimiques en fonction de la profondeur "z". Pour le Gd_{4f} , décrit dans la figure I.10, si $h\nu=700$ eV, alors $E_{cintique}=690$ eV et le libre parcours moyen λ est de $10 \text{ \AA}$.

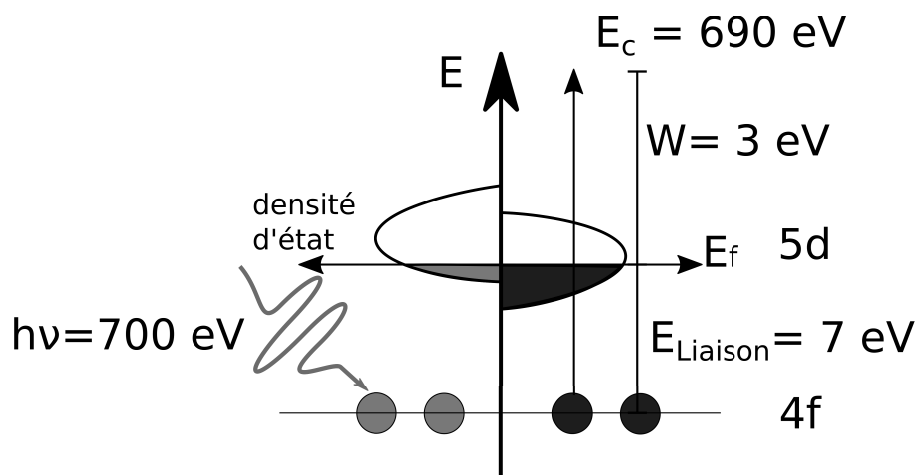


FIGURE I.10 – Structure électronique du Gd. Pour $h\nu = 700$ eV ($E_c = 690$ eV, supposant une valeur du travail de sortie (W) de 3 eV).

Conclusion

J'ai présenté dans ce chapitre les différents éléments théoriques et introduit les notions nécessaires à la compréhension du travail réalisé dans cette première partie, se focalisant sur la désaimantation ultrarapide d'un échantillon magnétique, provoquée par un courant d'électrons chauds. Nous avons ainsi vu les caractéristiques d'une désaimantation ultrarapide, et proposé un modèle physique phénoménologique. J'ai ensuite présenté les caractéristiques magnétiques en régime statique et dynamique du Co, du Gd et d'un alliage des deux espèces chimiques $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$. La dernière partie de ce chapitre s'est concentrée sur la théorie des techniques expérimentales utilisées. Le chapitre suivant présente les montages et lignes expérimentales ayant permis la réalisation des mesures.

Chapitre II

Description des montages et lignes expérimentales

Nous nous attacherons ici à décrire les montages expérimentaux permettant la caractérisation des alliages $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$. La caractérisation magnétique statique a été réalisée par des mesures de spectroscopie XMCD et Kerr. L'étude de la dynamique ultra-rapide a été réalisée par XMCD résolu en temps (tr-XMCD), dont je détaille les montages expérimentaux dans une deuxième partie. Une troisième partie est consacrée au montage ayant permis l'étude par photoémission de l'alliage $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$. Enfin, la dernière partie est consacrée aux détails de la fabrication et de la structure des échantillons étudiés lors des différentes expériences présentées dans ce manuscrit.

II.1 Description des montages expérimentaux

II.1.1 Montage pour la caractérisation au laboratoire.

Les échantillons étudiés dans le cadre de ma thèse étaient composés de deux couches ultra-minces de métaux magnétiques, définissant une vanne de spin que nous détaillerons dans la partie III. L'hystérèse magnétique des échantillons a été mesurée en fonction de l'angle grâce à un montage Kerr au sein du Département Surface Interface. En effet, il était nécessaire de vérifier que les échantillons étaient isotropes, et à défaut, trouver l'axe facile d'aimantation de la couche ferrimagnétique de $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$. Nous avons aussi pu définir les champs coercitifs (H_c) des deux couches magnétiques composant notre vanne de spin.

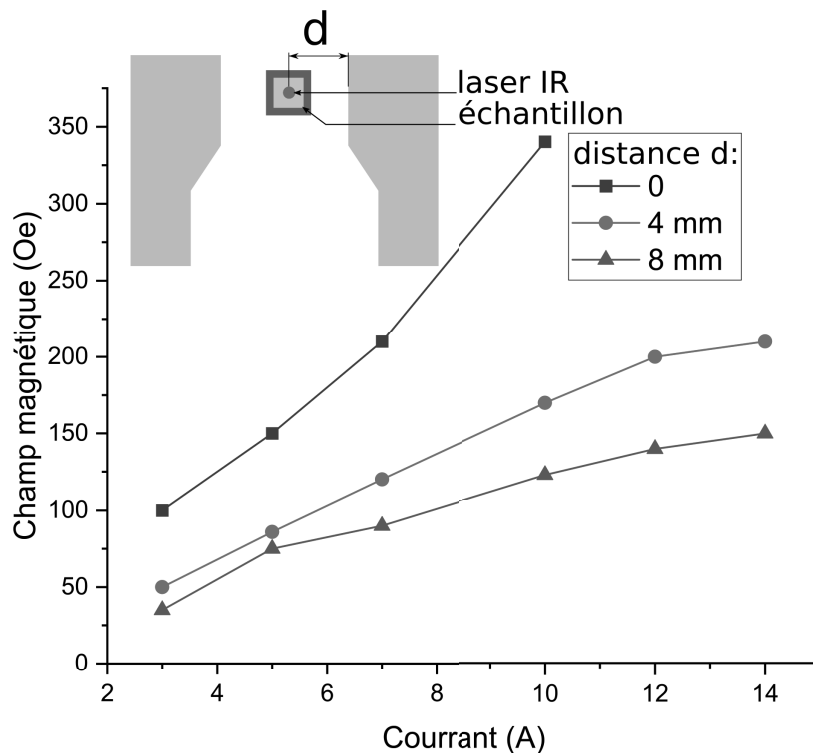


FIGURE II.1 – Champ magnétique généré par l'électro-aimant en fonction de la distance au bord et du courant. L'encart présente la vue de face de l'électro-aimant en forme de fer à cheval permettant la mesure par effet Kerr. L'échantillon est placé à une distance d du bord de l'entrefer, avec $d=0\text{mm}$ (noir), 4mm (rouge) et 8mm (bleu), pour faire varier le champ magnétique au centre de mon échantillon.

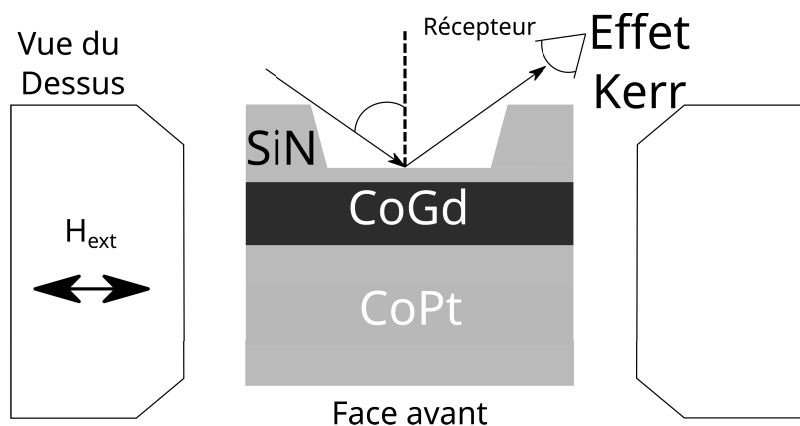


FIGURE II.2 – Vue du dessus de l'électro-aimant utilisé pour les mesures Kerr. La taille de l'échantillon est exagérée pour faciliter la description de l'échantillon. L'axe facile d'aimantation du CoGd et du CoPt sont dans le plan. La détection se fait par la face arrière afin d'augmenter la sensibilité à la couche de CoGd.

Le montage expérimental permettant de réaliser les mesures Kerr est décrit dans les figures II.1 et II.2. Un rayon laser de 800 nm, polarisé linéairement, est focalisé sur l'échantillon qui est placé dans un électro-aimant, dont le champ magnétique est variable (figure II.1). Le rayon réfléchi voit sa polarisation changer en fonction de l'aimantation de l'échantillon, par effet Kerr. On réalise une mesure de l'amplitude du laser, grâce à une diode renvoyant au système d'acquisition la tension à ses bornes. En effet, le laser traverse un analyseur, réglé sur la polarisation initiale du laser. En faisant varier le champ magnétique extérieur en fonction du temps, on peut ainsi obtenir le cycle d'hystérèse de l'aimantation de l'échantillon. La plupart des mesures ont été réalisées à température et à la pression ambiantes.

II.1.2 Les synchrotrons

Toutes les mesures présentées dans les trois premiers chapitres de cet ouvrage, à l'exception des caractérisations de l'hystérèse magnétique des échantillons, ont été réalisées sur de très grandes infrastructures de recherches (TGIR) : les synchrotrons. Pour plus de détails voir l'annexe .1.

II.1.3 Description des synchrotrons utilisés.

Dans cette partie, nous nous intéresserons aux deux TGIR utilisés dans mon travail.

SOLEIL

Situé sur le plateau de Saclay, au sud de Paris, le synchrotron de 3e génération SOLEIL a ouvert ses portes en 2006. Les électrons contenus dans celui-ci ont une énergie cinétique de 2.75 GeV, leur vitesse est donc relativiste, et ils sont regroupés en paquets. L'anneau peut être rempli par différentes configurations de paquets d'électrons. Le site de SOLEIL [91] énumère ainsi quatre modes de remplissage, ayant chacun leurs avantages et leurs inconvénients. Le mode 4/4 permet ainsi une brillance maximum, tandis que les modes 8-bunch ou 1-bunch permettent des études dynamiques au travers de montages pompe-sonde. Notons que cette page ne recense pas le mode Low Alpha, utilisé pour nos expériences de photoémission, ce qui s'explique par son ajout plus tardif, indiqué dans une page dédiée. [72]

BESSY II

Situé à la périphérie de Berlin, et ouvert en 1998, le synchrotron BESSY II est de deuxième génération. Les résultats présentés dans le chapitre V ont été réalisés sur ces deux lignes de lumières différentes du synchrotron. Nous avons réalisé des expériences statiques sur la chambre ALICE de la ligne PM3 tandis que les expériences pompe-sonde ont été réalisées sur la station Femtospexs, de la ligne UE56-ZPM.

Deux modes de travail ont été utilisés lors de nos expérimentations. Le mode hybride permet d'obtenir une résolution de 60 ps lors des expériences résolues en temps lors du femto-slicing. BESSY II a été pionnier dans l'emploi de cette méthode, [58, 52, 69] utilisée sur Femtospexs afin de générer des impulsions de rayons X d'une durée de 100 fs. La méthode repose sur l'excitation des électrons présents dans l'anneau par une impulsion fs de laser IR afin de modifier leur énergie. La variation d'énergie ΔE est de l'ordre de ± 20 MeV. Les électrons ainsi excités sont discriminés en angle en fonction de leur énergie par un aimant de courbure. La résolution temporelle globale des mesures pompes-sonde issues de ces impulsions, est de 130 fs. Chaque paquet d'électrons génère environ 1000 photons X polarisés circulairement. Les détails techniques des lignes sont présentés dans les parties II.2.2 et II.2.3.

II.2 Description des lignes et des stations expérimentales

Dans cette partie, nous présenterons de façon plus précise les lignes et les stations expérimentales avec lesquelles nous avons réalisé les expériences présentées dans le chapitre V.

II.2.1 TEMPO à SOLEIL : mesures statiques

Les expériences de photoémission par rayons X ont été réalisées à la station UHV Photoémission, sur la ligne TEMPO [87]. Cette station permet de réaliser des expériences de spectroscopie de photoélectrons résolues en angle et en énergie. Les photons disponibles ont une énergie comprise entre 50 eV et 1500 eV. Le facteur de résolution, $E/\Delta E$, est supérieur à 10 000. Les températures atteignables sont comprises entre 80 et 350 K. Les expériences de photoémissions ont néanmoins été réalisées à température ambiante. La pression est proche de 10^{-10} mbar. L'échantillon est placé entre les bras d'un électro-aimant en fer-à-cheval solidaire de l'échantillon, et qui tourne donc avec celui-ci pour les analyses angulaires. Cette forme permet de limiter la présence de lignes de champ à la surface de l'échantillon. Celles-ci ont en effet un impact sur la trajectoire des électrons émis. L'électro-aimant applique un champ magnétique dont la valeur maximum est 0,01 T, et la direction du vecteur est contenue dans le plan de l'échantillon (figure II.3). Il est possible d'atteindre 0,025 T en mode pulsé.

La station expérimentale est aussi équipée d'une chambre dédiée à l'emploi d'un canon à ions. Celui-ci permet de réaliser des bombardements ioniques afin de décaper la surface en éliminant les oxydes, carbones et les métaux. Ceci permet notamment de réduire l'épaisseur des couches supérieures de métal. Ce dispositif a permis d'étudier l'évolution de la concentration des métaux en fonction de la profondeur de deux alliages $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$.

Dans la chambre principale, un analyseur hémisphérique "scientia SES 2002", équipé d'une ligne à retard, permet l'exploitation de la partie temporelle de la lumière émise par le synchrotron. [10] Il est à noter que la ligne, équipée d'un laser femtoseconde, synchronisé avec un paquet isolé, permet de réaliser des expériences de spectroscopie résolues en temps, avec une résolution d'environ 10 ps.

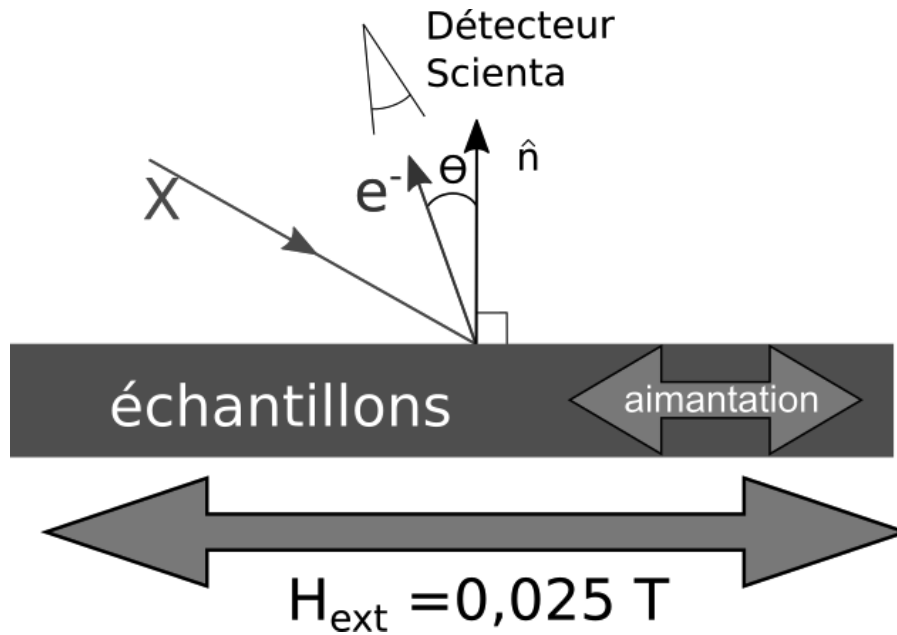


FIGURE II.3 – Schéma de la géométrie de l'expérience sur la ligne Tempo à SOLEIL. θ définit l'angle entre la normale à la surface ($\hat{n}$) et la direction d'émission des photoélectrons. L'angle d'incidence des rayons X est de 45° par rapport à la normale.

II.2.2 PM3 à BESSY II : mesures statiques

Sur la station Alice de la ligne PM3 à BESSY [81] il est possible de réaliser des mesures d'absorption de rayons XAS en mesurant l'intensité des rayons X transmis. Ces mesures permettent la caractérisation d'échantillons magnétiques par des mesures statiques résolues chimiquement. L'énergie des photons est comprise entre 20 et 1900 eV. À 64 eV, le facteur résolvant est de 32 000. Il est possible d'atteindre des pressions de 10^{-7} mbar et de faire varier la température de l'échantillon dans une gamme comprise entre 80 et 400 K. Un champ est appliqué à l'échantillon à l'aide d'un électro-aimant. L'amplitude maximum du champ magnétique est 0,7 T, et sa direction par rapport à l'échantillon peut être changée grâce à une rotation des fers de l'aimant comme présenté sur la figure II.4. L'expérience se focalise sur l'aimantation dans le plan de l'échantillon. Cependant, le signal XMCD ne permet de détecter que l'aimantation colinéaire à la direction de propagation des rayons X. À l'inverse, la chambre permet de réaliser des mesures, si le champ magné-

tique et l'échantillon sont perpendiculaires au faisceau des rayons X, comme présenté dans la figure II.4. Un compromis est donc nécessaire, ce qui nous oblige à réaliser les mesures avec un angle $\theta = 30^\circ$.

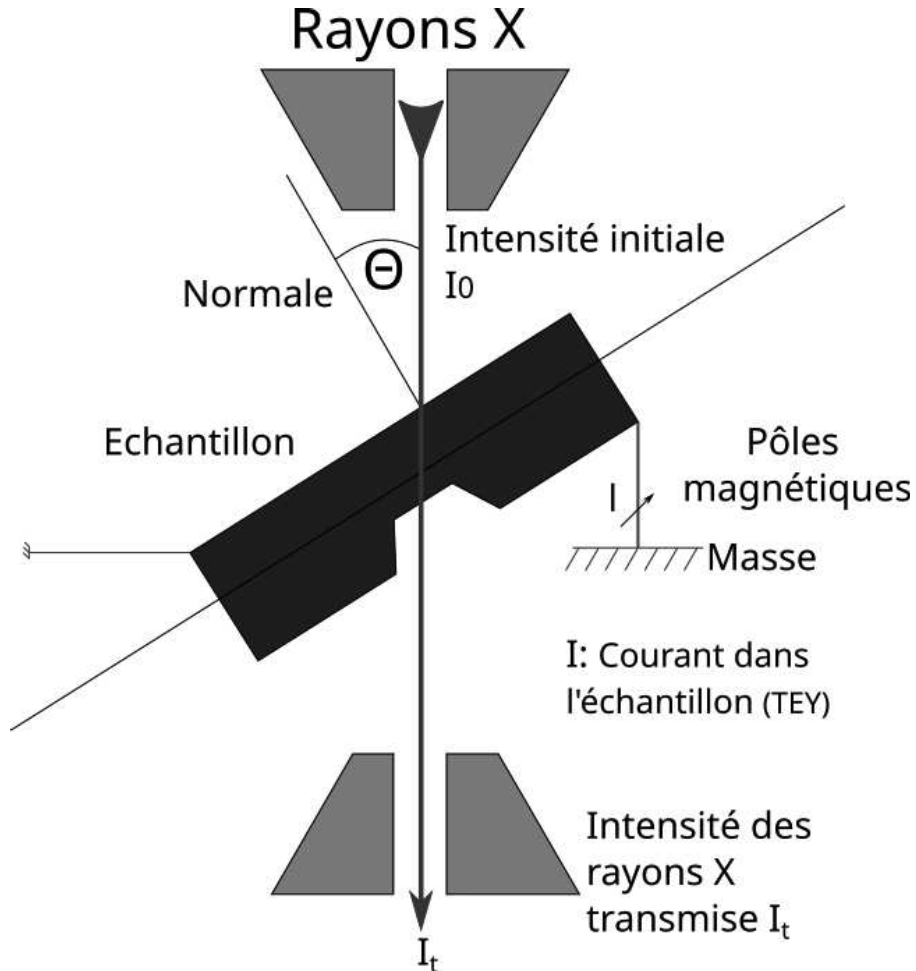


FIGURE II.4 – Géométrie des éléments présents dans la chambre Alice sur la ligne PM3 à BESSY II. $\theta = 30^\circ$. Notons que les rayons X ne sont pas focalisés sur la surface de l'échantillon, ce qui conduit à un bruit important au vu de la taille limitée de la membrane ($0,5 \times 0,5 \text{ mm}^2$).

II.2.3 UE56-ZPM à BESSY II : mesures dynamiques

Afin d'optimiser l'intensité des rayons X un monochromateur à zone plate ayant une faible résolution en énergie ($\Delta E \approx 4 \text{ eV}$) est utilisé. Le facteur résolvant varie entre 500 et 2000, et permet d'optimiser l'intensité après le monochromateur. Afin de réaliser les réglages préliminaires dans des temps raisonnables, un autre mode est utilisé : le mode hybride, avec une résolution temporelle plus faible, de l'ordre de 60 ps. L'avantage est que l'intensité plus importante des rayons X permet un réglage rapide des paramètres expérimentaux (température de travail, flux de la pompe IR...). Le faisceau X

est transmis et est, plus ou moins, absorbé par l'échantillon en fonction de l'énergie des rayons X. Un électro-aimant applique un champ magnétique dans les trois directions de l'espace. Il y a un angle non nul ($\approx 35^\circ$) entre la normale à la surface de l'échantillon et la direction de propagation des rayons X, car l'axe de facile aimantation est dans le plan (figure II.6). [52].

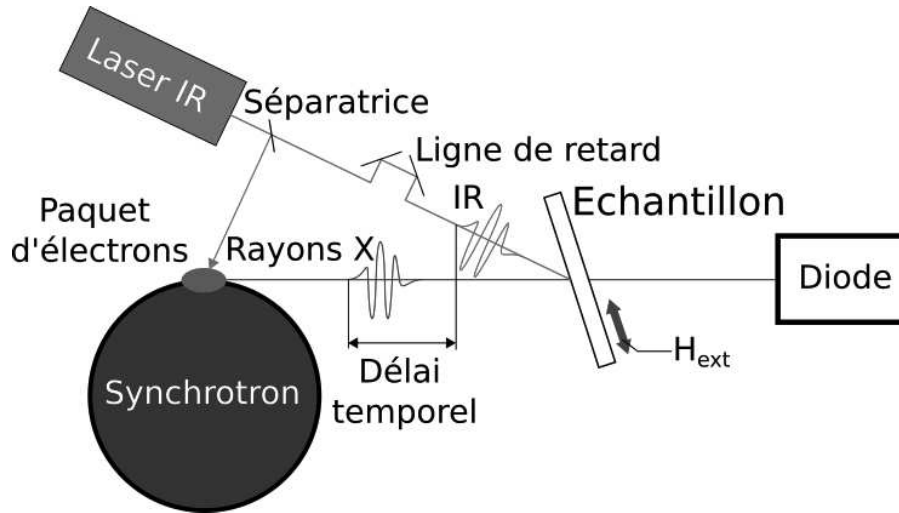


FIGURE II.5 – Géométrie utilisée sur la ligne Femtoslicing en mode transmission des rayons X. Des impulsions IR à 800nm sont utilisées pour exciter l'échantillon avec un angle d'incidence de 5° par rapport à la direction de propagation des rayons X. Ces impulsions sont synchronisées avec les paquet d'électrons, et donc avec les impulsions de rayons X.

Caractérisation des faisceaux pompe et sonde et superposition spatiale

La taille caractéristique des faisceaux lumineux est définie à partir de la largeur à mi-hauteur (FWHM), mesurée expérimentalement. Les deux faisceaux pompe et sonde sont elliptiques et ont des largeurs à mi-hauteur (FWHM en anglais) respectivement de 500 et $150 \mu m$. La pompe est plus large que la sonde afin que la zone d'échantillon sondée soit excitée de façon la plus homogène possible. Un support percé d'un trou de $200 \mu m$ de diamètre permet de réaliser la superposition pompe-sonde. Pour ce faire, un support, appelé "pinhole", est placé sur la même position que nos échantillons pour permettre de laisser passer les rayons X. Ensuite, grâce à un jeu de lentilles, le faisceau de la pompe IR est dirigé sur le trou de la plaque. Le support est observé en permanence grâce à une caméra. Il est ainsi possible de visualiser le faisceau IR de la pompe atteignant l'échantillon. Il est à noter que les rayons X vont traverser toute l'épaisseur de l'échantillon, d'environ 100 nm d'épaisseur. La réponse obtenue sera donc une moyenne, chimiquement sélective, des différentes contributions de chacune des couches sondées. Ce point est à prendre en compte si la même espèce chimique est

présente dans différentes couches.

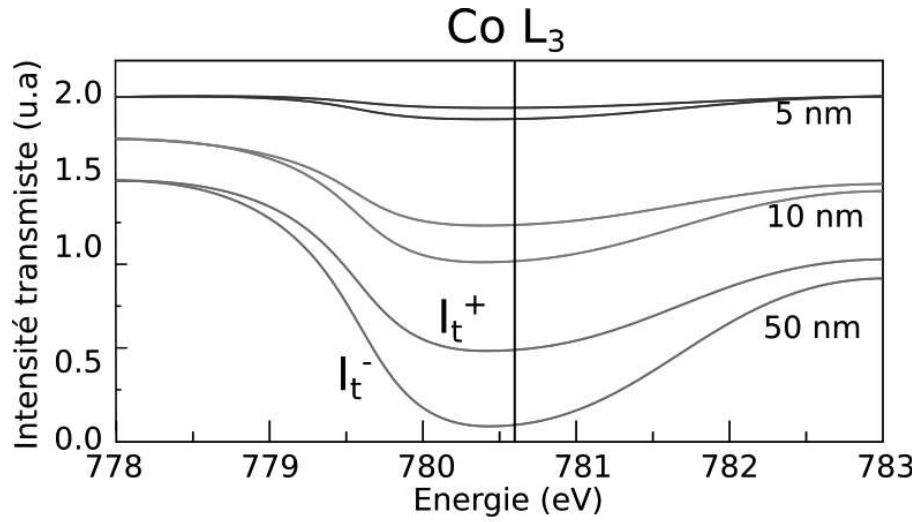
Superposition temporelle

Afin de vérifier la bonne superposition temporelle de la pompe et de la sonde, des mesures de désaimantation ultra-rapide d'un film magnétique sont effectuées en mode hybride. Il est possible d'utiliser un échantillon de calibration, ayant un signal XMCD important. Il est aussi nécessaire que l'échantillon ne bloque pas la pompe infrarouge et puisse être directement excité par celle-ci. La superposition temporelle est déterminée avec une précision de 60 ps. La mesure est ensuite affinée en passant au mode femtoslicing. Le t_0 est alors déterminé avec une précision de 100 fs. L'angle faible entre le faisceau pompe et sonde, permet d'avoir une variation faible de la superposition temporelle entre la pompe et la sonde en cas de déplacement de l'échantillon. En reprenant l'exemple d'un déplacement hypothétique de 3 mm, la superposition change d'environ 1,5 fs. Ceci est inférieur à la résolution temporelle de l'expérience, d'environ 130 fs. Cette variation est donc bien inférieure à l'incertitude temporelle.

Un champ magnétique est appliqué à l'échantillon avant de réaliser les mesures résolues en temps puis est conservé pendant la durée des mesures. L'aimantation de l'échantillon est alors saturée avant le début des excitations optiques et va revenir à cet état entre chaque impulsion laser. La couche magnétique mesurée a une épaisseur de 15 nm. Ceci est dû à deux paramètres imposant des contraintes opposées.

Premièrement, une importante transmission des rayons X, I_t à travers l'épaisseur totale de l'échantillon limite l'épaisseur des échantillons à des valeurs faibles. Cette épaisseur devra donc être inférieure à 160 nm de cobalt par exemple.

Deuxièmement, la transmission, aux seuils L3 et M5, va varier en fonction de la direction du champ déterminant I_t^+ et I_t^- et donne lieu à la sensibilité du moment magnétique. La variation de transmission du signal pour les deux directions opposées de l'aimantation, notée $I_t^+ - I_t^-$ imposera au contraire une épaisseur suffisante pour observer une valeur non-négligeable. En effet, en cas de couche trop fine (1 nm par exemple) la variation $I_t^+ - I_t^-$ sera faible et difficilement détectable. Ainsi, la limite inférieure de la couche magnétique est de 5 nm.



épaisseur	I_t	$I_t^+ - I_t^-$	pompage par Electrons chauds
petite	grand	faible	homogène
moyenne	grand	grand	homogène
grande	faible	grand	non homogène

FIGURE II.6 – Schéma de la transmission en fonction de l'énergie du photon au seuil CoL_3 pour trois épaisseurs de matière sondée. Les courbes sont théoriques et représentent l'amplitude relative des signaux en transmission pour deux champs magnétiques opposés : I_t^+ et I_t^- . La figure est partiellement issue de la thèse de T.Ferté. [39]

L'intervalle des épaisseurs de 5 à 50 nm est large, cependant une contrainte supplémentaire se rajoute aux précédentes obligations liées à l'intensité des rayons X. Cette contrainte relève de la nécessité de pomper par IR une couche de métal homogène. Sur une profondeur de 15 nm, le pompage est homogène puisque le libre parcours moyen des IR à 800 nm est d'environ 10 nm [75]. Ces considérations ne tiennent pas compte de la spécificité de mes expériences pompe-sonde. En effet, les excitations de la couche Co_xGd_{1-x} sont produites par des impulsions de courants d'électrons chauds, de libre parcours bien inférieures à ceux des rayons IR (environ 3 à 5 nm). Nos échantillons de CoGd ont donc été obtenus avec une épaisseur de 15 nm.

Chapitre III

Echantillons : structure et fabrication

Les échantillons présentés dans cette section ont été fabriqués à l'Institut Jean Lamour(IJL) de Nancy par Michel Hehn, grâce à la méthode de pulvérisation cathodique (magneton sputtering en anglais). La première partie va être consacrée à la description du fonctionnement d'un bâti de pulvérisation cathodique magnétron. La deuxième partie sera consacrée à la description des échantillons eux-mêmes, ainsi qu'à la justification de leurs architectures.

III.1 Méthode de pulvérisation cathodique

W. R. Grove a démontré en 1852 le principe de la pulvérisation cathodique. Ce phénomène a des applications industrielles, développées au milieu du 20e siècle, dans la fabrication de films minces. La méthode est la suivante : une décharge électrique entre deux électrodes, une anode et une cathode, dans une enceinte à basse pression, avec une atmosphère de gaz inerte pousse à la formation d'une couche mince sur l'anode de la matière composant la cathode. En effet, le gaz inerte, de l'argon (Ar) dans notre cas, va s'ioniser sous la tension importante présente entre les deux électrodes. Les ions et les électrons vont alors former un plasma froid permettant la conduction d'un courant entre les deux électrodes. Si les électrons sont absorbés par l'anode, les ions d'argon vont s'écraser sur la cible, pulvérisant sa surface. Les atomes ainsi arrachés vont se déposer en partie sur le substrat, formant ainsi une couche mince figure III.1.

Cette méthode, la pulvérisation cathodique magnétron, est une technique de dépôts physiques en phase vapeur. (PVD) La vitesse de dépôt est importante comparativement à d'autres techniques, comme l'épitaxie par jet moléculaire par exemple. L'avantage de la vitesse de fabrication est la faible quantité d'impureté dans l'échantillon après sa fabrication. Cette méthode a, pour autre avantage, de permettre le dépôt de tout type de matériau quel que soit leur capacité à conduire la chaleur ou le courant électrique, du mo-

ment qu'ils sont capables de résister au vide ou à des hausses importantes de température dues aux ions Ar^+ .

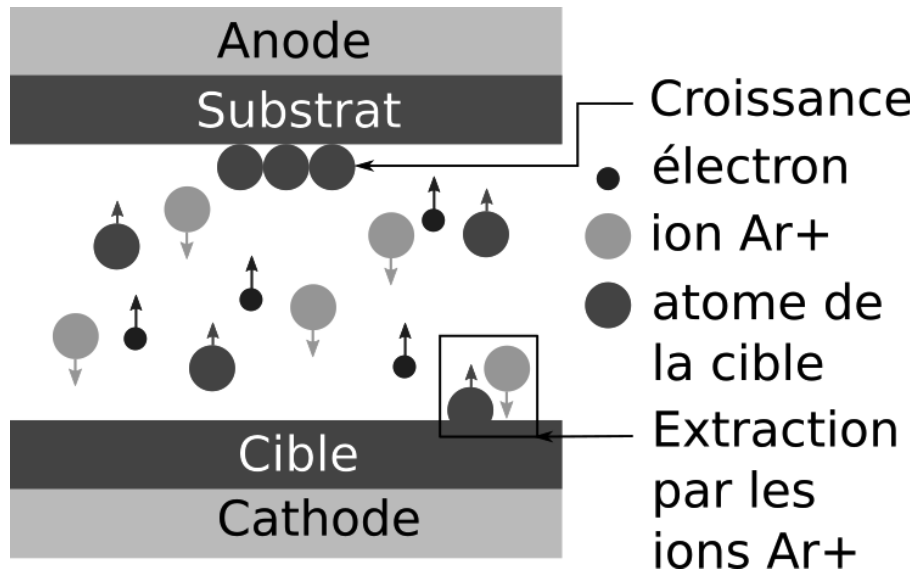


FIGURE III.1 – Schéma illustrant la croissance de couches par pulvérisation cathodique.

Le bâti utilisé à l'IJL de Nancy pour la pulvérisation cathodique magnétron peut contenir jusqu'à 10 cibles (6 de 5 cm, et 4 de 7,5 cm) composées de différents matériaux tels que des métaux de transition Co, Pt, Cu, Ta, Al, Ni, des terres rares Tb, Dy, Gd ou des oxydes IrMn_3 , MgO . Le vide présent dans la chambre lors de la pulvérisation est de 4×10^{-6} bar. Il est possible de mettre des cibles convergentes sur certaines cathodes. Ceci permet la réalisation d'alliage MT/TR avec des concentrations différentes. Une autre utilité est la réalisation de multicouches, ce qui est crucial pour l'architecture des échantillons choisis. Il est important de noter que le substrat est maintenu à température ambiante lors du dépôt. Ceci a pour objectif de limiter les contractions thermiques, pouvant détruire l'échantillon, en cas de variations trop importantes de température.

III.2 Structure des échantillons

III.2.1 Caractérisations statiques et femtoslicing.

Les échantillons présentés dans ces six premiers chapitres ont deux types de structures similaires à celles présentées dans la figure III.2. La structure utilisée pour la plupart des expériences, en statique comme en dynamique, est composée d'une couche supérieure, produisant des électrons chauds par excitations IR. Ce capping, de 5 nm d'épaisseur, a aussi pour utilité d'empêcher toute oxydation. Pour ces deux raisons, le métal choisi pour cette couche est du platine. La couche suivante est une couche tampon, servant

à absorber l'IR de la pompe, tout en conduisant les électrons issus de la couche supérieure. Le cuivre remplit ces deux fonctions. Une couche magnétique dure va ensuite polariser les électrons. Un alliage de cobalt-platine Co_xPt_y ayant un axe d'aimantation facile dans le plan, a été utilisé. Ces électrons chauds vont finalement exciter l'aimantation de la dernière couche magnétique, le CoGd. Les matériaux composant cette couche, étudiée dans ce manuscrit de thèse, sont des alliages de MT-TR composés de cobalt et de gadolinium. Les concentrations étudiées sont $Co_{69}Gd_{31}$ et $Co_{61}Gd_{39}$ pour les expériences de désaimantation ultrarapide, décrites dans le chapitre V. Les concentrations de gadolinium choisies ici se justifient par le fait que le champ coercitif est dominé par la dynamique du Gd à ces concentrations.

Tous les alliages de CoGd ont une épaisseur de 15 nm.

Un buffer est placé entre le substrat et la couche de CoGd. Sa conduction thermique importante permet de limiter l'échauffement de l'échantillon relatif à l'excitation infrarouge. Sa structure est la suivante :

$$Ta(3\text{ nm}) / [Cu(20\text{ nm}) / Ta(3\text{ nm})] \times 5$$

Le cuivre, est un excellent conducteur thermique. L'emploi de tantale a pour but de créer une interface peu rugueuse estimée à 1 nm. Ces matériaux sont transparents pour les longueurs d'ondes de sonde X utilisées, et sont donc conservés pour toutes les mesures.

La structure des échantillons est détaillée sur la figure III.2. Les différentes couches, décrites du haut vers le bas, sont élaborées pour les raisons suivantes :

Le platine génère les électrons chauds à la suite des impulsions IR.

La couche de cuivre de 60 nm empêche la propagation de l'excitation optique, tout en permettant la propagation des électrons chauds générés par la couche supérieure. Le choix d'une couche épaisse s'explique par l'objectif de réduire au maximum le nombre de photons IR atteignant la couche de CoGd. Une couche de cuivre deux fois moins épaisse aurait laissé passer 5 % des rayons IR, contre moins de 0,03 % dans la configuration actuelle. Cette discussion est approfondie dans la partie IV.3 à la page 68.

La couche de CoPt, magnétiquement dure, va polariser les électrons qui la traversent, permettant d'avoir une population d'électrons chauds avec un spin majoritaire défini parallèle à $\vec{M}_{CoPt}$. Le taux de polarisation n'est pas mesuré.

La deuxième couche de Cu, de 4 nm, sert de couche de découplage magnétique entre le CoPt et le CoGd.

La dernière couche, composée de CoGd, est une couche à faible valeur du champ coercitif, dont la désaimantation est observée en fonction du délai entre la pompe IR et la sonde X.

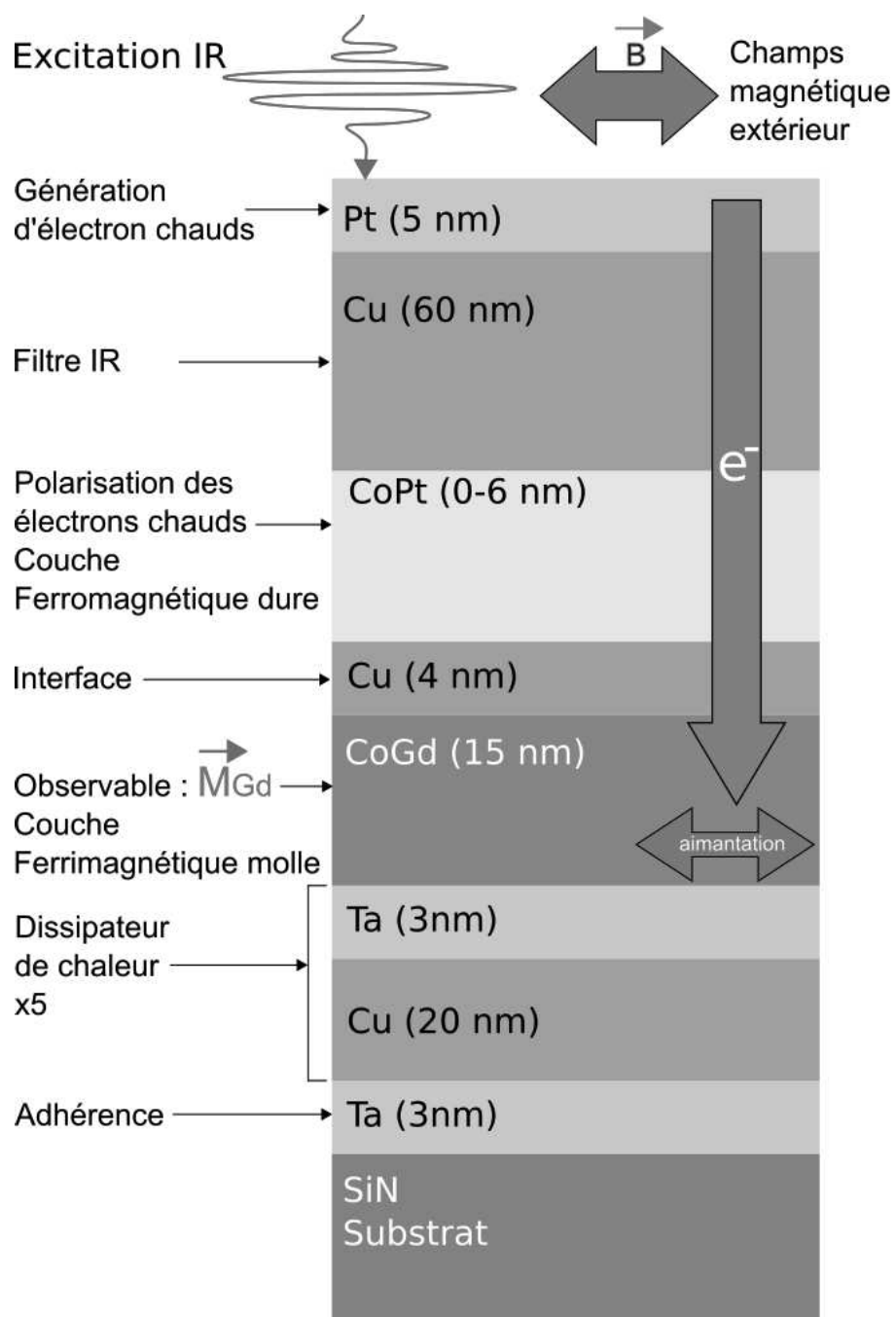


FIGURE III.2 – Schéma de la structure complète de nos échantillons.

Contre toute attente, le CoGd possède une anisotropie magnétique dans le plan. Ceci est confirmé par nos mesures Kerr, présentées dans la figure IV.3, page 54.

III.2.2 Caractérisations par photoémission des niveaux de cœur.

L'échantillon utilisé dans le cadre de la photoémission est différent. En effet, seule la couche de CoGd est nécessaire pour cette étude. Les concentrations étudiées dans le cadre de ces expériences, décrites dans le chapitre VI, sont $Co_{80}Gd_{20}$ et $Co_{65}Gd_{35}$. Cependant, afin d'éviter l'oxydation, une couche de 5nm d'aluminium est rajoutée. Celle-ci est retirée in-situ, afin de pouvoir sonder l'alliage de CoGd, la méthode de photoémision n'étant sensible qu'aux premiers nm de l'échantillon. La structure est présentée dans la figure III.3.

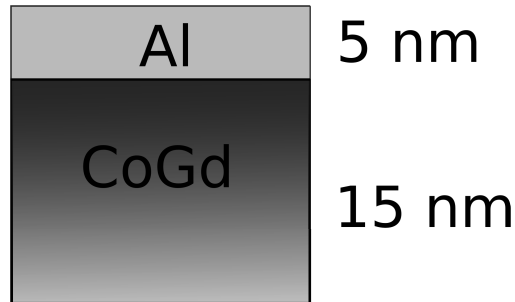


FIGURE III.3 – Structure de l'échantillon composé d'une couche d'aluminium de 5 nm afin d'empêcher l'oxydation de la couche de CoGd de 15 nm dont on souhaite étudier la concentration de Gd en fonction de la profondeur.

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté la méthode de fabrication des échantillons. Nous avons également exposé les deux structures principales, servant à deux pans différents de l'étude.

La première motivation, qui fait suite à la thèse de T.Ferté [39], est d'étudier l'impact du spin sur la désaimantation ultrarapide d'une couche excitée par électrons chauds qui n'avait pas été traité. Les échantillons nécessaires à cette étude ont été présentés dans la partie III.2.1. Notons que cette dernière se concentre sur un alliage de MT-TR. Ceci s'explique par les qualités de ces matériaux, notamment industrielles, mais aussi par une curiosité pour la dynamique de désaimantation des TR, les MT ayant déjà été étudiés dans ce cas. [68, 109] La dynamique de l'alliage varie en fonction de sa composition, dont la concentration varie en fonction de la profondeur de la couche. Ceci nous a motivé pour étudier en détail la composition de l'alliage, de l'échantillon présenté dans la partie III.2.2.

Chapitre IV

Caractérisation magnétique des couches Co_xGd_{1-x}

IV.1 Anisotropie des couches minces : étude de l'axe facile de l'aimantation par effet Kerr magnéto optique

Dans cette partie, nous présenterons le comportement magnétique de la couche de CoPt, en vert sur la figure IV.1, et de la couche de CoGd, en violet sur la même figure, en fonction de l'angle. En effet, il est important de vérifier si ces couches possèdent un axe facile d'aimantation et de le définir. On s'assure ainsi que l'échantillon est orienté dans une direction où le champ coercitif de la couche magnétique dure est supérieur à celui de la couche de CoGd. Il est, en effet, nécessaire de s'assurer que le champ extérieur censé retourner l'aimantation de la couche de CoGd ne retourne pas la couche de CoPt. L'autre objectif de l'étude est de trouver un angle d'aimantation facile pour la couche de CoGd, permettant de l'aimanter dans une direction choisie en utilisant une amplitude de champ extérieur minimum. L'échantillon, étant fabriqué par pulvérisation cathodique, est amorphe.

Les mesures de cycles d'hystérésis ont été réalisées grâce à un montage MOKE, introduit dans la section II.1.1 à la page 36, présenté dans la figure IV.2 qui, comme nous le verrons, n'est pas sensible aux différentes couches. Nous enregistrons ainsi le signal moyen de la couche de CoGd et de la couche faisant office de couche magnétique dure. Dans les échantillons présentés, la couche de CoGd a une épaisseur de 15 nm, et celle de cuivre de 4 nm. La température de mesure est $T=300^\circ\text{K}$.

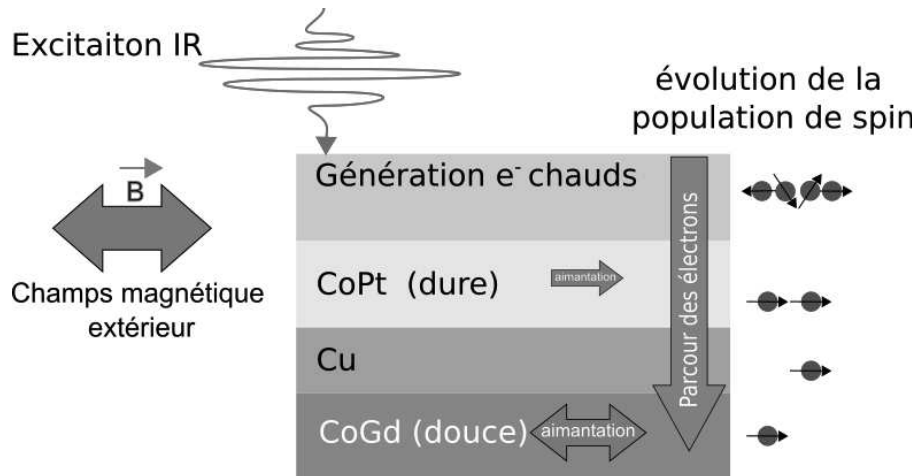


FIGURE IV.1 – Dessin simplifié de la structure de l'échantillon, omettant les couches supérieures et le substrat, et présentant le parcours, la génération et la polarisation en spin des électrons chauds, ainsi que l'orientation des spins.

Plusieurs alliages de $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ ont été fabriqués et caractérisés par effet Kerr en fonction de l'angle dans le plan. On peut constater sur la figure IV.3 que le champ coercitif (H_c) est maximum entre 45° et 90° et correspond à environ ± 50 Oe. H_c est minimum suivant 0° . Notons que l'orientation de l'axe facile varie entre chaque échantillon, justifiant une étude détaillée avant les expériences de femtoslicing. Le schéma de l'expérience est présenté sur la figure IV.2.

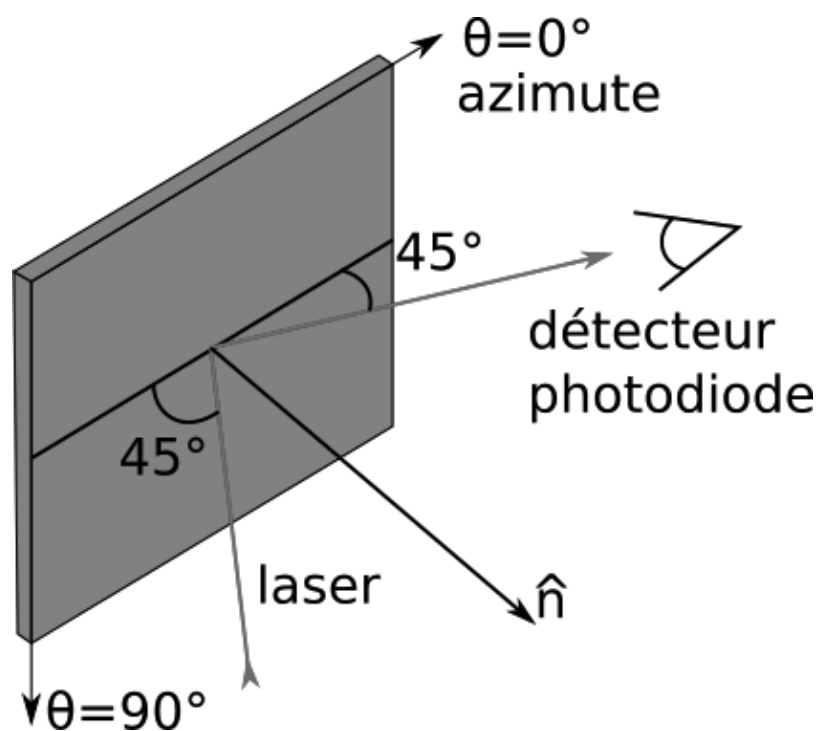


FIGURE IV.2 – Schéma du montage permettant la mesure Kerr. $\theta_{azimuth}$ est l'angle dans le plan horizontal de l'échantillon, par rapport à une référence arbitraire, noté pour chaque échantillon. L'angle de réflexion du laser est de 45° et celui-ci est polarisé de façon linéaire.

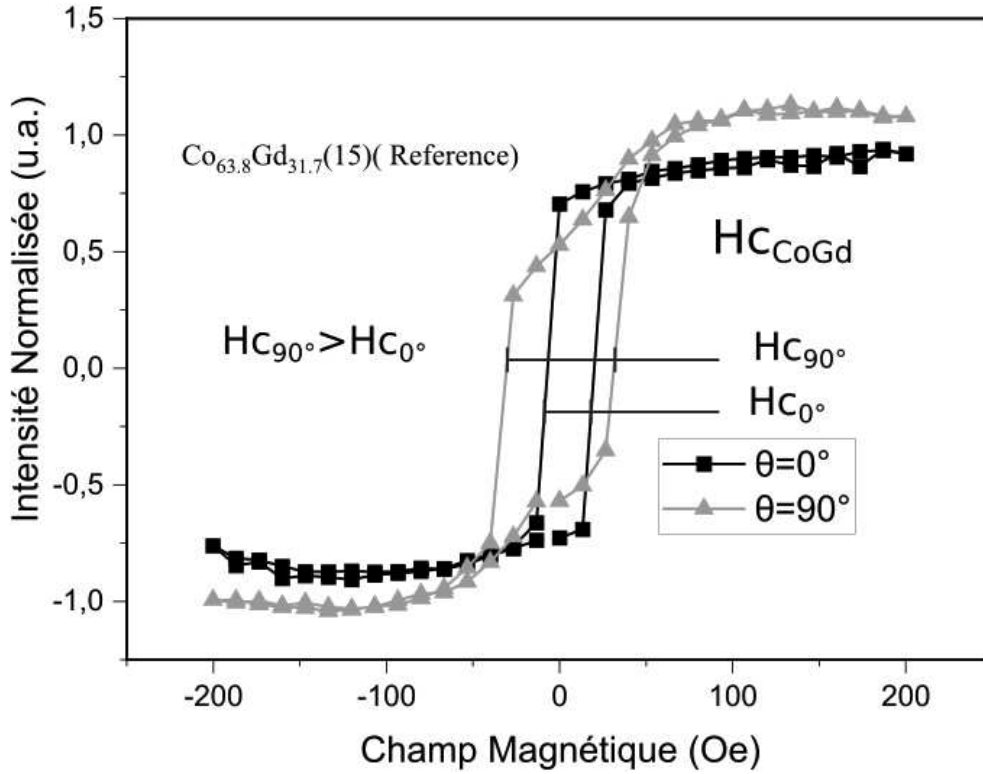


FIGURE IV.3 – Cycle d'hystérèse magnétique de la couche de $\text{Co}_{63.8}\text{Gd}_{31.7}$ isolée en fonction du champ magnétique appliqué et en fonction de l'azimut θ . L'échantillon mesuré est dépourvu de CoPt. L'axe facile dans le plan est ici défini comme $\theta = 0^\circ$ et montre que $H_c = 20$ Oe. Pour $\theta = 90^\circ$, H_c est clairement supérieur à 20 Oe et le cycle est moins carré.

Comme expliqué dans la partie II.1.1, la mesure est réalisée par effet Kerr longitudinal magnéto optique (MOKE). Les cycles présentant l'effet des deux couches ont été mesurés sur la face arrière de l'échantillon, le substrat de SiN ayant été rendu plus fin pour permettre la transmission des rayons X. La mesure n'étant pas chimiquement sélective, on détecte ainsi la couche magnétique molle de CoGd, mais aussi la couche servant de couche magnétique dure de CoPt avec une moindre contribution au signal total. Celle-ci a une épaisseur différente en fonction de l'échantillon, et varie entre 0 nm et 6 nm. L'hystérèse est une superposition des signaux magnétiques des deux couches. Les hystérèses suivantes sont obtenues suivant l'angle azimutal θ défini dans le plan.

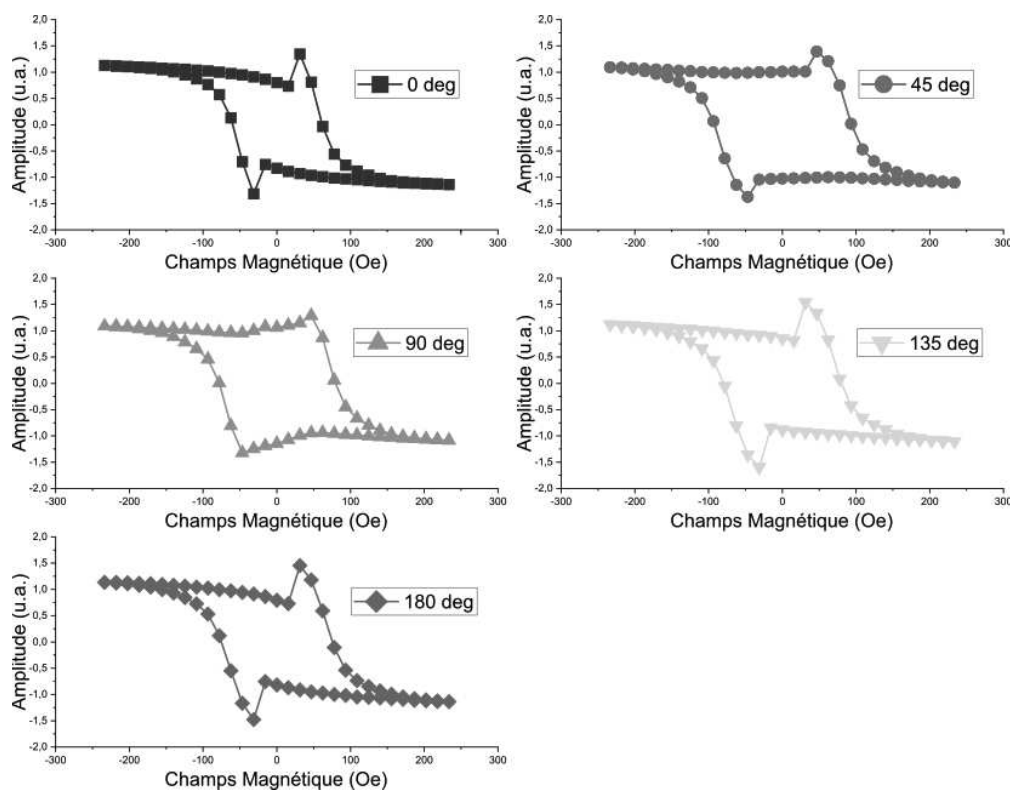


FIGURE IV.4 – Cycle d’hystérèse magnétique de l’échantillon $\text{Co}_{63.8}\text{Gd}_{31.7}(15)/\text{Cu}(4)/\text{Co}_{75}\text{Pt}_{25}(3)$ en fonction de l’angle θ et pour une épaisseur de couche de CoPt de 3 nm.

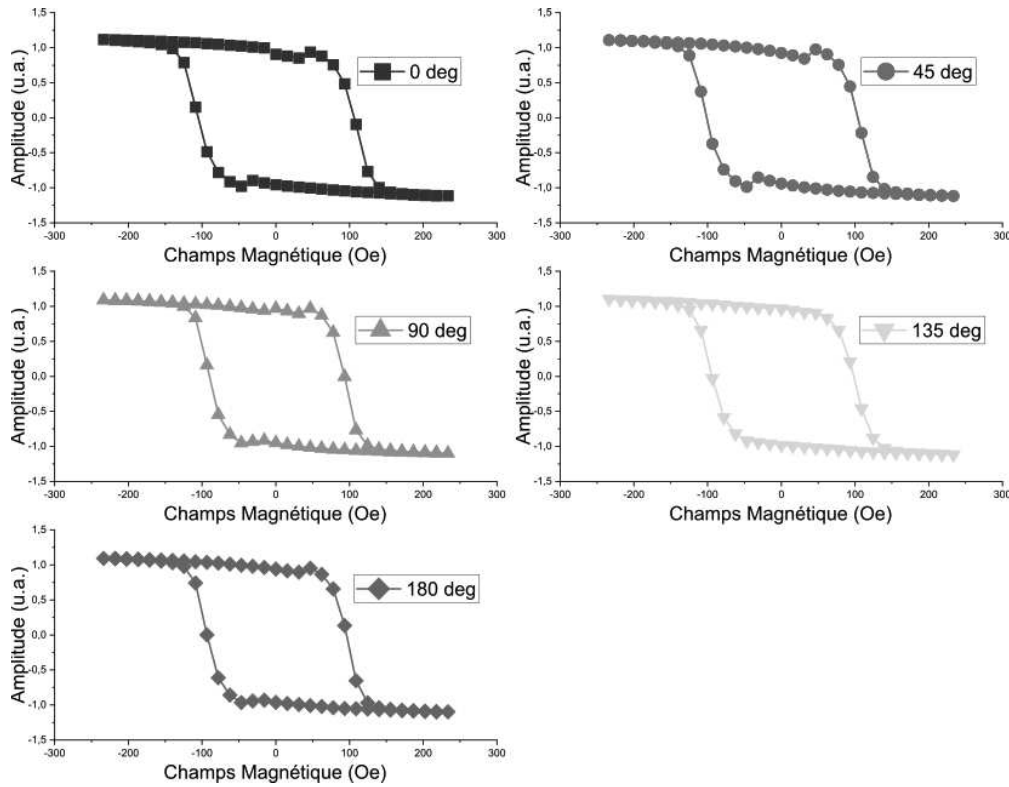


FIGURE IV.5 – Cycle d’hystérèse magnétique de l’échantillon $\text{Co}_{63.8}\text{Gd}_{31.7}(15)/\text{Cu}(4)/\text{Co}_{75}\text{Pt}_{25}(6)$ en fonction de l’angle θ et pour une épaisseur de couche de CoPt de 6 nm.

On a mesuré par Kerr le cycle d’hystérèse des deux couches magnétiques CoPt et CoGd de nos échantillons. Dans ce cas, le CoPt montre une grande valeur de H_c , d’environ 100 Oe. On constate en figure IV.4 que l’aimantation du CoPt reste identique pour tout θ . Ceci est confirmé par la figure IV.5. En effet, ces figures présentent des mesures de l’aimantation des deux couches en fonction de l’angle d’azimut θ et du champ magnétique extérieur, pour deux épaisseurs différentes de CoPt (3 et 6 nm). Cependant, la couche supérieure va écranter la couche inférieure. On peut ainsi obtenir une mesure des deux couches dans le cas où la couche supérieure de CoPt est fine (3nm), comme présenté dans la figure IV.4. Dans ce cas le sursaut des hystérèses correspond au retournement de la couche de CoGd, qui va s’aligner sur le champ extérieur en premier, conduisant le Co des deux couches à être aligné, une mesure Kerr étant essentiellement sensible aux électrons de la couche 3d du Co. Le CoPt va ensuite se retourner avec l’augmentation du champ magnétique extérieur, diminuant ainsi l’aimantation observée au seuil du Co.

En figure IV.5, on constate que le cycle d’hystérèse ne change pas, ou peu, selon l’angle pour une couche de CoPt de 6 nm d’épaisseur et que H_c ($\text{Co}_{75}\text{Pt}_{25}$) a une valeur d’environ 100 Oe, soit 10 mT.

En réduisant l’amplitude du champ extérieur à moins de 100 Oe, de

façon à ne pas causer le retournement magnétique de la couche magnétique dure, on peut observer le cycle d'hystérésis, dit mineur, de la couche de CoGd seule, ainsi que son anisotropie dans le plan en fonction de θ . Ceci est présenté sur la figure IV.6.

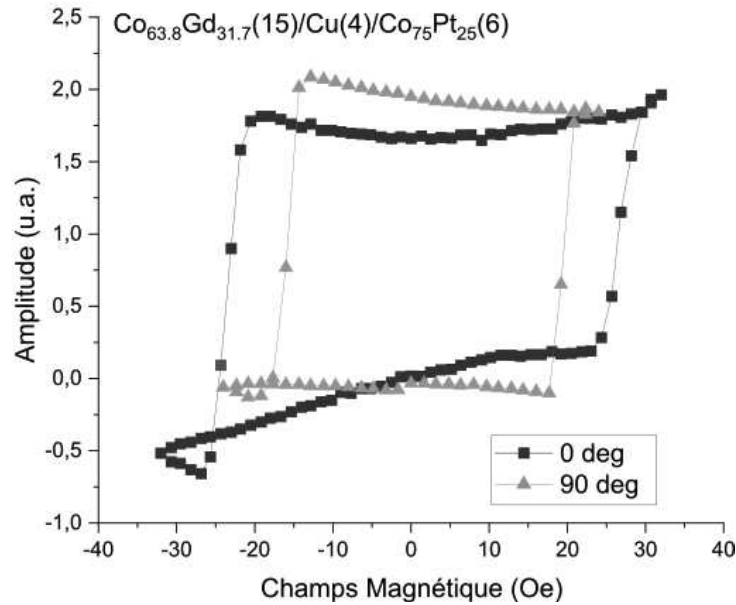


FIGURE IV.6 – Cycle d'hystérésis magnétique mineur de la couche de $\text{Co}_{63.8}\text{Gd}_{31.7}(15)$ pour l'échantillon de $\text{Co}_{63.8}\text{Gd}_{31.7}(15)/\text{Cu}(4)/\text{Co}_{75}\text{Pt}_{25}(1,5)$ en fonction du champ magnétique extérieur. ($20 < H_c < 30$ Oe)

On constate que le champ coercitif varie en fonction de l'angle dans la couche de CoGd, et qu'il existe un axe facile d'aimantation, noté $\theta = 0^\circ$. Le champ coercitif est dans ce cas strictement inférieur à 20 Oe, ce qui est petit par rapport à au champ coercitif de la couche de CoPt, d'environ 100 Oe.

Dans cette partie, nous avons démontré la présence d'un axe magnétique facile pour la couche de CoGd. En effet, le champ coercitif de la couche de CoGd, passe de 30 Oe à moins de 20 Oe pour une direction bien choisie. Celle-ci a dû être relevée pour chaque échantillon testé. Nous avons aussi montré que le champ coercitif des couches de CoPt, polarisant le spin des électrons chauds, d'épaisseurs supérieures à 3 nm ne varie pas, ou peu, en fonction de l'angle et reste aux alentours de 100 Oe. On peut donc observer un retournement de la couche magnétique molle de CoGd, sans perturber la couche magnétique dure de CoPt en appliquant des champs, dont l'amplitude de 50 Oe. Ceci confirme le bon fonctionnement de notre vanne de spin.

On peut alors réaliser des mesures XMCD durant lesquelles l'aimantation est mesurée dans deux configurations magnétiques de la vanne de spin. Dans l'une, l'aimantation des deux couches (CoGd et CoPt) est parallèle, tandis que dans la deuxième, elles sont antiparallèles. Notons que l'aimantation de

la couche CoGd est pilotée par l'orientation des spins du Gd.

IV.2 Résultats par spectroscopie XMCD

Dans cette partie, nous présenterons la caractérisation des deux couches magnétiques de l'échantillon, la couche polarisante de CoPt et la couche d'intérêt de CoGd, en fonction de la température et de l'épaisseur de la couche magnétique dure. La couche de CoPt a une épaisseur comprise entre 0 et 4 nm. Ces mesures statiques de caractérisations magnétiques, permettent de réaliser, par la suite, les mesures de dynamiques ultra-rapides des moments 4 f du Gd induites par des courants d'électrons chauds.

Mesures aux seuils Co $L_{2,3}$

Notons que la méthode d'acquisition des données est chimiquement sélective, mais ne permet de détecter que le signal d'absorption de l'ensemble de l'échantillon. Il est donc nécessaire d'isoler le signal du cobalt issu de la couche magnétique dure de CoPt ainsi que celui provenant de la couche magnétique de CoGd. Pour cela, deux mesures XMCD sont nécessaires, avec deux configurations relatives de l'aimantation entre les deux couches : une parallèle (P) et une antiparallèle(AP), comme présentées sur la figure IV.7

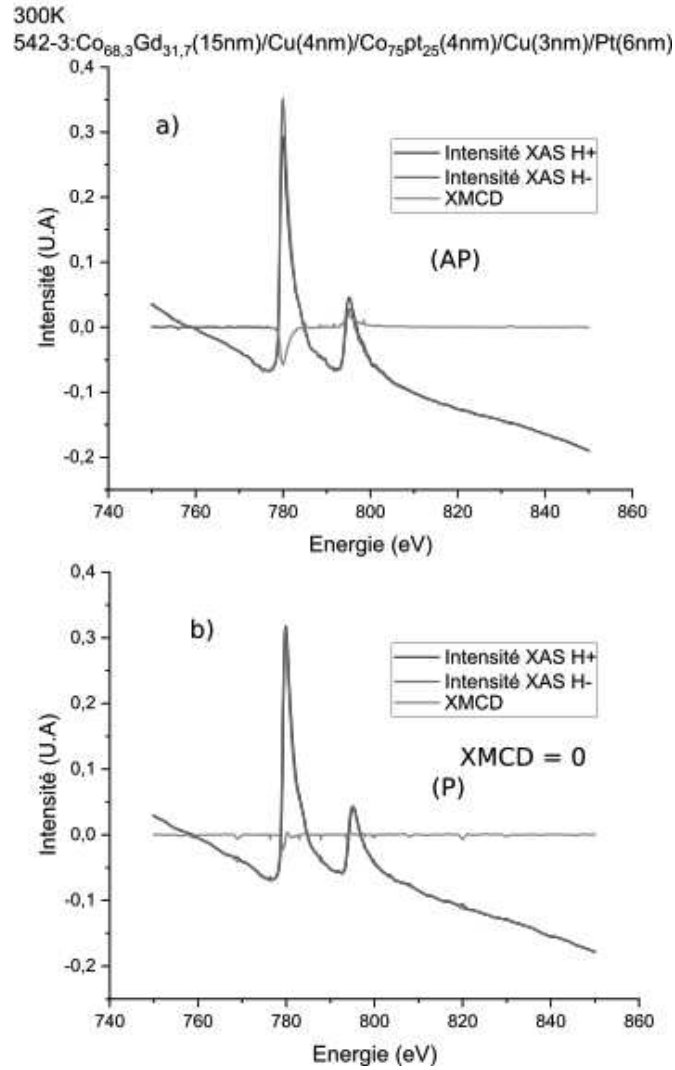


FIGURE IV.8 – Signal XMCD à $T = 300^\circ \text{K}$ aux seuils $\text{Co}L_{2,3}$ dans les configurations de la vanne de spin a) et b) présenté en figure IV.7, mesuré sur PM3 à BESSY II.

Une mesure unique peut être réalisée pour le Gadolinium, seulement présent dans la couche de CoGd aux seuils $\text{Gd}_{M_{4,5}}$. Je présente ici le résultat obtenu pour une température et un alliage dans la figure IV.9.

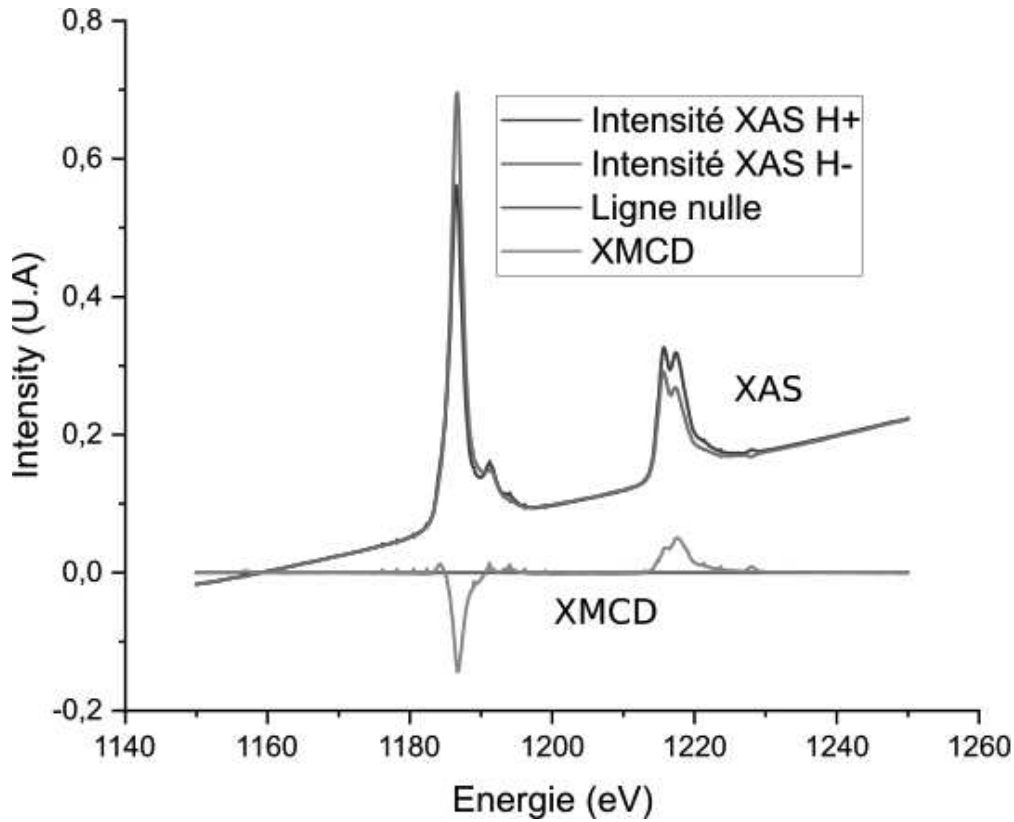


FIGURE IV.9 – Signal XAS et XMCD aux seuils $Gd_{M4,5}$ à $T = 300^\circ K$, pour l'échantillon de $Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(4nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$ réalisé dans la configuration (P) de la figure IV.7 b).

La dérive en amplitude du signal constaté s'explique par les conditions expérimentales. L'une des cause principale de ce phénomène est le déplacement du rayon X en fonction de son énergie lors de son passage à travers le monochromateur de la ligne de lumière. Constatons cependant que ce phénomène n'a aucun effet sur le signal XMCD, la dérive, identique pour les deux signaux, étant supprimée. Cela pose cependant un problème lors du calcul du signal isotrope, et il est donc nécessaire de corriger cette dérive lors du traitement du signal. Le traitement des données est décrit dans l'annexe .2, page 194.

Ces mesures permettent d'obtenir trois intégrales, décrites dans l'annexe .2, qui sont, pour le Co (resp Gd), P, l'intégrale du signal XMCD aux seuils L3 (M5), Q, l'intégrale du signal XMCD aux seuils L3 et L2 (M5 et M4), et R_{iso} , l'intégrale du signal isotrope aux seuils L3 et L2 (M5 et M4). En appliquant les règles de sommes, on peut extraire les valeurs numériques m_s et m_l du Co et du Gd des différentes couches. Je commence par présenter les valeurs des amplitudes XMCD, puis des valeurs P,Q et R_{iso} pour les différents seuils Co et Gd. Notons que pour extraire les moments L et S du cobalt des mesures aux seuils L2,3, il était nécessaire de réaliser deux

mesures XMCD. En effet, la mesure est sensible aux contributions des deux couches CoPt et CoGd. Pour les séparer, nous avons mesuré le signal dans deux configurations différentes. Pour obtenir le cas où les aimantations des échantillons sont parallèles, un champ extérieur de 500 Oe a été appliqué (le CoGd est ferrimagnétique et l'aimantation du Gd domine.). Pour obtenir le cas où les aimantations des deux Co sont parallèles, une impulsion de 500 Oe suivie d'un champ extérieur de -50 Oe a été appliquée. Dans le premier cas (respectivement le deuxième) on obtient la somme des deux moments magnétiques (la différence). Ceci nous permet alors de déterminer, par différence, le signal de chaque couche, comme présenté sur la figure IV.10. Les résultats sont présentés dans les tableaux suivants.

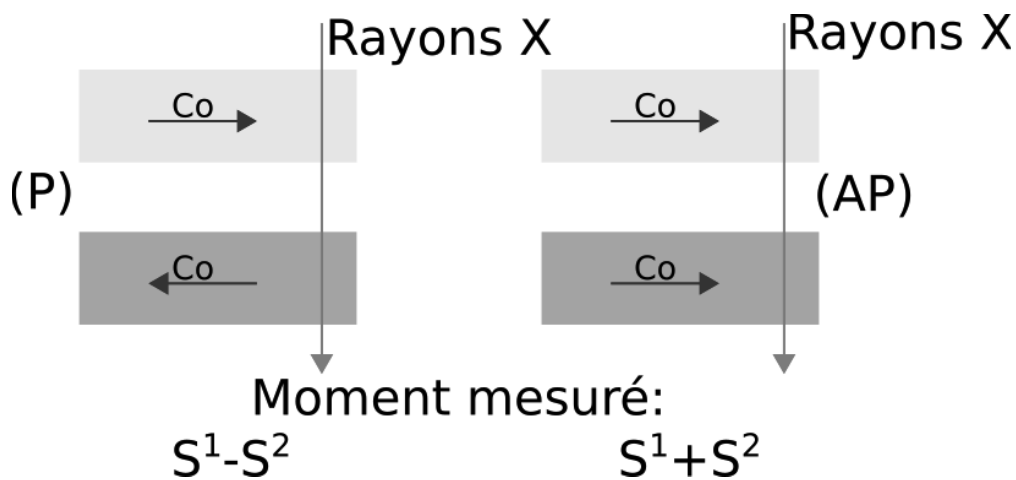


FIGURE IV.10 – Schémas illustrant les directions relatives des aimantations du Co dans les deux configurations (P) et (AP) observées lors des mesures XMCD au seuil du cobalt.

XMCD

Echantillon	Element	T (°)	XMCD (u.a.)
$Co_{61}Gd_{39}(15nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)$	Co	300	0,04
		80	0,05
	Gd	300	0,13
		160	0,20
		80	0,25
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)$	Co	300	0,06
		80	0,07
	Gd	300	0,15
		160	0,17
		80	0,21

TABLE IV.1 – Résultats de la valeur XMCD aux seuils L2,3 du Co et M4,5 du Gd, pour les échantillons ayant une seule couche magnétique sans CoPt. Ces valeurs sont issues de la moyenne de plusieurs valeurs mesurées à la même température.

Echantillon	Element	Sens	T (°)	XMCD (u.a.)
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)$ $/Co_{75}Pt_{25}(4nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	Co	AP	300	0,05
			160	0,06
			80	0,07
		P	300	0,02
			160	0,03
			80	0,03
	Gd		300	0,15
			160	0,19
			80	0,22
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)$ $/Co_{75}Pt_{25}(3nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	Co	AP	300	0,03
			160	0,01
			80	0,06
		P	300	0,03
			80	0,04
	Gd		300	0,14
			160	0,19
			80	0,20
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)$ $/Co_{75}Pt_{25}(2nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	Co	AP	300	0,03
			160	0,04
			80	0,05
		P	300	0,04
			160	0,04
			80	0,04
	Gd		300	0,14
			160	0,20
			80	0,23

TABLE IV.2 – Résultats de la valeur XMCD aux seuils L2,3 du Co et M4,5 du Gd, pour les échantillons ayant deux couches magnétiques CoPt/Cu/-CoGd. Pour les seuils du Co, les couches ont été mesurées dans un cas où les aimantations sont parallèles (P) et antiparallèles (AP).

Je représente dans la suite, l'évolution en fonction de T° des valeurs de M_s et M_l sur des graphiques.

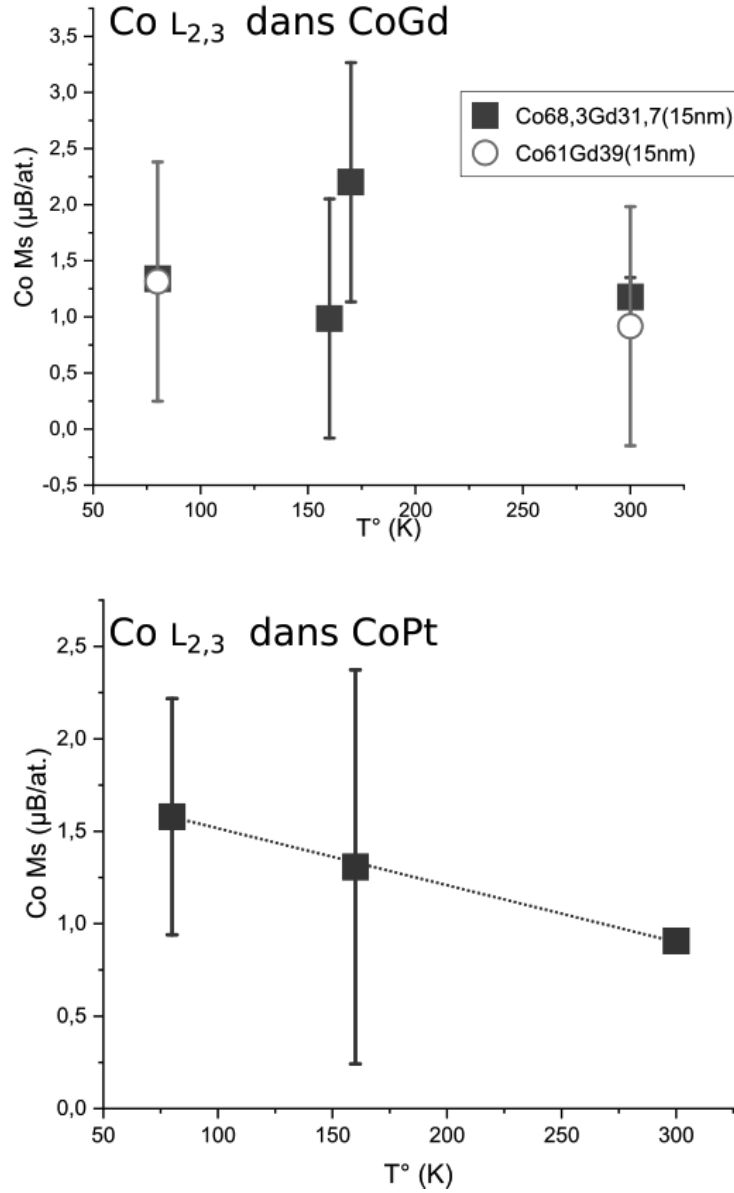


FIGURE IV.11 – Moment magnétique de spin du Co pour chaque couche magnétique étudiée. En haut, $M_{s_{CoGd}}$ et en bas $M_{s_{CoPt}}$ extrait des deux mesures XMCD (AP et P). Les barres d'erreurs sont obtenues en considérant soit la variance des différentes mesures du point, soit la plus grande variance calculée si la valeur n'est pas disponible.

Les barres d'erreurs sont obtenues en considérant la variance des valeurs m_s et m_l obtenues avec une série de mesures XMCD. L'erreur importante est liée à la taille de la membrane et au déplacement du faisceau lors du

scan en énergie, distordant le signal obtenu, et diminuant la qualité de la mesure. Pour certaines configurations, nos valeurs numériques ne sont pas exploitables. Cependant, ce jeu de données nous permet de choisir le meilleur système pour obtenir les résultats pour lesquels une grande valeur XMCD aux seuils Gd M5 est nécessaire.

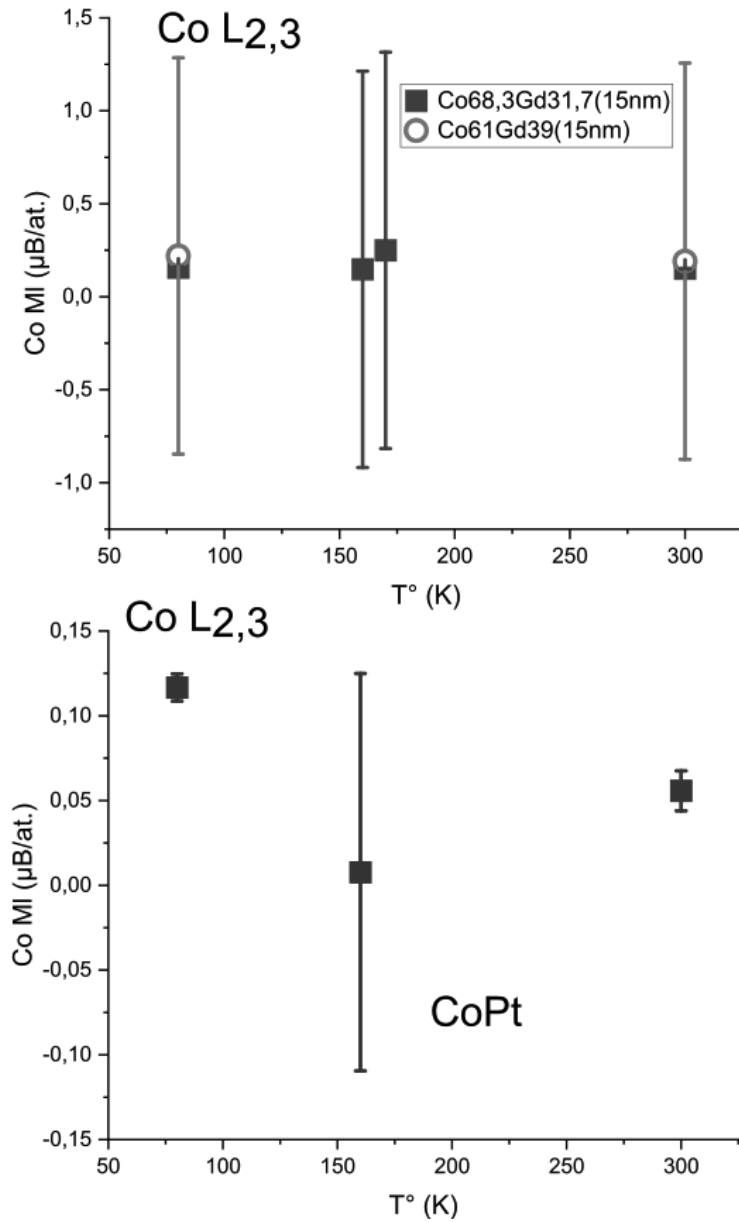


FIGURE IV.12 – Moment magnétique orbital du Co pour chaque couche magnétique étudiée. En haut, MI_{CoGd} , en bas MI_{CoPt} . Les barres d'erreurs sont obtenues en considérant soit la variance des différentes mesures du point, soit la plus grande variance calculée si la valeur n'est pas disponible.

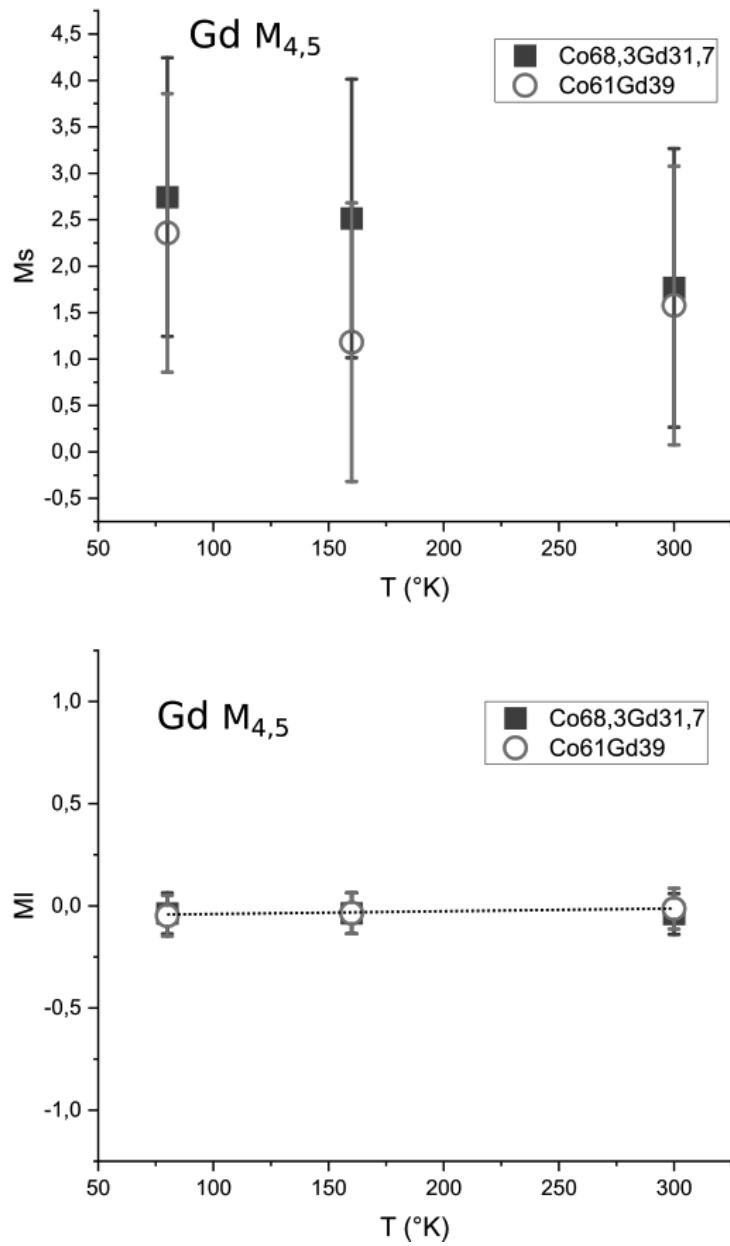


FIGURE IV.13 – Moment magnétique orbital et de spin du Gd pour chaque couche magnétique étudiée. En haut, M_s , en bas M_l

La barre d'erreur est importante et correspond à la plus grande variance constatée dans les traitements. La valeur M_L du Gd est nulle, correspondant à la littérature [24]. Les valeurs $M_5(\text{Gd})$ à $T = 80^\circ \text{K}$ est de $2,5 \pm 1 \mu\text{B/at}$, proche des valeurs de la littérature.[24]

Conclusion

L'objectif de ce travail est de confirmer la dépendance des moments magnétiques de spin et d'orbite en fonction de la température, ainsi que de confirmer leurs valeurs dans nos alliages de CoPt et de CoGd. Nous avons également montré que T_c est supérieur à la température ambiante. Nous avons également défini l'alliage le plus prometteur pour les expériences dynamiques. Notons que les valeurs XMCD obtenues sont des valeurs moyennes. Ainsi, les résultats nous renseignent sur les 15 nm de CoGd, ce qui inclut également les effets de ségrégation du Gd à la surface de la couche.

Ces valeurs XMCD nous ont permis de préparer les expériences résolues en temps et de choisir les paramètres (échantillon, température) optimaux pour un bon rapport signal/bruit.

Ces mesures nous ont permis d'extraire les moments magnétiques de spin et d'orbite par atomes pour le Co et le Gd pour chaque couche magnétique et pour trois températures : 80, 160 et 300 K. Les résultats obtenus pour le Cobalt sont présentés dans les figures IV.11 et IV.12, présentant le moment magnétique de spin et d'orbite respectivement. Les résultats obtenus pour le Gd en fonction de la température sont présentés dans la figure IV.13, et présentent le moment magnétique de spin (en haut) et orbital (en bas).

M_{Gd} est pratiquement nul et correspond à ce que la littérature prévoit pour du Gd massif. Cependant M_{Co} est beaucoup plus faible (1 à 2 μ_B/at) que la valeur attendue (3,5 μ_B/at) [24]. De la même façon, M_{Co} constaté ici, est plus petit que pour le cas du Co massif, tant pour les alliages de CoGd que pour l'alliage de CoPt. Par contre, M_{Co} est plus important que dans le cas du CoGd (0,15 à 0,24) et correspond à la valeur de bulk, 0,069 dans l'alliage de CoPt (0,05 à 0,11). [124, 13]

Il est également intéressant de constater que les moments M_s et M_l diminuent avec l'augmentation de la température, ce qui est attendu, car l'agitation thermique diminue l'aimantation macroscopique. Notons que $T_c \approx 500$ et 900 K pour ces alliages comme présenté dans le tableau IV.3.

Espèce chimique	T_C
$Co_{70}Gd_{30}$	550 K
$Co_{81}Gd_{19}$	900 K

TABLE IV.3 – Température de Curie T_c pour deux alliages de CoGd de concentration $Co_{70}Gd_{30}$ et $Co_{81}Gd_{19}$. [32, 47, 115]

Notons que la caractérisation statique a pour objectif de préparer l'expérience dynamique. En effet, l'objectif est de connaître l'impact de la température sur l'aimantation mesurée. Les expériences préparatoires ont montré qu'une température plus basse permettait une aimantation plus importante, ceci permet donc d'observer un signal plus important lors des expériences de désaimantations ultrarapides.

IV.3 Structure des couches supérieures : Pt(5)/Cu(60)

Il est nécessaire de justifier l'emploi du platine pour la première couche et du cuivre composant les couches 2 et 4.

Protection de l'excitation optique de la pompe

L'objectif de l'expérience est d'observer l'impact du spin sur la désaimantation d'un alliage MT-TR. Pour cela, et étant donné que le contrôle est optique, il est nécessaire de bloquer la pompe IR. Un capping de cuivre de 60 nm a été utilisé à cette fin. Ce matériau a été choisi d'un point de vue optique pour deux raisons. La première est sa capacité à absorber les rayons IR. En effet, le libre parcours moyen d'un photon IR dans le cuivre est 10 nm.[75] Il est ainsi possible de bloquer l'IR avant la couche de CoGd avec une couche de 60 nm de Cu. La couche de Cu(60) va cependant limiter la transmission des rayons X aux énergies relatives aux seuils L_3 du Co et M_3 du Gd. La transmission est ainsi supérieure à 80% et 60% pour les gammes d'énergies relatives au Co et au Gd respectivement. [82] Le cuivre est donc un excellent matériau pour limiter la transmission des rayons IR tout en permettant la propagation des rayons X.

Une modélisation de la transmission des rayons IR permet de vérifier la faible transmission des rayons infrarouges dans les multiples couches du matériau et de s'assurer de l'efficacité du capping vis-à-vis de la pompe IR. Ce modèle utilise des valeurs de libres parcours moyens présentés dans le tableau IV.4 suivant. La couche de CoGd n'est pas entièrement représentée, et l'absorption n'est pas calculée dans celle-ci. En effet, l'intérêt de ce modèle est de connaître la quantité de photons IR parvenant jusqu'à la couche CoGd. Les libres parcours moyens des photons utilisés pour la modélisation sont donnés dans le tableau suivant.

Espèce chimique	Pt	Cu	Co
λ (nm)	7.9 [94]	10.3[75]	8.4[94]

TABLE IV.4 – Profondeur de pénétration des photons IR (800 nm) dans les différents matériaux composant l'échantillon.[75, 94]

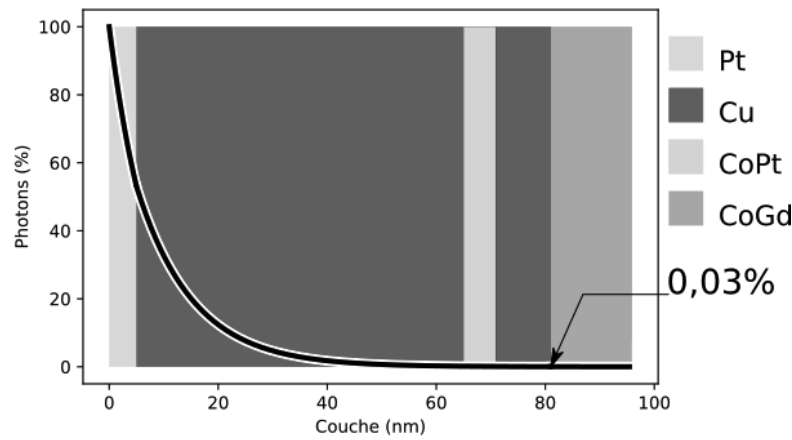


FIGURE IV.14 – Transmission IR calculée en fonction de l'épaisseur et de la nature des différentes couches de notre échantillon. [75, 94]

Notons que le modèle ne prend pas en compte les réflexions des photons aux interfaces. Nous pouvons donc affirmer que l'excitation optique de la couche de CoGd est négligeable.

Génération et conduction des électrons chauds

L'échantillon possède une couche de Pt comme couche supérieure. Lorsque celle-ci absorbe les photons IR, des électrons vont être excités. Le modèle de Fermi-Dirac n'est pas utilisable pour décrire la distribution des électrons juste après l'excitation. La densité d'état est présentée en figure IV.15 : les électrons sont désignés comme athermaux, car on ne peut pas leur attribuer de température. Ceux-ci vont se propager dans le matériau de façon balistique tout d'abord, puis, au fur et à mesure de leur thermalisation, terme décrivant l'interaction des électrons avec le matériau, le transport électronique va devenir diffusif.[51]

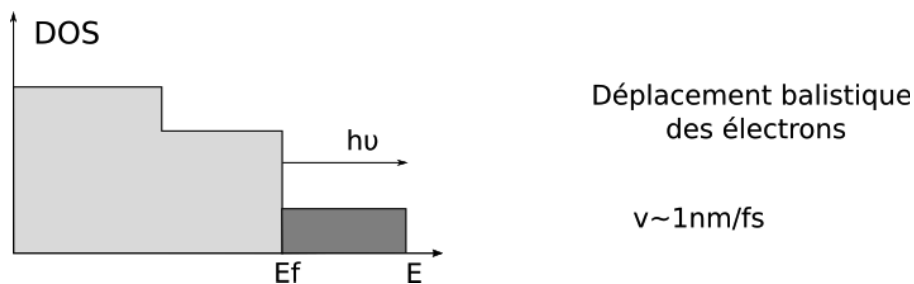


FIGURE IV.15 – Schéma de la densité d'état électronique en fonction de l'énergie, juste après l'excitation de la pompe. Distribution des électrons hors équilibre qualifiée d'athermale. [50]

En mode balistique, les électrons se déplacent à une vitesse d'environ 1 nm/fs. Ainsi, la vitesse de Fermi des électrons dans le platine est d'environ 0,359 nm/fs selon [1]. À noter que le libre parcours moyen des électrons dans

le platine est d'environ 8 nm [33] (tableau IV.4), ce qui explique l'épaisseur faible de la couche supérieure de Pt. Grâce à la modélisation précédente, on sait que l'épaisseur n'est pas uniformément excitée en fonction de la profondeur. On en déduit donc que la couche de platine n'émet pas la même quantité d'électrons athermaux sur la profondeur de la couche. On s'intéressera néanmoins à la quantité d'électrons quittant cette couche même si cette quantité ne peut être mesurée expérimentalement.

L'objectif de mon travail est de mesurer l'effet de la polarisation en spin de la population électronique sur l'aimantation du Gd. Il est donc nécessaire de polariser le courant électronique, afin de créer un courant de spin. Or, la polarisation en spin est ici le résultat de l'interaction des électrons athermaux avec le nuage électronique du CoPt, transformant les électrons chauds en électrons diffusifs après la thermalisation. Notons que la vitesse des électrons est beaucoup plus lente dans le mode de transport diffusif après thermalisation (figure IV.16). En effet, la vitesse des électrons dans le Cu est 0.1nm/fs et d'environ 0,01 nm/fs dans le cobalt platine. [51] La différence de vitesse de propagation diffusive des électrons dans les deux matériaux s'explique par la différence de masse effective des électrons. En effet, la masse effective dans le Co [122] est 7,5 contre 1 dans le Cu [57]. À ce stade, la température des électrons (T_e) est supérieure à celle de la maille (T_{ph}).

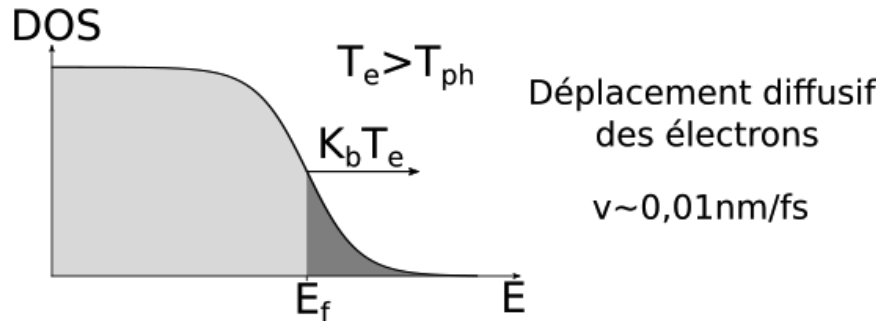


FIGURE IV.16 – Distribution électronique après la thermalisation des électrons. [50]

Il est cependant nécessaire de s'assurer que les électrons sont bien thermalisés en arrivant à la couche magnétique de CoGd. Pour cela, un modèle similaire à celui présenté lors de la partie traitant de l'absorption électronique est proposé ici. Dans celui-ci, les libres parcours moyens des électrons balistiques sont introduits. Ces libres parcours moyens sont reportés dans le tableau IV.5.

Espèce chimique	Pt	Cu	Co
$\lambda(\text{nm})$	5 [94]	150[75]	4[94]

TABLE IV.5 – Valeurs des libres parcours moyens des électrons balistiques dans les différents matériaux composant l'échantillon. [75, 94]

Remarquons qu'ici aussi la réflexion des électrons aux interfaces n'est pas prise en compte. Cependant, ce mécanisme diminue à priori le nombre final d'électrons arrivant dans la couche de CoGd. On peut donc supposer que le nombre final d'électrons balistiques proposé est une surestimation.

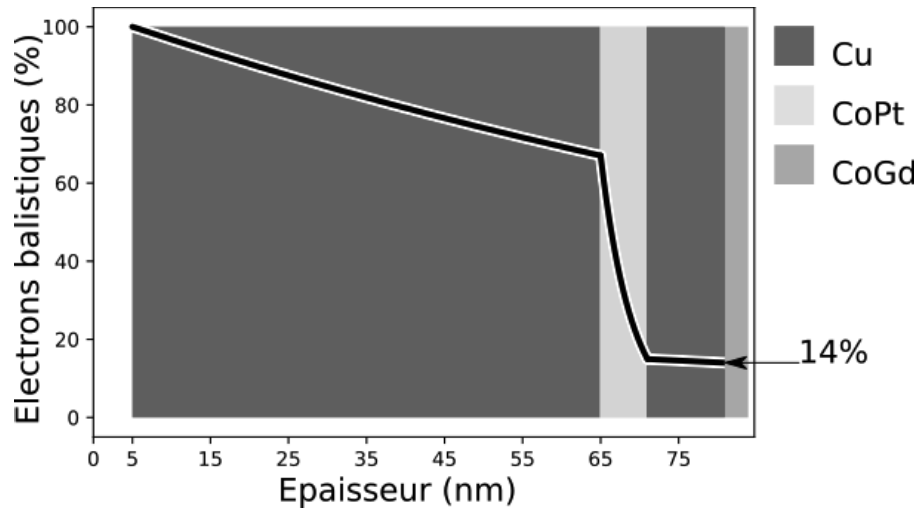


FIGURE IV.17 – Atténuation calculée du nombre d'électrons balistiques en fonction de l'épaisseur.[75, 94]

Le modèle propose que 70% des électrons chauds arrivent dans le CoPt, ceux-ci sont ensuite fortement absorbés dans cette couche, ce qui explique que 14 % d'électrons athermaux parviennent à la couche de CoGd. Ainsi, une majorité importante d'électrons arrivent thermalisés. Rappelons également que la couche de CoPt, thermalisant les électrons, polarise aussi le courant d'électrons, afin d'obtenir un courant de spin.

Chapitre V

Désaimantation ultrarapide induite par des électrons chauds polarisés en spin dans un alliage de $\text{Co}_{61}\text{Gd}_{39}$

Dans cette partie, nous allons présenter les résultats obtenus lors de la campagne de slicing réalisée à Bessy II. Dans cette expérience, nous avons tenté de mesurer l'impact du spin des électrons sur la désaimantation d'une couche magnétique de $\text{Co}_{61}\text{Gd}_{39}$.

V.1 Echantillon

Deux échantillons ont été mesurés. La structure globale est identique. Cependant, ceux-ci ont deux compositions différentes : $\text{Co}_{69}\text{Gd}_{31}$ et $\text{Co}_{61}\text{Gd}_{39}$. La température de Curie (T_c) est plus basse pour l'échantillon riche en Gd, favorisant une dynamique rapide au Gd M5. La désaimantation est ainsi grandement facilitée dans le cas du $\text{Co}_{61}\text{Gd}_{39}$.

D'autre part, la valeur XMCD mesurée sur PM3, au seuil M5 du Gd est supérieure (0,25) pour l'échantillon de $\text{Co}_{61}\text{Gd}_{39}$, par rapport à celle mesurée dans les mêmes conditions pour le $\text{Co}_{69}\text{Gd}_{31}$ pour une température égale à 80K.

Nous avons donc choisi l'alliage de $\text{Co}_{61}\text{Gd}_{39}$ pour réaliser les expériences pompes-sonde au seuil Gd M5 sur la ligne de slicing.

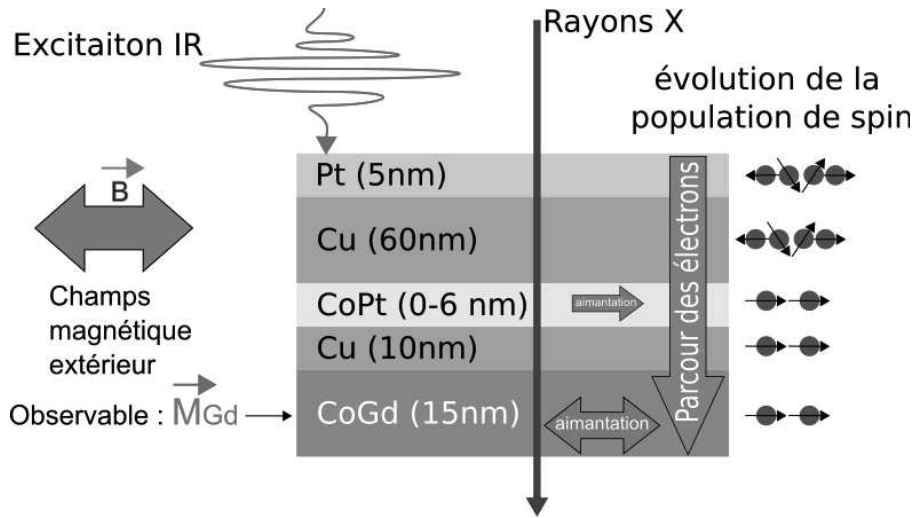


FIGURE V.1 – Composition de l'échantillon et évolution de la population de spin d'électrons qui vont désaimanter la couche Co₆₁Gd₃₉

V.2 Dépendance de la désaimantation en fonction de la fluence IR

L'objectif est d'optimiser la fluence IR pour obtenir une désaimantation au Gd M_5 raisonnable lors des expériences pompes sondes. Nous avons trouvé une désaimantation d'environ 50 % pour une fluence IR de 60 mJ/cm²

Nous avons noté qu'au-delà de 60 mJ/cm² la durée de vie de nos échantillons est écourtée, ne permettant pas des acquisitions dont les durées sont de l'ordre de 12h.

V.3 Résultats pompe-sonde au Gd M_5

L'aimantation du Gd M_5 est mesurée dans deux configurations magnétiques différentes. Dans le premier, son vecteur d'aimantation sera parallèle (P) à celui de la couche de CoPt, dans le deuxième, antiparallèle (AP). L'objectif est de mesurer la différence de désaimantation entre les cas et ainsi mesurer l'impact du spin des électrons chauds sur la dynamique de désaimantation au Gd M_5 .

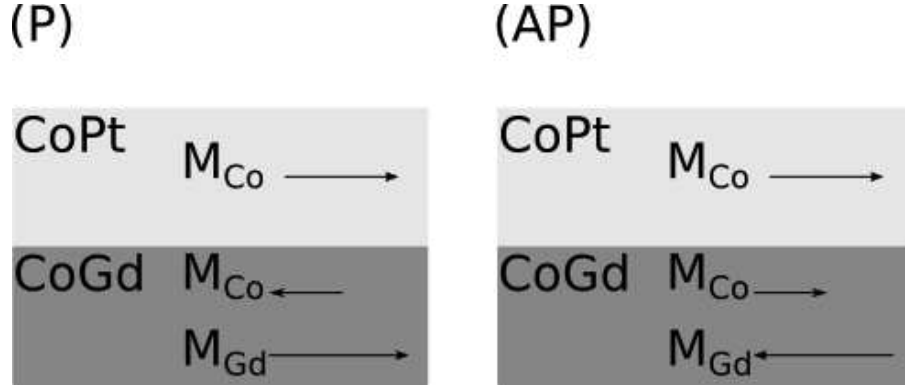


FIGURE V.2 – Les deux configurations de mesures (P et AP) telles qu’appliquées entre chaque point de mesure. Pour (P) on applique un champ extérieur de 500 Oe, tandis que pour (AP) on applique un champ de 500 Oe, puis un champ extérieur de -50 Oe.

V.3.1 Dynamique ultrarapide aux temps longs (0-200 ps) par femtoslicing.

En comparant les résultats obtenus pour (P) et (AP), la différence de dynamique ultrarapide n’est pas évidente (figure V.3). Cependant, on note que la dynamique de désaimantation est très lente, soit environ 20 ps pour la désaimantation au Gd M_5 . Nous allons donc présenter les temps courts dans le paragraphe suivant.

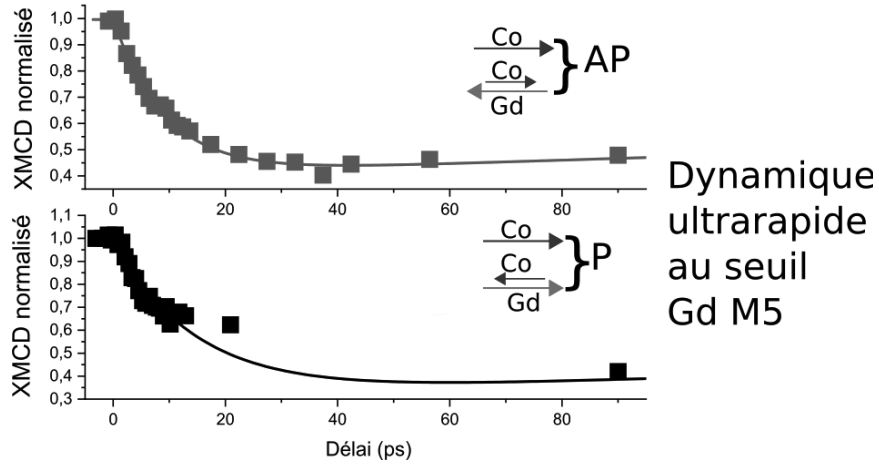


FIGURE V.3 – Dynamique ultrarapide mesurée au Gd M_5 en femtoslicing pour un échantillon de CoPt/Cu/Co₆₁Gd₃₉ et pour une fluence de 60mJ/cm², à une température de 80 °K aux temps longs. Les traits pleins sont les modélisations avec un temps de désaimantation, ajustées pour un modèle à 3 températures. L’ajustement considère une exponentielle décroissante et un temps de retour à l’équilibre.

V.3.2 Dynamique ultrarapide aux temps courts (0-20 ps) par femtoslicing.

Dans le cas de l'échantillon $\text{Co}_{61}\text{Gd}_{39}$, nous avons observé que la désaimantation du réseau de Gd4f est plus rapide pour un alignement AP des spins Co-Gd, que dans le cas d'un alignement (P). Les résultats sont présentés sur la figure V.4.

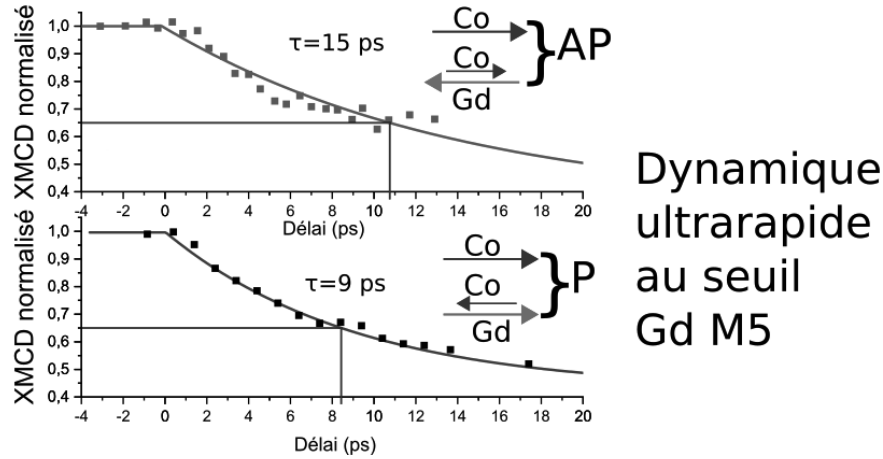


FIGURE V.4 – Dynamique ultrarapide mesurée au Gd_{M5} pour un échantillon de $\text{CoPt/Cu/Co}_{61}\text{Gd}_{39}$ et pour une fluence de 60mJ/cm^2 , à une température de 80°K . Les traits pleins sont les fits utilisant une seule décroissance exponentielle, non convoluée avec la gaussienne. Les traits bleus indiquent le temps nécessaire pour une désaimantation à 65 % dans les deux configurations.

La configuration P -figure V.4-, révèle que la dynamique est plus rapide que dans le cas de la configuration AP -figure V.4. En effet, une décroissance de 65 % de l'aimantation est observée plus tôt pour la configuration P (à 8 ps) que pour la configuration AP (à 11 ps). Au vu des barres d'erreur et de la statistique des deux dynamiques, il paraît difficile de proposer une conclusion définitive.

Les données ont été fittées avec une exponentielle décroissante et un temps de retour à l'équilibre dans la figure V.3. Ceci s'explique par le bruit important des mesures, rendant discutable un fit avec deux temps de décroissance. Les valeurs suivantes sont obtenues dans le tableau V.1. Nous pouvons néanmoins affirmer que la désaimantation mesurée au seuil M_5 du Gd est plus rapide dans le cas où le spin du Co des deux couches est antiparallèle, ce qui correspond à la configuration (P).

Configurations	désaimantation τ
P	9 ± 1 ps
AP	15 ± 2 ps

TABLE V.1 – Temps caractéristiques en picosecondes de la désaimantation induite par électrons chauds polarisés en spin aux seuils Gd_{M_5} dans la configuration (P) et (AP).

V.4 Conclusion

Nous avons présenté les premiers résultats de l'étude de la désaimantation ultrarapide au seuil $\text{Gd } M_5$ de la couche dans un alliage de CoGd excité par un courant d'électrons chauds polarisés en spin.

Lors des mesures par femtoslicing au seuil $\text{Gd } M_5$, la dynamique d'aimantation d'un échantillon, présentant la structure $\text{CoPt/Cu/Co}_{61}\text{Gd}_{39}$ a été mesurée. Une désaimantation globale de 60 % est observée sur la figure V.4, qui est obtenue grâce aux impulsions d'électrons chauds. Pour mettre en évidence l'influence de la polarisation en spin, nous avons comparé deux configurations magnétiques différentes (P) et (AP). Dans la configuration (P) (respectivement (AP)), l'aimantation de la couche (et donc le Gd) était parallèle (respectivement antiparallèles) à celui de la couche de CoPt .

Le fit de la configuration P révèle un τ de $9,4 \pm 0,5$ ps tandis que le fit de la configuration AP révèle un τ de 15 ± 2 ps.

On peut cependant proposer que la dynamique plus rapide (configuration P) s'explique par les orientations anti-parallèles de l'aimantation des deux sous-réseaux de cobalt, favorisant la désaimantation des 3d Co et par couplage celle du $\text{Gd } 4f$. Pour expliquer la dynamique lente de la désaimantation au Gd pour l'ensemble des deux configurations, nous pouvons envisager une première explication liée au profil de concentration des espèces chimiques sur l'épaisseur de l'alliage et à la faible profondeur de pénétration des électrons chauds qui excitent uniquement la partie supérieure de la couche de 15 nm de CoGd . Résoudre un éventuel profil de concentration dans notre couche CoGd a été une des motivations de l'étude par photoémission du chapitre suivant.

Par ailleurs, on sait que les alliages de CoGd présentent des dynamiques magnétiques lentes au $\text{Gd } M_5$ [11, 119]. Nos résultats n'ont donc rien de surprenants si on admet que la dynamique est gouvernée principalement par le couplage d'échange 3d-5d et 5d-4f. L'explication de la faible différence des dynamiques au $\text{Gd } M_5$ entre (P) et (AP) relève certainement du faible libre parcours moyen de la polarisation en spin des électrons dans ces alliages, comparé à l'épaisseur de la couche, de 15 nm.

Chapitre VI

Résultats par spectroscopie de photoémission des niveaux de cœur.

Afin de pouvoir comprendre nos dynamiques d'aimantation, il est indispensable de pouvoir décrire la structure de l'alliage CoGd, en violet dans la figure VI.1 et éventuellement proposer un profil en concentration des premières couches d'alliage. Ceci est nécessaire au vu des faibles libres parcours moyens des électrons chauds utilisés dans nos expériences pompe-sonde, comme décrit dans le chapitre précédent. Pour cela, la technique de choix est la photoémission résolue en angle et en énergie.

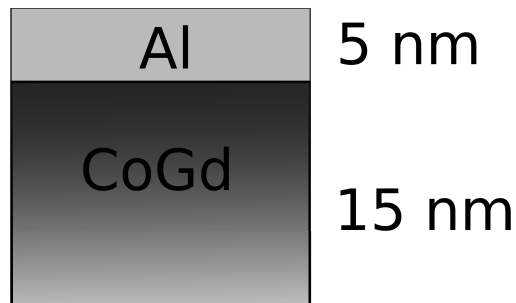


FIGURE VI.1 – Structure de l'échantillon composé d'une couche d'aluminium de 5 nm afin d'empêcher l'oxydation de la couche de CoGd de 15 nm dont on souhaite étudier la concentration de Gd en fonction de la profondeur.

VI.1 Composition de la couche magnétique molle et résultats de spectroscopie de photoémission des niveaux de cœurs $Gd_{3d,4f}$ et Co_{3p}

VI.1.1 Introduction

Ce travail fait aussi suite à l'étude de T.Ferté [39] concernant la dynamique de désaimantation induite par une pompe IR et utilise la photoémission résonante au seuil Gd_{M5} . Les dynamiques de deux échantillons de compositions respectives $Co_{70}Gd_{30}$ et $Co_{81}Gd_{19}$ ont été étudiées par photoémission résolue en temps (tr-MCDAD), et révèlent des temps caractéristiques très différents (12 ps et 37 ps). Dans les expériences de T. Ferté, la composition de surface est, elle aussi, un possible facteur de différence. En effet, la profondeur d'échappement des photo-électrons est d'environ 2 nm alors que l'épaisseur totale de la couche de CoGd est de 15 nm. La figure VI.2, issue de la thèse de Tom Ferté [39] montre la différence entre les deux dynamiques.

Afin de définir la stoechiométrie en surface de l'alliage de CoGd, une étude par photoémission a été réalisée au synchrotron de SOLEIL. Cette méthode est sensible à la concentration relative des espèces chimiques dans les couches à la surface de l'échantillon, le libre parcours moyen des photo-électrons étant compris entre 0,7 et 1,4 nm suivant l'énergie cinétique des photo-électrons. Les deux échantillons étudiés ont des compositions respectives de $Co_{65}Gd_{35}$ et $Co_{80}Gd_{20}$.

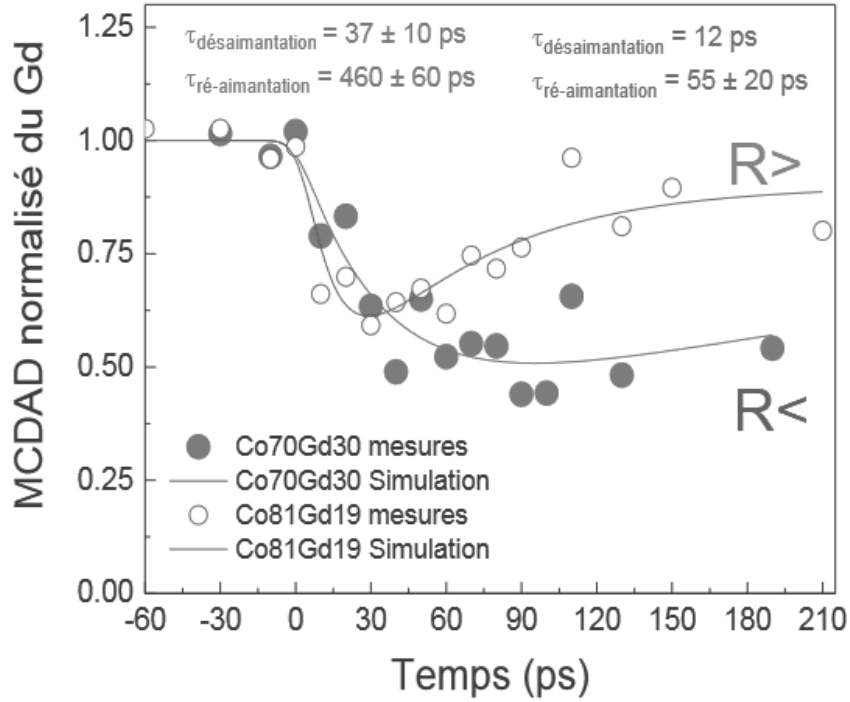


FIGURE VI.2 – Tr-MCDAD normalisé des électrons 4f du Gd en fonction du délai temporel entre la pompe et la sonde pour les échantillons $Co_{70}Gd_{30}$ en rouge et $Co_{81}Gd_{19}$ en vert. Les lignes pleines sont leur ajustement respectif avec deux fonctions exponentielles pour chaque courbe. Figure et mesures réalisées par Tom Ferté.[39]

Une première hypothèse, formulée par T.Ferté, pour expliquer les résultats obtenus, utilisait le modèle microscopique M3TM de Koopmans et al. [2].

Il est alors nécessaire de s'assurer de la composition de nos échantillons de $Co_{65}Gd_{35}$ et $Co_{80}Gd_{20}$.

VI.1.2 Description et présentation des résultats expérimentaux

Dans cette partie, je vais décrire l'étude ayant permis de réaliser un profil de la concentration de gadolinium dans la couche magnétique des échantillons de $Co_{1-x}Gd_x$. Pour ce faire, différents niveaux de cœur ont été étudiés en fonction de trois énergies de photons : 400, 700 et 1000 eV. En partant de la géométrie présentée dans la figure II.3 un scan du nombre d'électrons détectés en fonction de l'énergie cinétique, est réalisé. Un intervalle large compris entre l'énergie des photons et une centaine d'électron-volts permet de connaître l'allure générale du signal et de réaliser d'éventuelles normalisations au besoin. La figure VI.3 présente un spectre brut pour une énergie de photons de 700 eV. Sur cette figure, sont présentées les 5 intensités cor-

respondant aux différentes espèces chimiques présentes dans l'alliage de la couche d'intérêt. Un signal relatif à l'aluminium est aussi présent. En effet, cette intensité correspond à la couche de protection, et son amplitude permet de connaître l'épaisseur en fonction des durées de bombardement ionique (BI).

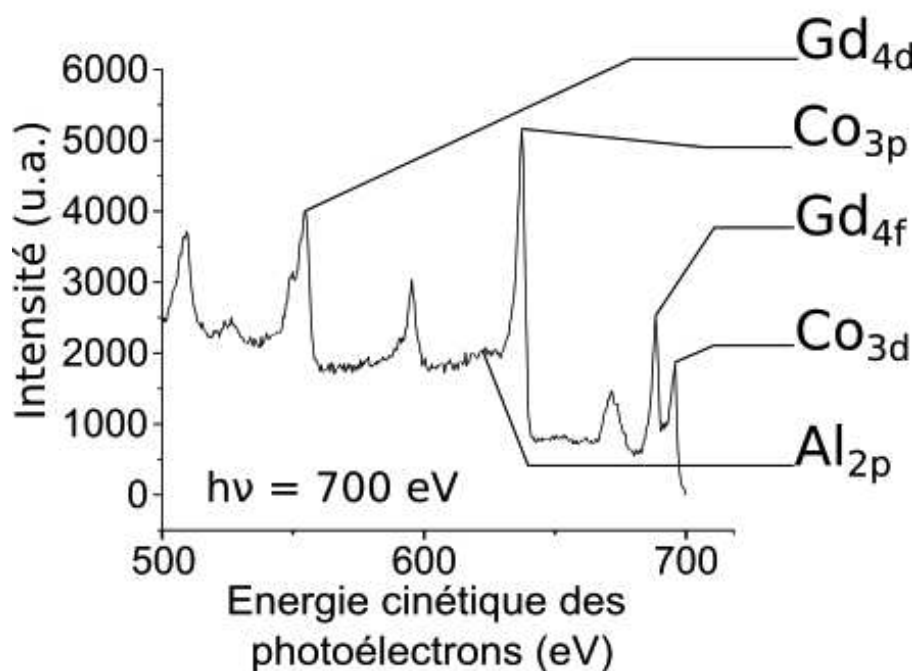


FIGURE VI.3 – Intensités des signaux de photoémission pour une énergie de photons incidents de 700 eV.

Plusieurs BI ont été réalisées afin de diminuer l'épaisseur du capping. La figure VI.4 présente l'évolution des intensités pour deux courbes normalisées. Les intensités d'électrons relatifs à l'aluminium ont fortement diminué en amplitude et en aire, contrairement aux intensités relatives aux autres espèces chimiques.

Cette évolution en fonction du temps de BI est présentée dans la figure VI.5. L'intérêt de la couche d'aluminium est de protéger de l'oxydation la couche magnétique. Cependant, elle empêche aussi de pouvoir sonder une profondeur importante de l'échantillon. Retirer la couche petit à petit sans sortir de l'enceinte, permet de réaliser une mesure de plus en plus sensible à la couche d'intérêt sans l'exposer à la possible oxydation accompagnant son exposition à l'atmosphère. Pour calculer l'épaisseur de la couche d'Al on compare le signal initial de l'espèce chimique, correspondant à 5 nm, avec le signal après le temps de bombardement ionique total. Pour une épaisseur d'environ 1 Å, on a considéré l'épaisseur d'aluminium comme négligeable.

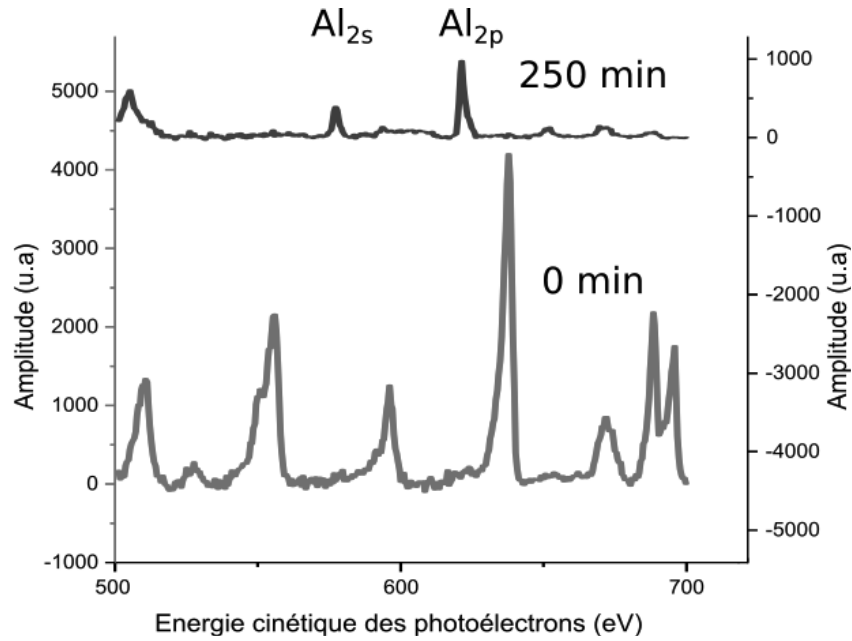


FIGURE VI.4 – Evolution du spectre complet en fonction du temps de bombardement ionique. En rouge, l'échantillon dans son état initial, en noir, après un bombardement ionique de 250 minutes. On note une forte évolution de l'intensité du signal relatif à l'aluminium.

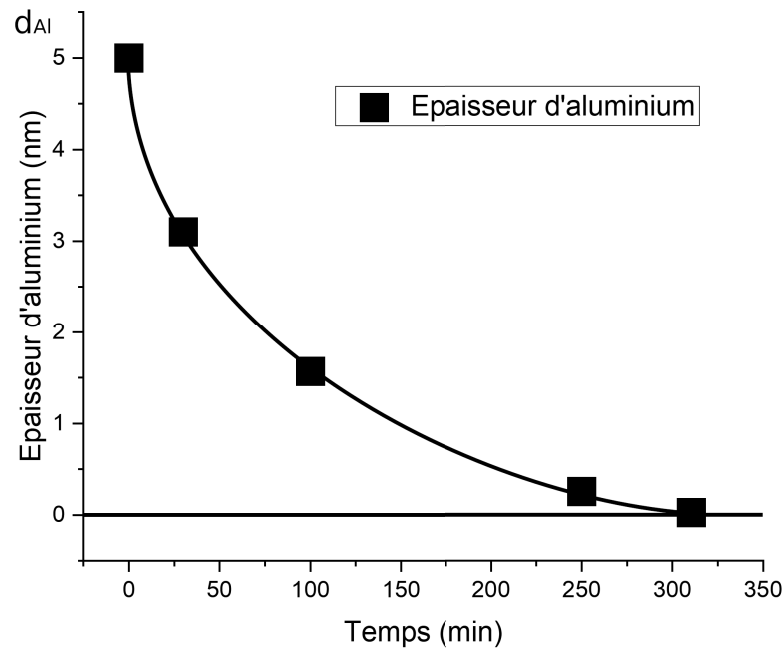


FIGURE VI.5 – Évolution de l'épaisseur du capping en aluminium en fonction du temps du BI. La ligne pleine est obtenue grâce à un ajustement sur les points expérimentaux. Les erreurs sont de la taille des symboles.

Les autres acquisitions sont réalisées sur des intervalles plus petits, concentrés autour des intensités présentées sur la figure VI.3. Ceci est réalisé afin d'avoir un temps d'acquisition plus court et permet la réalisation d'un plus grand nombre d'acquisitions, améliorant le rapport signal sur bruit. L'amplitude et l'aire de ces intensités évoluent au cours du temps de BI. En effet, si les intensités relatives à l'aluminium diminuent, les intensités relatives au cobalt et au gadolinium vont augmenter, le nombre d'électrons absorbés par les couches supérieures diminuant.

Un spectre type est présenté sur la figure VI.6 On retire ensuite le fond à ce signal, avant de réaliser l'intégrale de la courbe (l'aire). Ceci permet d'obtenir l'aire de la courbe, ce qui correspond au nombre total d'électrons mesurés avec cette énergie cinétique.

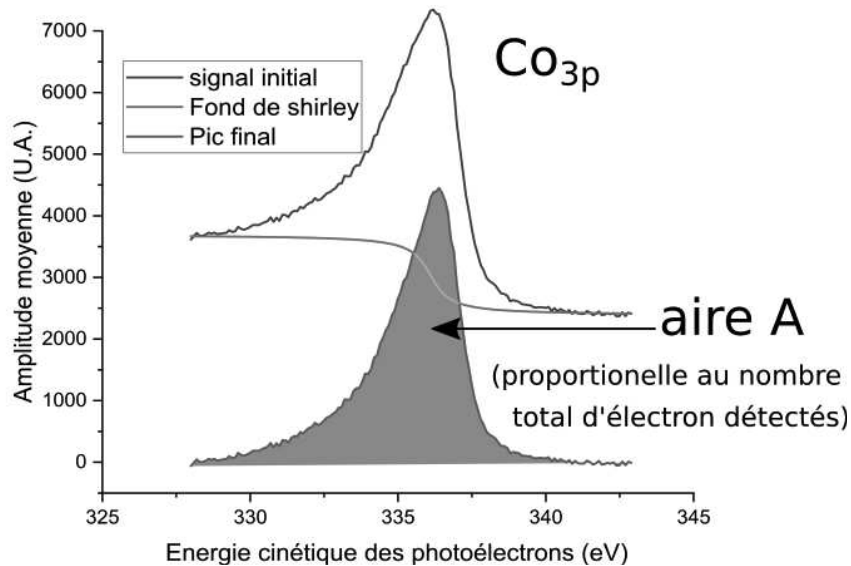


FIGURE VI.6 – Spectre brut et spectre après soustraction du fond pour des photo-électrons issus de l'orbitale Co_{3p}

La valeur obtenue est ensuite divisée par la section efficace σ , qui est la probabilité qu'une orbitale électronique émette un photo-électron suite à l'absorption d'un photon. En effet, celle-ci est différente en fonction de l'espèce chimique, de l'orbitale atomique concernée et de l'énergie du photon $h \times \nu$ [130]. On obtient ainsi une valeur, β , qui est proportionnelle au nombre d'atomes détectés, comme présenté dans l'équation VI.1

$$\beta \propto \frac{A}{\sigma} \quad (\text{VI.1})$$

Les valeurs des différentes sections efficaces sont présentées dans le tableau VI.1.

Section efficace (u.a.) énergie des photons (eV)	Co _{3p}	Co _{3d}	Gd _{4d}	Gd _{4f}
400	0,41	0,28	0,47	1,06
700	0,18	0,05	0,56	0,24
1000	0,07	0,02	0,32	0,08

TABLE VI.1 – Section efficace des différents niveaux de cœur pour les trois énergies de photons utilisées, issue de J.J. Yeh et al [130].

Dans mes exploitations, j'utilise λ , les libres parcours moyens des photo-électrons dans les alliages, pour les différentes orbitales utilisées dans mon travail. Elles sont présentées dans le tableau 12.

λ (Å) Energies (eV)	Co _{3d}	Co _{3p}	Gd _{4f}	Gd _{4d}
400	6,6	6,2	9,8	7,3
700	8,5	8,2	14,8	12,5
1000	9,9	9,7	19,4	17,3

TABLE VI.2 – Valeur des libres parcours moyens des niveaux du Co et du Gd. [77]

La valeur de l'aire **A** expérimentale corrigée est proportionnelle au nombre total d'atomes détectés, mais ne permet pas une description quantitative. Par contre le rapport R défini par VI.2 permet de suivre l'évolution de la concentration des différentes espèces chimiques en fonction des différents paramètres (E, angle).

$$R = \frac{Nb_{Gd}}{Nb_{Co}} \quad (\text{VI.2})$$

La valeur de l'intégrale corrigée est proportionnelle à la quantité d'atomes de l'espèce chimique présente dans tout l'échantillon et dont la profondeur est suffisamment faible pour que l'électron puisse être détecté. Une étude en fonction de l'énergie du photon (400, 700 et 1000 eV), a été réalisée pour obtenir différentes valeurs de R, comme présenté sur la figure VI.7. Cette figure présente les signaux du Co_{3p} normalisés ainsi que ceux du Gd_{4f}, pour un temps de bombardement ionique de 250 minutes, pour l'échantillon de Co₈₀Gd₂₀.

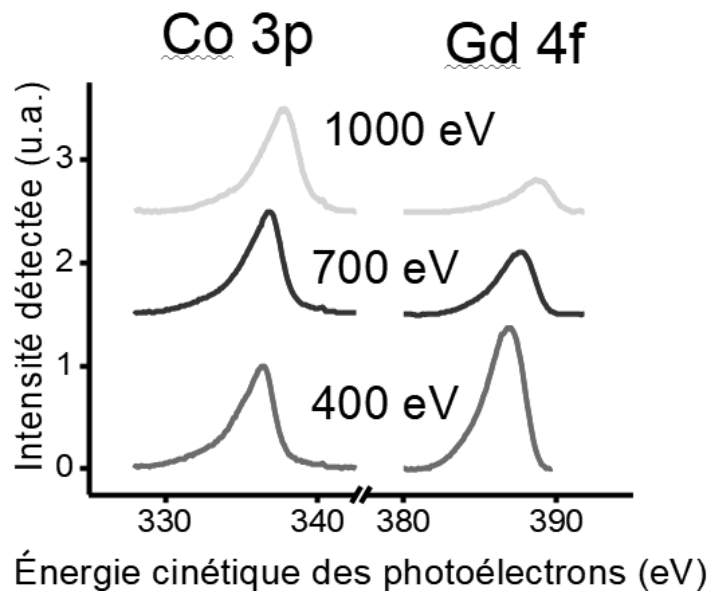


FIGURE VI.7 – Impact de la variation de l'énergie du photon sur le nombre de photoélectrons détectés dans un alliage de CoGd35

Cette étude en énergie est complétée par une étude angulaire de l'échantillon. Les intensités d'intérêt précédemment mentionnées sont étudiées en fonction de l'angle de l'échantillon. Augmenter l'angle d'émission des photoélectrons par rapport à la normale ($\hat{n}$) de l'échantillon a pour effet de diminuer la profondeur analysée, comme présenté sur la figure VI.8. La loi de transmission des électrons étant exponentielle, l'amplitude des intensités sera nettement affectée. Si l'alliage n'est pas uniforme et évolue en fonction de la profondeur d'échantillon, les amplitudes des intensités, et les aires associées, changeront de façon différente, impactant R.

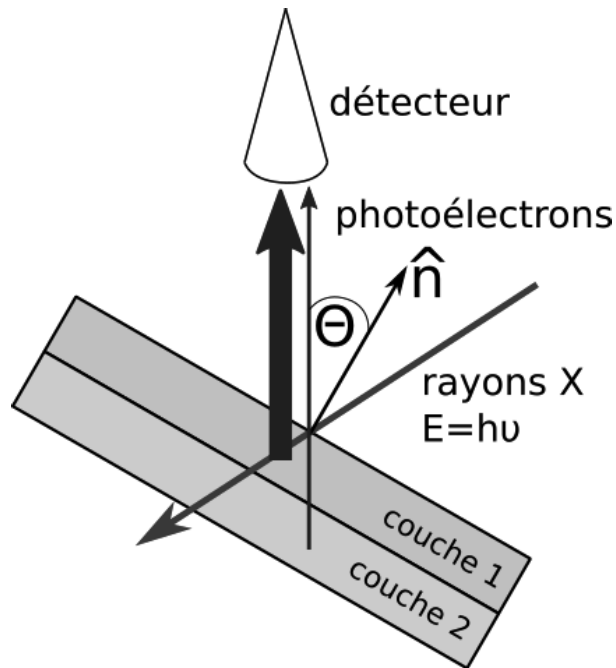


FIGURE VI.8 – Schéma de l'impact de la variation de l'angle de l'échantillon sur les photoélectrons.

VI.1.3 Données numériques.

Nous allons présenter ici les rapports R utilisés pour obtenir les profils. Ceux-ci ont été obtenus en réalisant plusieurs traitements en parallèle des données décrites dans la section précédente. Ces données ont été obtenues par photoémission, dont le schéma est rappelé dans la figure VI.8. Les données ont été obtenues pour trois énergies de photons excitateurs pour plusieurs temps de BI différents. Seules les données utilisées pour le calcul du profil sont présentées ici.

a) Valeurs obtenues pour l'échantillon $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$

Traitements	Rapport R	Energies des photons	BI (minutes)	
			250	310
1	Gd_{4d}/Co_{3p}	400	0,87	0,55
		700	0,48	0,32
		1000	0,33	0,25
	Gd_{4f}/Co_{3p}	400	0,60	0,41
		700	0,49	0,36
		1000	0,32	0,29
2	Gd_{4d}/Co_{3p}	400	0,43	0,29
		700	0,36	0,27
		1000	0,32	0,26
	Gd_{4f}/Co_{3p}	400	0,68	0,47
		700	0,48	0,33
		1000	0,18	0,14

TABLE VI.3 – Tableaux de valeurs obtenues pour le $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ par deux exploitations différentes.

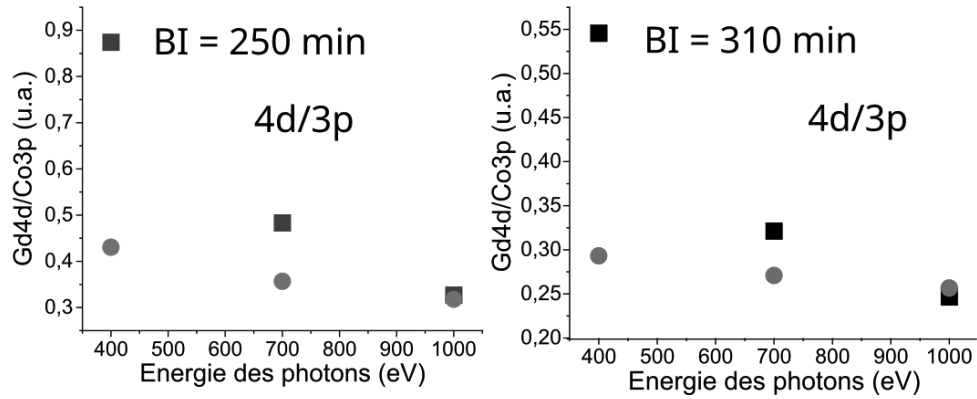


FIGURE VI.9 – Résultats obtenus pour les rapports Gd_{4d}/Co_{3p} en fonction de l'énergie du photon pour l'échantillon de $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ pour des temps de bombardement ionique de 250 et 310 min. Deux traitements du fond continu donnent lieu aux deux séries de valeurs correspondants aux couleurs rouge et noire.

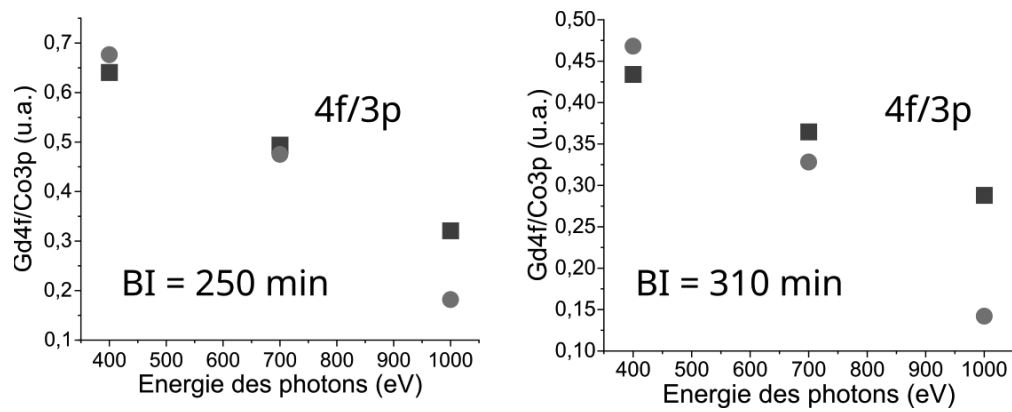


FIGURE VI.10 – Résultats obtenus pour les rapports Gd_{4f}/Co_{3p} en fonction de l'énergie du photon pour l'échantillon de $Co_{80}Gd_{20}$ pour des temps de sputtering de 250 et 310 min. Deux traitements du fond continu donnent lieu aux deux séries de valeurs correspondant aux couleurs rouge et noire.

b) Valeurs obtenues pour l'échantillon Co₆₅Gd₃₅

Traitements	Rapport R	Energies des photons	BI (minutes)	
			250	310
1	$\frac{Gd_{4d}}{Co_{3p}}$	400	1,09	1,04
		700	1,05	0,90
		1000	0,83	0,85
	$\frac{Gd_{4f}}{Co_{3d}}$	400	2,09	2,08
		700	1,73	1,63
		1000	0,78	0,78
2	$\frac{Gd_{4d}}{Co_{3p}}$	400	1,19	1,15
		700	1,06	0,96
		1000	0,95	0,95
	$\frac{Gd_{4f}}{Co_{3d}}$	400	2,20	2,20
		700	1,48	1,40
		1000	0,72	0,69
3	$\frac{Gd_{4d}}{Co_{3p}}$	400	0,92	0,96
		700	0,92	0,85
		1000	0,82	0,94
	$\frac{Gd_{4f}}{Co_{3d}}$	400	2,00	2,38
		700	1,40	1,33
		1000	0,75	0,74

TABLE VI.4 – Résultats obtenus pour le Co₆₅Gd₃₅ pour trois traitements différents des données brutes. Différents ajustements du fond continu ont été utilisés. Trois traitements du fond continu donnent lieu aux trois séries de valeurs correspondant aux couleurs rouges, noires et bleues.

Afin d'obtenir des profils de concentration du Gd pour les échantillons de Co₈₀Gd₂₀ (a) et Co₆₅Gd₃₅, un modèle, composé de 150 couches de concentration de Gd variable a été utilisé. Les concentrations ont été optimisées afin d'obtenir des valeurs R simulées se rapprochant des valeurs obtenues de façon expérimentales. Ce modèle a été dans un premier temps optimisé grâce à un algorithme génétique, puis les résultats ont été affinés manuellement. Les détails de la modélisation sont décrits en Annexe .6. Il faut noter ici que les valeurs de concentration de Gd au delà de 5 nm ont été fixées manuellement suite à des résultats de mesures par SQUID. Notons également que ces premiers résultats tendent à montrer la présence d'une déplétion de Gd dans les zones suivant les fortes concentrations de l'espèce chimique : en intégrant numériquement les concentrations du Gd entre 0 et 5 nm, on retrouver la valeur de la concentration en volume. Cette condition n'était pas codée dans les optimisations et nous conforte dans la pertinence des résultats proposés.

En moyennant les profils, on obtient ainsi les profils de concentration de Gd pour les deux échantillons, présentés sur la figure VI.11 pour les deux alliages Co₈₀Gd₂₀ (a) et Co₆₅Gd₃₅.

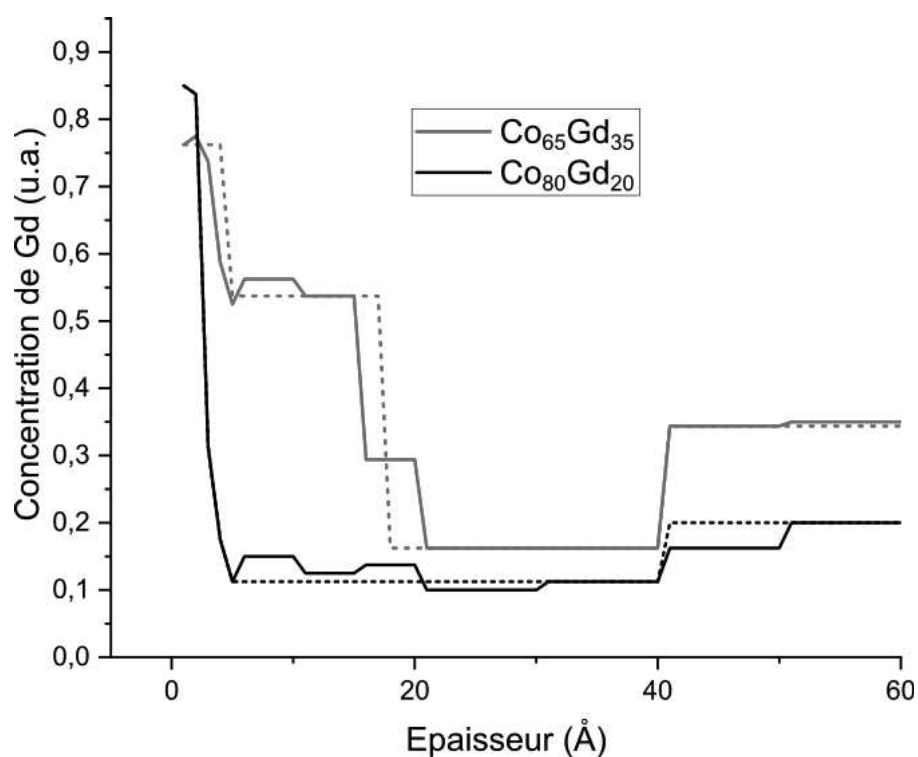


FIGURE VI.11 – Profils issus de la moyenne de 8 profils individuels pour les échantillons de $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ et de $\text{Co}_{65}\text{Gd}_{35}$. Les lignes pointillées sont les profils lissés.

Ces profils moyennés présentent une bonne correspondance avec les données énergétiques, comme présenté dans la figure VI.12.

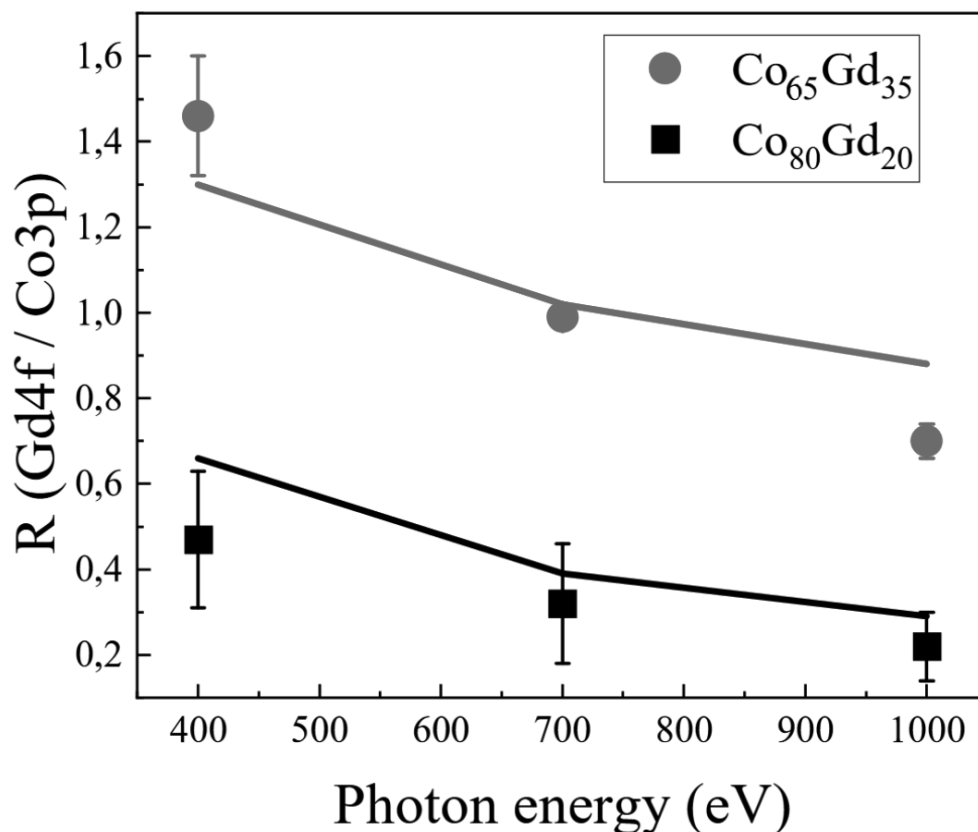


FIGURE VI.12 – Comparaison des valeurs de R moyenne en fonction de trois énergies de photons (400,700 et 1000 eV) pour les échantillons de Co₈₀Gd₂₀ et de Co₆₅Gd₃₅.

c) Etude angulaire

Enfin, deux études angulaires ont été réalisées pour comparer les résultats expérimentaux et les simulations extraites des deux profils, présentées sur la figure VI.11. Les résultats expérimentaux sont présentés dans le tableau VI.5 et la figure VI.13.

échantillons \ angles (en °)	0	10	20	30	40	50	60
Co ₈₀ Gd ₂₀	0,42	0,36	0,38	0,39	0,43	0,49	0,70
Co ₆₅ Gd ₃₅	1,76	1,34	1,34	1,42	1,42	1,73	1,93

TABLE VI.5 – Résultats obtenus pour les ratios Gd4f/Co3d corrigés par la section efficace en fonction de l'angle θ pour les deux échantillons de Co₈₀Gd₂₀ et Co₆₅Gd₃₅.

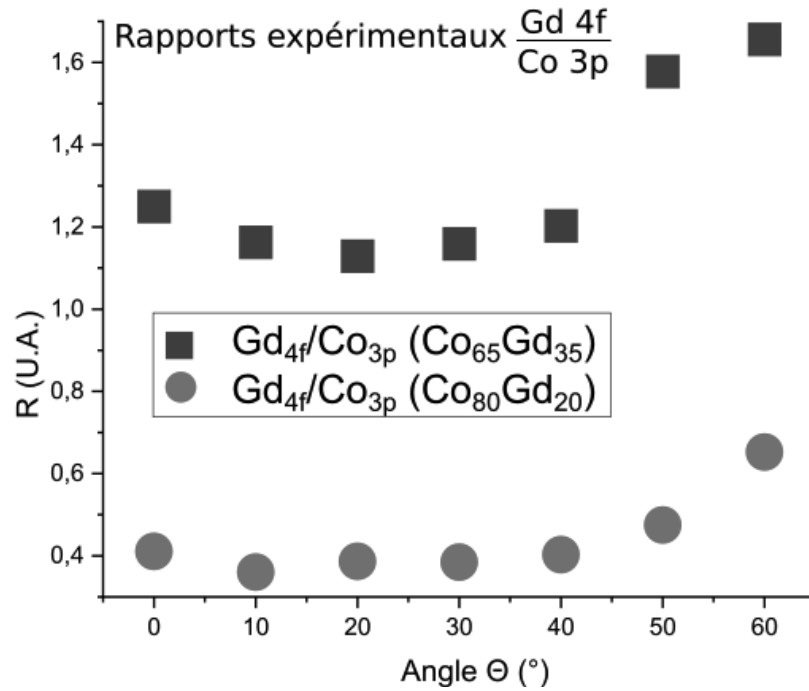


FIGURE VI.13 – Evolution des valeurs expérimentales de R en fonction de l'angle θ . Pour $\theta=0$ la normale de l'échantillon est alignée avec la direction du détecteur.

Afin de vérifier la validité des deux profils proposés, les rapports $\text{Gd}_{4f}/\text{Co}_{3p}$ en fonction de l'angle des profils simulés ont été comparés aux valeurs angulaires. Ceci est présenté sur la figure VI.14. On constate que les valeurs expérimentales sont proches des résultats de la modélisation issus de nos deux profils en concentration.

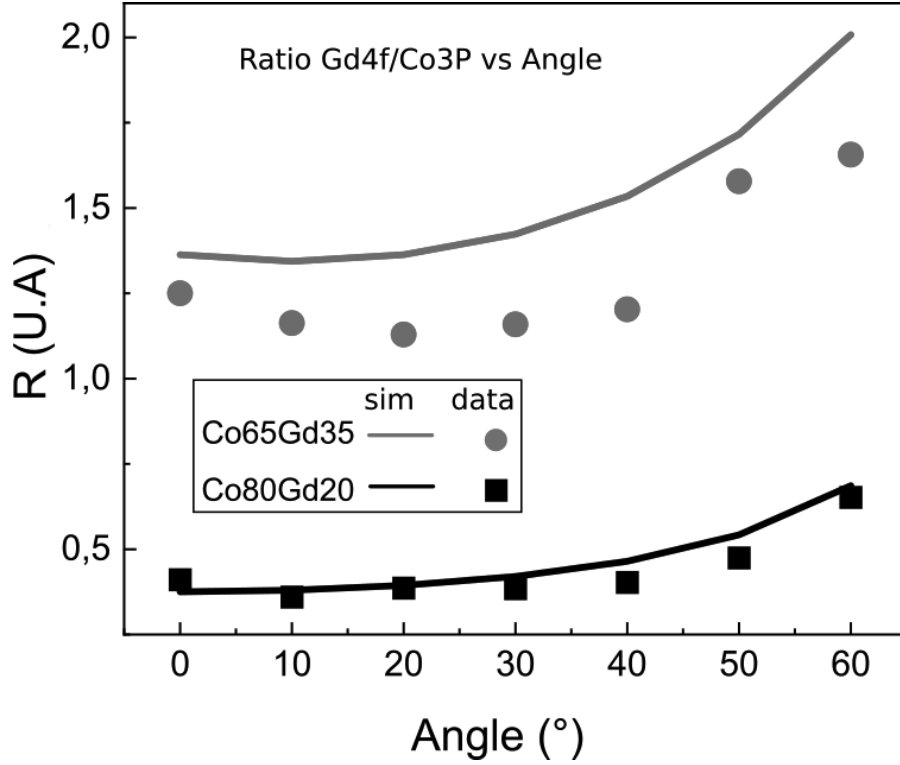


FIGURE VI.14 – Variations angulaires des données expérimentales (points) comparées avec les simulations (traits entiers) issues des profils pour l'échantillon de $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ en noir et l'échantillon de $\text{Co}_{65}\text{Gd}_{35}$ en rouge.

VI.1.4 Interprétation

On constate en figure VI.14, que l'échantillon $\text{Co}_{65}\text{Gd}_{35}$ présente un plateau de concentration élevé en Gd entre 0,2 et 1,5 nm. Ceci pourrait donc expliquer les dynamiques plus lentes observées pour $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ de T. Ferté, utilisant la technique de photoémission. En effet, le Gd massif donne lieu à une dynamique lente au GdM5 [119, 14]. L'alliage $\text{Co}_{65}\text{Gd}_{35}$ présente en effet une concentration en Gd de 50 % sur les deux premiers nanomètres, ce qui pourrait donc être la cause des dynamiques lentes mesurées par excitation IR ainsi que celles mesurées par électrons chauds. Ce plateau est absent pour l'échantillon de $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ et on peut supposer que la dynamique rapide mesurée est relative à la faible concentration de Gd (15% Gd) en surface.

Notons que les résultats de T.Ferté ont été réalisés par photoémission en résonance au seuil Gd_{M5} pour une énergie de photon $h\nu = 1183$ eV, et une énergie cinétique d'environ 1100 eV. Le libre parcours moyen λ des photoélectrons est donc d'environ 2 nm. On peut donc dire que la différence de dynamique observée entre $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$ et $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ est bien relative à la différence de composition des premières couches de surface présentées dans cette étude.

Conclusion

Dans cette partie, nous avons présenté les résultats de l'étude de la concentration des alliages de $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$. Les profils en concentrations proches de la surface montrent clairement que le Gd ségrège fortement, ce qui, dans le cas du $\text{Co}_{65}\text{Gd}_{35}$, crée un plateau entre 0,5 et 2 nm de 55% de Gd. Pour l'échantillon de $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$, au contraire, la zone proche de la surface est pratiquement déplétée de Gd, à l'exception d'une monocouche sur la surface de l'échantillon. Les différentes dynamiques constatées par T.Ferté utilisant la photoémission en résonance (XMCD), présentées dans la figure VI.2, 79, ont donc été analysées et mieux comprises à travers l'étude des profils de concentrations du Gd.

Conclusion générale de la partie I

Dans cette première partie, j'ai présenté les résultats d'une étude portant sur la désaimantation ultrarapide d'un alliage de CoGd, en utilisant les techniques expérimentale XMCD, pour la caractérisation statique, et du tr-XMCD, en particulier celle du femtoslicing, pour la caractérisation dynamique. J'ai également présenté le résultat d'une étude portant sur le gradient de concentration des deux espèces chimiques composant l'alliage CoGd par photoémission. En effet, l'objectif de ce travail est d'étudier l'impact de la polarisation en spin des électrons chauds sur la désaimantation ultrarapide de l'alliage de CoGd magnétique. Ceci implique de connaître exactement avec quel système interagissent les électrons chauds polarisés, question d'autant plus pertinente que leur libre parcours moyen est très faible ($\approx 3-6$ nm).

Les échantillons ont été réalisés par sputtering à IJL Nancy, comme présenté dans le chapitre III et sont composés d'un empilement de couches magnétiques et non magnétiques. Les échantillons ont été préalablement caractérisés par MOKE et par XMCD aux seuils Co L_{2,3} et Gd M_{4,5}. Ces caractérisations magnétiques statiques ont rendu possible la détermination des valeurs optimales de température et de champ magnétique extérieur.

La première étude, présentée dans le chapitre V, est centrée sur des mesures expérimentales visant à révéler l'impact de la polarisation des électrons chauds sur la désaimantation du gadolinium mesuré au seuil GdM₅. Nous extrayons ainsi l'amplitude, A , et le temps caractéristique τ de la désaimantation mesuré par XMCD résolu en temps en fonction de la polarisation en spin.

La dynamique d'aimantation d'un échantillon, présentant la structure CoPt/Cu/ Co₆₁Gd₃₉ a été mesurée par slicing. On constate qu'à $T = 80^\circ$ K, et pour une fluence de pompe IR de 60 mJ/cm^2 , la désaimantation par électrons chauds pour une couche CoGd est de l'ordre de 50 %, et que le rapport signal sur bruit est satisfaisant. Deux configurations magnétiques différentes de la couche de CoGd ont été étudiées. Dans la configuration 1 -P- (respectivement 2 -AP-), le vecteur d'aimantation de la couche CoGd était parallèle (respectivement antiparallèle) à celui de la couche de CoPt. L'objectif a été de mettre en évidence la dynamique de désaimantation d'une terre rare, ici le Gd, et l'influence du spin du courant d'électrons chauds sur la dynamique de désaimantation au GdM₅. Notons que le fit a été réalisé avec un seul τ . Le fit de la configuration P révèle τ de $9,4 \pm 0,5$ ps tandis que le fit de la configuration AP révèle un τ de 15 ± 2 ps.

La dynamique est plus rapide pour P que dans le cas AP. Au vu des barres d'erreur et de la statistique des deux dynamiques, il paraît difficile de proposer une conclusion définitive. On peut cependant proposer que la dynamique plus rapide (P, c'est-à-dire que l'aimantation du CoPt est parallèle à celle du Gd) s'explique par les vecteurs anti-parallèles de l'aimantation des deux sous-réseaux de cobalt, favorisant la désaimantation du Co de la couche d'alliage CoGd, grâce à un transfert de moment angulaire. Ce pro-

cessus pourrait alors accompagner une accélération de la dynamique du Gd. Cette accélération est attendue aux temps courts (≤ 1 ps) mais reste invisible dans notre expérience. Ceci peut être relié à la dynamique de désaimantation lente au Gd M_5 . Pour expliquer la dynamique lente de la désaimantation au Gd pour l'ensemble des deux configurations, nous devons envisager une explication liée à la structure de l'alliage et à la faible profondeur de pénétration des électrons chauds qui excitent la couche de 15 nm de CoGd. Résoudre le profil chimique de notre couche CoGd a été une des motivations de l'étude par photoémission. Des expériences au XFEL permettrait, grâce à une intensité lumineuse plus importante, d'avoir un rapport signal sur bruit plus avantageux et de travailler avec des épaisseurs de couche MT-TR de 4 nm, c'est-à-dire la profondeur de pénétration des électrons chauds.

Afin de pouvoir comprendre nos dynamiques d'aimantation, il est indispensable de pouvoir décrire la structure de l'alliage CoGd et éventuellement proposer un profil en concentration des deux éléments des premières couches d'alliage. Pour cela, la technique de choix est la photoémission résolue en angle et en énergie. Ce travail, présenté dans le chapitre VI fait aussi suite à l'étude de T. Ferté [39] concernant la dynamique de désaimantation induite par une pompe IR. Les dynamiques de deux échantillons de compositions respectives $Co_{70}Gd_{30}$ et $Co_{81}Gd_{19}$ ont été étudiées par photoémission résonante au seuil du Gd M_5 résolue en temps (tr-MCDAD), et en utilisant des rayons X en mode low α [102], avec une résolution de 10 ps. Ceci révèle des temps caractéristiques très différents (12 ps et 37 ps). Dans les expériences de T. Ferté, la composition de surface est, elle aussi, un possible facteur de différence. En effet, la profondeur d'échappement des photoélectrons est d'environ 2 nm alors que l'épaisseur totale de la couche de CoGd est de 15 nm pour l'ensemble de nos études.

Afin de définir la stoechiométrie en surface de l'alliage de CoGd, une étude en photoémission a été réalisée au synchrotron de SOLEIL. Cette méthode est sensible à la concentration relative des espèces chimiques dans les couches à la surface de l'échantillon, le libre parcours moyen des photoélectrons étant compris entre 0,7 et 1,4 nm suivant l'énergie et les seuils considérés. Les deux échantillons étudiés ont des compositions respectives de $Co_{65}Gd_{35}$ et $Co_{80}Gd_{20}$.

Les données expérimentales utilisées pour extraire les profils de concentration sont issues des rapports des intensités des photoélectrons émis (rapport Gd/Co) pour trois énergies d'excitation différentes : 400, 700 et 1000 eV. Les différentes profondeurs d'échappement des photoélectrons ainsi sondés rendent nos résultats sensibles aux différentes couches à partir de la surface. Les profils ont ainsi été obtenus pour chaque échantillon. Ceux-ci permettent d'obtenir, par le calcul, une variation en fonction de l'angle d'émission qui se compare parfaitement aux données expérimentales. Ce travail donne lieu à une publication en cours de soumission. [78]

On constate que l'échantillon $Co_{65}Gd_{35}$ présente un plateau de concentration élevé en Gd entre 0,2 et 2 nm. Ceci pourrait donc expliquer les

dynamiques plus lentes ($\tau \approx 37$ ps) observées pour le $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ mesurées par T. Ferté. En effet, le Gd massif donne lieu à une dynamique lente ($\tau \approx 37$ ps) au GdM5 [119]. L'alliage $\text{Co}_{65}\text{Gd}_{35}$ présente en effet une concentration en Gd de 50 % sur les premiers nanomètres, ce qui pourrait donc être la cause des dynamiques lentes mesurées via une excitation IR par T. Ferté ainsi que celles mesurées par excitation d'électrons chauds par moi-même. Ce plateau de concentration élevé en Gd est absent pour l'échantillon de $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ et on peut donc supposer que la dynamique rapide mesurée est relative à la faible concentration de Gd ($\simeq 15\%$ Gd) en surface.

Deuxième partie

Utilisation de courants
d'électrons chauds polarisés en
spin pour l'émission en espace
libre d'ondes THz.

Chapitre VII

Introduction à la physique des ondes térahertz

VII.1 Introduction

Nous avons, dans la partie précédente, détaillé le phénomène de la désaimantation d'un échantillon magnétique par un courant de spin d'électrons chauds. Ces électrons chauds ont été générés par une couche de platine, puis polarisés par une deuxième couche métallique, magnétiquement dure. Leur effet est observé par l'étude de l'évolution de l'aimantation d'une troisième couche magnétiquement douce. Dans la suite, le courant d'électrons chauds polarisés en spin, et de fréquence de l'ordre des térahertz, est directement généré par l'excitation optique d'une couche magnétique. Ce courant de spin va ensuite générer un courant de charge par effet Hall de spin inverse (ISHE) en se propageant dans un métal lourd, tel que du tungstène ou du platine. Ce courant de charge devient alors la source d'un champ électromagnétique externe de même fréquence permettant la génération d'ondes THz. [98] Ces ondes ont de nombreuses applications au-delà de l'intérêt purement scientifique que représente la possibilité d'émettre et de détecter des signaux dans un domaine de fréquences difficilement accessibles. Mon travail a consisté à proposer et à adapter à l'émetteur spintronique, différentes géométries d'antennes, afin d'améliorer son émission dans la gamme des THz. La structure finale est présentée dans la figure VII.1, avec en bleu le substrat, en jaune, une géométrie d'antenne, au centre, l'émetteur ainsi que l'excitation optique IR, et l'émission THz. L'encart présente l'émetteur, composé de trois couches métalliques, ainsi que le parcours des spins dans la structure. Dans ce chapitre, nous allons tout d'abord définir la gamme de fréquence des ondes THz (VII.2), puis nous étudierons deux émetteurs usuels. Ceux-ci fonctionnent respectivement grâce au principe de rectification optique (VII.3.1) et de la photo-physique des semi-conducteurs (VII.3.2). Notons que ces systèmes uti-

lisent des phénomènes physiques liés à la charge de l'électron. J'introduirai ensuite un modèle pour l'émetteur spintronique (VII.3.3), puis une dernière partie est consacrée à la modélisation d'antennes (VII.4).

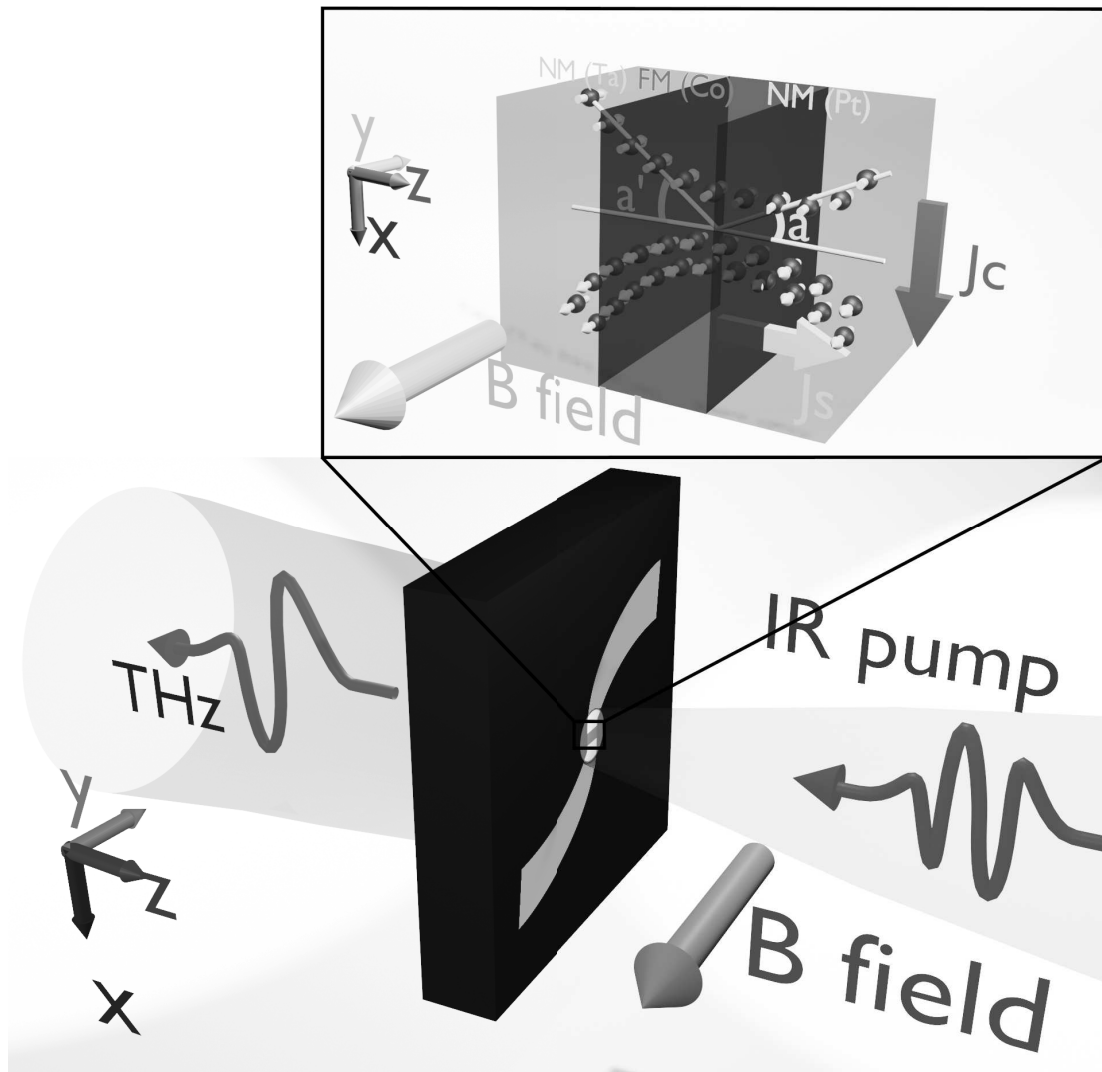


FIGURE VII.1 – Structure et principe de fonctionnement d'un émetteur spintronique THz équipé d'une antenne électromagnétique planaire. En bleu, le substrat, en jaune une géométrie d'antenne encadrant l'émetteur rose clair. L'excitation IR, le champ magnétique extérieur, et l'émission THz sont également représentés. L'encart présente un zoom sur l'émetteur lui-même, composé de trois couches métalliques, ainsi que les courants d'électrons chauds polarisés en spin se déplaçant dans la structure à la suite de l'impulsion IR.

VII.2 Définition

Initialement appelées infrarouges lointains, les ondes terahertz (THz) se situent entre l'infrarouge et les micro-ondes. Les fréquences d'intérêt sont comprises entre 0,1 THz et 10 THz. Ceci se traduit par des longueurs d'ondes comprises entre 30 μm et 3 mm. (figure VII.2.) Constatons que cette zone est difficilement couverte par des méthodes habituelles de génération d'ondes, qu'elles soient optiques, pour les hautes fréquences, ou électroniques, pour les basses fréquences. Cette gamme de fréquences est donc particulièrement ardue à générer avec les méthodes traditionnelles et on parle de gap THz.

Les applications des ondes électromagnétiques sont nombreuses. Les rayons gamma (scintigraphie) et X (radio) sont utilisés en imagerie médicale tandis que les UV ont des applications en spectroscopie. Les technologies utilisant la lumière visible sont très nombreuses. Les infra-rouges ont de multiples applications dans les domaines de la communication et de la spectroscopie. Enfin les micro-ondes et les ondes radio sont les pierres angulaires des systèmes de communications. A l'inverse, les terahertz ont, encore à ce jour, une application limitée, ceci étant en partie dû au gap d'émission et de détection. On peut néanmoins citer quelques réussites, notamment dans le domaine de la télécommunication, où une transmission a pu être réalisée avec un faisceau THz en 2008 [55]. Ceci offre l'avantage d'un très haut débit d'informations, ainsi que d'une transmission sécurisée, l'émission THz étant particulièrement directive. Ceci représente une contrainte technique, mais cela signifie aussi que la réception du signal est limitée pour les non-destinataires, ce qui rend une interception du signal difficile. [123, 63, 61]

Génération		Longueur d'onde	Fréquence
Optique	Rayon Gamma	10^{-12} m	3×10^{20} Hz
	Rayon X	10^{-10} m	3×10^{18} Hz
	Ultraviolet	10^{-8} m	3×10^{16} Hz
	Visible	10^{-6} m	3×10^{15} Hz
	Infrarouge	10^{-5} m	3×10^{13} Hz
Electronique	Térahertz	10^{-4} m	3×10^{12} Hz
	Micro-ondes	10^{-2} m	3×10^8 Hz
	Ondes radio	10^3 m	3×10^4 Hz

FIGURE VII.2 – Présentation du spectre électromagnétique.

Pour introduire d'autres domaines d'application pour les ondes THz, nous allons nous intéresser à l'énergie transportée par un photon. Les données sont rassemblées dans le tableau VII.1 :

Fréquence(THz)	Nombre d'onde(cm^{-1})	Longueur d'onde(μm)	Energie(meV)
0,1	3,33	3000	0,41
2,1	70	142 (H2O, rotation [83])	8,26
20	667	15 (CO2, déformation)	123
100	3333	0,3	615

TABLE VII.1 – Comparaison de grandeurs caractéristiques dans le domaine THz

Ces valeurs d'énergie sont relativement faibles, loin des énergies ionisantes caractéristiques des rayons X par exemple. Les rayons THz sont donc considérés comme non-invasifs. Une autre particularité est que ces fréquences correspondent à des transitions d'énergie rotationnelles et plus rarement vibrationnelles de molécules, comme le montre le tableau VII.1, permettant une caractérisation de celles-ci.

Ainsi, les ondes THz peuvent être utilisées dans les domaines de la spectroscopie (domaine médical, chimie organique, astronomie), et de la sécurité, notamment aéroportuaire, puisque certaines fréquences sont caractéristiques

de substances dangereuses comme des explosifs [29] [23].

Maintenant, que nous avons vu l'intérêt des THz, voyons quelques méthodes permettant de les générer.

VII.3 Génération des ondes THz

L'intérêt relatif à la génération d'ondes THz s'explique par les différentes applications décrites dans le paragraphe précédent. Historiquement, les premières ondes THz étaient extraites de l'émission radiative d'un corps noir. [93] L'amplitude d'émission était cependant extrêmement faible. C'est à partir des années 1970, avec l'apparition des premiers lasers femtosecondes que la génération de cette plage de fréquences a pu être facilitée. En effet, la plupart des phénomènes physiques à l'origine de l'émission d'ondes THz reposent sur une excitation très intense de matériaux. Nous décrirons d'abord une méthode toute optique dite de rectification optique, que nous détaillerons quelque peu, afin d'explicitier le besoin d'une importante amplitude d'excitation ainsi que les différents phénomènes physiques amenant à l'émission de THz. Nous présenterons ensuite la méthode électro-optique (photoconducteurs ou switches d'Auston), pour laquelle le même travail introductif sera réalisé. Enfin, nous présenterons plus en détail le principe de l'émetteur spintronique utilisé dans cette thèse, en le comparant aux deux méthodes décrites précédemment.

VII.3.1 Rectification Optique

Dans un matériau diélectrique, la polarisation liée au champ électrique est caractérisée par la susceptibilité électrique. La polarisation est généralement composée de plusieurs contributions, chacune dépendant du champ électrique comme présenté dans l'équation VII.1 :

$$P = \epsilon_0 \chi^1 E(t) + \epsilon_0 \chi^2 E(t)^2 + \epsilon_0 \chi^3 E(t)^3 + \dots ; \quad (\text{VII.1})$$

avec ϵ_0 est la permittivité du vide et χ est le tenseur diélectrique. A l'ordre 1, ce terme est lié à l'indice de réfraction du matériau par la relation : $\chi^1 = n^2 - 1$. Pour représenter l'interaction lumière (champ électrique)/matière (polarisation), spécifique à chaque matériau, et ses caractéristiques vectorielles, on peut réaliser un développement de Taylor en fonction du champ électrique qui rend compte de processus non-linéaires à tous les ordres $n > 1$. Pour la suite, nous nous limiterons aux deux premiers termes de l'équation VII.1, c'est-à-dire le terme linéaire et quadratique. Il est important de noter que le matériau ne doit pas avoir de centre de symétrie pour que le tenseur χ de la polarisation d'ordre deux, ou de tout ordre pair, soit non nul.

Nous allons ici présenter quelques phénomènes de polarisation d'ordre

deux afin d'introduire le cas particulier de la rectification optique, permettant l'émission THz.

Sommes et différence de fréquences.

La somme (respectivement la différence) de fréquences est un phénomène décrivant la génération d'un photon dont la fréquence f_{sortie} est la somme (différence) de celle de deux photons f_1 et f_2 annihilés lors de leur interaction avec le matériau. Ces phénomènes requièrent l'emploi de deux sources lumineuses de haute intensité. Dans la suite, nous allons nous intéresser au cas particulier $f_1 = f_2$. La somme est alors appelée génération de deuxième harmonique ou doublage de fréquence et est encore beaucoup utilisée pour générer des UV ou des rayons X mous. La différence est appelée rectification optique et ce phénomène est notamment utilisé pour générer des THz.

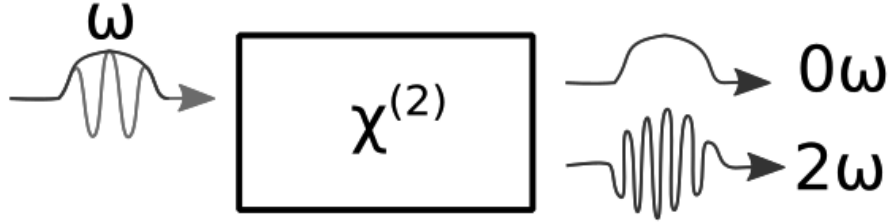


FIGURE VII.3 – Présentation de deux effets résultant du terme d'ordre deux de la polarisation : doublage de fréquence (en bleu) et rectification optique (en marron).

Décrivons la modélisation mathématique. Introduisons ainsi un faisceau laser dont l'intensité du champ électrique est représentée par

$$E(t) = E_0 \exp -i\omega t + c.c. \quad . \quad (VII.2)$$

Ce faisceau laser excite un cristal dont la susceptibilité de second ordre $\chi^{(2)}$ est non nulle. La polarisation non-linéaire qui est créée dans un tel cristal est donnée selon l'équation VII.1. On obtient ainsi le terme de polarisation à l'ordre 2 suivant :

$$P_2(t) = \epsilon_0 \cdot \chi^{(2)} \cdot E^2(t) \quad , \quad (VII.3)$$

C'est-à-dire, de façon explicite :

$$P_2(t) = 2\epsilon_0 \chi^{(2)} \cdot E_0 \cdot E_0 * + (\epsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 \exp(-2i\omega t) + c.c.) \quad . \quad (VII.4)$$

Il ressort de cette équation qu'un champ électrique dont l'amplitude est suffisamment importante peut générer plusieurs polarisations de fréquences différentes dans un matériau. En effet, la contribution de fréquence 2ω de l'équation VII.4 correspond au phénomène de génération de seconde harmonique.

La rectification optique.

Notons que la polarisation du second ordre, décrite par l'équation VII.4 est aussi constituée d'une contribution à fréquence nulle (le premier terme). Notons également qu'en régime stationnaire, cette contribution ne conduit pas à la génération de rayonnement électromagnétique. En effet, le terme étant constant dans ce cas, sa seconde dérivée temporelle est nulle. Cependant, en régime transitoire, en utilisant des impulsions par exemple, on obtient un terme variant en fonction de l'enveloppe de l'excitation et pouvant générer un champ électromagnétique, comme présenté dans la figure VII.3. Le terme est représentatif du processus connu sous le nom de rectification optique, dans lequel un champ électrique statique est créé à travers le cristal non-linéaire. La rectification optique est un cas particulier de la génération de lumière par différence de fréquences. D'un point de vue physique, le phénomène peut se comprendre en se représentant le potentiel non-harmonique dans lequel se trouve l'électron. En présence d'une excitation alternative de moyenne nulle, le déplacement moyen des charges du matériau sera non nul, générant un champ électrique continu. Dans ce cas, l'onde lumineuse polarise le matériau diélectrique traversé.

La première rectification optique a été observée en 1962 par Franken et ses collaborateurs [66] un mois à peine après la parution d'un article théorisant le phénomène : [25]. Dans cette expérience, un laser à rubis a généré un rayon polarisé linéairement transmis à travers un cristal de potassium dihydrogène phosphate (KDP) ou de potassium dideutérium phosphate (KDdP). Cette excitation optique a généré une tension quasi-continue, indiquant la présence d'une polarisation non nulle du matériau, mesurée par un oscilloscope. Le premier emploi de ce phénomène physique afin de générer une onde térahertz remonte à 1970 [128]. Notons que cette gamme de fréquences était présentée à cette époque comme des infrarouges lointains. L'équipe a excité plusieurs cristaux différents (LiNbO_3 , ZnTe , ZnSe , CdS et du quartz) avec des impulsions lumineuses issues d'un laser neodymium-verre. La longueur d'onde de l'émission est de l'ordre de la centaine de μm . Celle-ci est fixée par le matériau, et par la forme de l'impulsion émise par le laser [6].

Cas d'impulsions gaussiennes

Pour créer une impulsion THz par rectification optique, il est nécessaire d'exciter le matériau avec l'ensemble des ondes monochromatiques qui constituent l'impulsion optique. On suppose, dans un souci de simplification, que le champ électrique est polarisé linéairement et qu'il se propage selon z sous la forme d'une impulsion gaussienne. On peut alors écrire le champ électrique de la façon suivante :

$$E(z, t) = \int_{+\infty}^{-\infty} E(z, \omega) \cdot \exp(i\omega t) d\omega \quad , \quad (\text{VII.5})$$

$$E(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_0 \cdot \exp(-(\omega - \omega_0)^2 \cdot \tau_p^2) \cdot \exp(i\omega t - k(\omega)z) d\omega \quad . \quad (\text{VII.6})$$

On définit τ_p comme la largeur temporelle du champ électrique : $\tau_p = \frac{FWHM}{\sqrt{8 \cdot \ln(2)}}$ où FWHM est la largeur à mi-hauteur de l'impulsion. Soit v_g la vitesse de groupe de la lumière à la fréquence ω_0 , en prenant en compte la dispersion et en intégrant VII.6, on arrive à l'équation suivante, décrivant le champ électrique de l'impulsion gaussienne :

$$E(z, t) = A(z, t) \cdot \exp(i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)) \quad . \quad (\text{VII.7})$$

On pose aussi $A(t)$, l'enveloppe gaussienne de l'impulsion lumineuse et ω_0 la fréquence de l'onde porteuse.

$$A(z, t) = A_0 \cdot \exp\left(-\frac{(t - \frac{z}{v_g})^2}{4\tau_p^2}\right) \quad . \quad (\text{VII.8})$$

Équation d'onde

Dans cette section, nous allons nous intéresser à l'émission électromagnétique induite par la réponse non-linéaire du milieu d'intérêt. Pour réaliser cette étude, nous allons employer les équations de Maxwell-Faraday et Maxwell-Ampère pour décrire mathématiquement la réponse électromagnétique du milieu.

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \mu_0 \cdot \frac{\partial \mathbf{H}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = 0 \quad . \quad (\text{VII.9})$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) + \frac{\partial \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad . \quad (\text{VII.10})$$

Remarquons que le milieu étudié est diélectrique. Ceci implique qu'il ne possède pas de charges électriques (ρ) susceptibles de se déplacer de façon macroscopique. Il n'y a donc pas de courant et on peut donc poser $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = 0$. De la même façon $\rho = 0$ et donc $\Delta \mathbf{E} = 0$, en utilisant l'équation de Maxwell-Gauss. En réalisant le produit vectoriel de VII.9 par ∇ et réalisant les simplifications permises, on obtient :

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} \quad . \quad (\text{VII.11})$$

Cette équation peut être écrite dans l'espace fréquentiel. L'intégration nécessaire à la réalisation de la transformée de Fourier commute avec les opérateurs de VII.11. Ces éléments nous permettent de simplifier l'équation, qui devient :

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\omega^2 \mu_0 \mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) \quad . \quad (\text{VII.12})$$

L'induction électrique peut s'écrire en fonction du champ électrique et de la polarisation. Ce deuxième terme peut être divisé en deux termes : la polarisation linéaire et un terme non-linéaire. Il vient alors :

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{P}_L(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0(1 + \chi^{(1)}(\omega)) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, \omega) . \quad (\text{VII.13})$$

Enfin, en introduisant VII.13 dans VII.12, on obtient VII.14 :

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \frac{\epsilon(\omega)\omega^2}{c^2} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\mu_0\omega^2 \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, \omega) . \quad (\text{VII.14})$$

L'équation VII.14 exprime de façon directe l'émission électromagnétique à partir de la polarisation non-linéaire du matériau. Dans l'expression, $\epsilon(\omega) = \epsilon_0(1 + \chi^{(1)}(\omega))$, il s'agit de l'indice optique du milieu au carré. Constatons que la polarisation non-linéaire est ici le terme exciteur. À ce stade, il est nécessaire de relier la polarisation du milieu à l'excitation gaussienne décrite dans le paragraphe précédent. Afin de simplifier le développement qui va suivre, nous nous placerons dans le cas où les grandeurs seraient scalaires. En se limitant au terme quadratique de l'équation pour la polarisation non-linéaire et en y injectant l'expression VII.7 et VII.8 de l'impulsion gaussienne, on obtient l'expression suivante :

$$P_2(t) = 2\epsilon_0\chi_{OR}^{(2)} \cdot A(z, t)^2 + 2\epsilon_0\chi_{DF}^{(2)} \cdot A(z, t)^2 \cdot e^{i2\omega t} . \quad (\text{VII.15})$$

Notons que l'étude porte sur l'émission d'ondes THz par rectification optique. Par souci de simplicité, nous allons donc ignorer le terme relatif à l'effet de doublement de la fréquence. Ainsi, la polarisation d'ordre 2, $P_2(z, t)$ devient :

$$P_2(z, t) = 2\epsilon_0\chi_{OR}^{(2)} \cdot A_0^2 \cdot \exp\left(-\frac{(t - \frac{z}{v_g})^2}{2\tau_p^2}\right) . \quad (\text{VII.16})$$

En passant en domaine fréquentiel, on obtient l'expression suivante :

$$P_2(z, \omega) = \frac{2\epsilon_0\chi_{OR}A_0^2}{\sqrt{2\pi}} \tau_p \cdot e^{-\frac{\omega^2\tau_p^2}{2}} \cdot e^{-\frac{i\omega z}{v_g}} . \quad (\text{VII.17})$$

Le terme générateur, à droite dans VII.14, devient alors :

$$-\mu_0\omega^2 \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, \omega) = -\mu_0\omega^2 \frac{2\epsilon_0\chi_{OR}A_0^2}{\sqrt{2\pi}} \tau_p \cdot e^{-\frac{\omega^2\tau_p^2}{2}} \cdot e^{-\frac{i\omega z}{v_g}} . \quad (\text{VII.18})$$

En posant :

$$a(\omega) = -\mu_0 \frac{2\epsilon_0\chi_{OR}A_0^2}{\sqrt{2\pi}} \omega^2 \tau_p e^{-\frac{\omega^2\tau_p^2}{2}} , \quad (\text{VII.19})$$

on peut réécrire VII.14 de la façon suivante :

$$\Delta E(z, \omega) + \frac{\epsilon(\omega)\omega^2}{c^2} \cdot E(z, \omega) = -a(\omega)e^{\frac{-i\omega z}{v_g}}, \quad (\text{VII.20})$$

où $a(\omega)$ est l'amplitude du terme d'excitation, représentée graphiquement sur la figure VII.4 pour différentes durées d'impulsion τ_P du laser.

Notons certains éléments ressortant des équations VII.19 et VII.20 et de la figure VII.4 :

- La réponse du système est proportionnelle au carré de l'amplitude de l'excitation optique. Cet élément a pour origine le processus non-linéaire d'ordre deux permettant l'émission des ondes THz.
- L'amplitude évolue en fonction du carré de la fréquence de sortie, le système est donc plus apte à générer de hautes fréquences.
- Les lasers femtosecondes modernes permettent d'obtenir une durée d'impulsion excitatrice courte qui s'accompagne généralement d'une amplitude crête à crête élevée, ce qui est à rechercher pour maximiser l'émission THz. Notons que cela se traduit par un τ_p petit, ce qui entraîne une amplitude $a(\omega)$ élevée, un maximum d'amplitude de fréquence important et un spectre large.

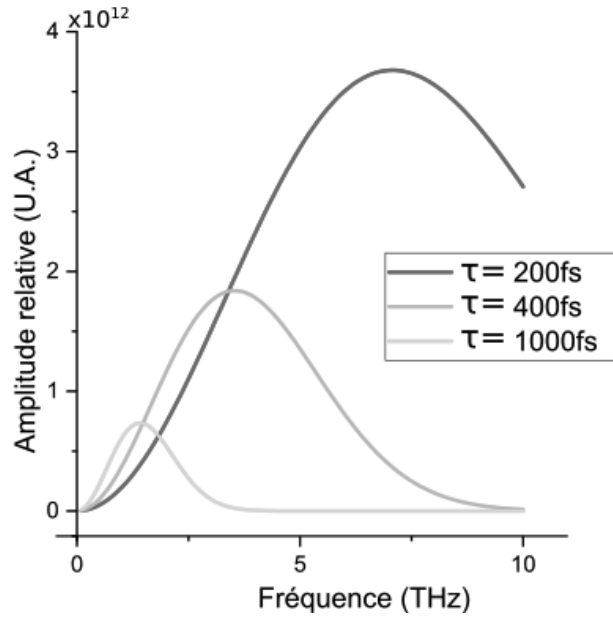


FIGURE VII.4 – Évolution de $a(\omega)/a_0$ en fonction de τ_p . En rouge $\tau_p=200\text{fs}$, en orange $\tau_p=400\text{fs}$ et en vert, $\tau_p=1000\text{fs}$.

Une condition d'accord de phases doit être remplie pour que la génération par rectification optique soit efficace. En effet, la vitesse de l'impulsion excitatrice et du champ électrique THz doivent être proches. Nous allons démontrer cette condition en partant de l'équation VII.20. Nous allons, pour simplifier, supposer que l'onde s'écrit sous la forme suivante :

$$E(z, \omega) = E_{THz}(z, \omega) \exp -i\omega \frac{z \cdot n(\omega)}{c} . \quad (\text{VII.21})$$

En supposant que l'amplitude du champ électrique varie lentement par rapport à sa longueur d'onde, on peut négliger le terme $\frac{d^2 E_{THz}}{dz^2}$ devant $k(\omega) \frac{dE_{THz}}{dz}$, et en injectant VII.21 dans VII.20 on obtient la formule suivante :

$$-2ik(\omega) \frac{\partial E_{THz}(z, \omega)}{\partial z} = a(\omega) \exp i\omega z \left(\frac{n(\omega)}{c} - \frac{1}{v_g} \right) . \quad (\text{VII.22})$$

Il est ensuite possible d'intégrer VII.22, à la condition que l'onde excitatrice diminue peu lors de sa propagation dans le milieu émetteur. Ceci est généralement vérifié étant donné la taille des échantillons utilisés. On obtient ainsi l'équation d'ondes suivante :

$$E_{THz}(L, \omega) = \frac{ia(\omega)}{2k} L \cdot \text{sinc} \left(\frac{\omega}{2c} \left(n(\omega) - \frac{c}{v_g} \right) L \right) . \quad (\text{VII.23})$$

Cette équation nous permet de constater que l'amplitude du champ électrique THz émis est maximum lorsque $n(\omega) = \frac{c}{v_g}$. c'est-à-dire lorsque la vitesse de phase des ondes THz est égale à la vitesse de groupe de l'impulsion laser d'excitation. Cependant, seules quelques composantes spectrales peuvent répondre à cette condition, à cause de la dispersion des ondes électromagnétiques THz dans le milieu émetteur. Ceci entraîne la nécessité de compromis entre l'efficacité de génération des ondes THz et la largeur du spectre des ondes émises.

Le cristal de ZnTe est un émetteur souvent considéré comme une référence de comparaison pour d'autres émetteurs sur la même plage de fréquences, puisqu'il s'est illustré par un spectre fréquentiel large, et des amplitudes d'émissions relativement importantes. D'autre part, ce cristal permet la détection d'ondes THz, comme nous le verrons dans la section VIII.4.1.

Constatons néanmoins la limite de ce modèle par rapport aux données expérimentales. En effet, comme présenté par Seifert et son équipe [98], le spectre d'émission d'un cristal de ZnTe n'est pas continu, en particulier, à cause, de l'existence de raies d'absorption THz dans le matériau. Ceci est présenté dans la figure VII.5.

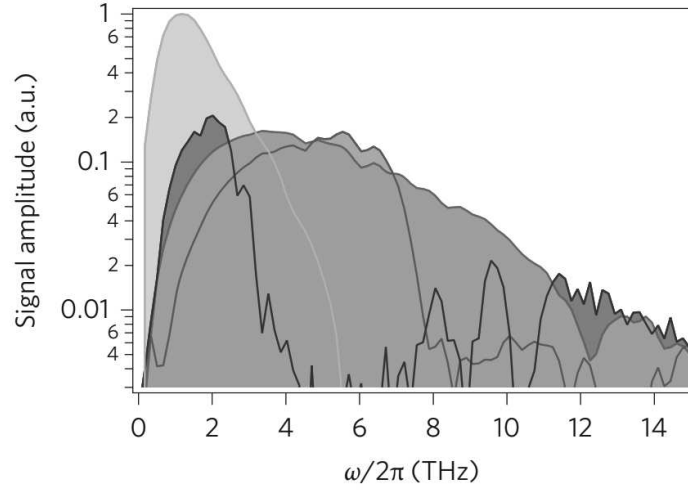


FIGURE VII.5 – Comparaison de l'amplitude de différents émetteurs THz. En bleu (vert) l'émission d'un cristal de ZnTe (GaP), en jaune un commutateur photoconducteur et en rouge un émetteur spintronique. Extrait de [98]

VII.3.2 Sources photoconductrices

Les sources photoconductrices sont aussi des émetteurs importants dans le paysage des THz. Historiquement, la première source de ce type a été développée en 1975 par David H. Auston [5]. Le système, présenté dans la figure VII.6, est composé d'une couche de silicium de haute impédance ($10^5 \Omega$) comprise entre une couche conductrice supérieure discontinue, connectant les bornes plus et moins du système, et la masse, comme présenté dans la figure VII.6. Deux excitations optiques sont utilisées pour diminuer la résistance de la couche semi-conductrice. La première, de longueur d'onde $0,53 \mu\text{m}$, excite la surface, connectant l'entrée et la sortie. La deuxième, de longueur d'onde $1,06 \mu\text{m}$, permet d'exciter l'échantillon sur toute son épaisseur, court-circuitant le système en connectant l'entrée et la masse, rouvrant ainsi l'interrupteur. Ceci permet de créer une impulsion carrée de courant avec un temps de montée caractéristique inférieur à $0,3 \text{ ns}$, temps de réponse de l'oscilloscope. Le travail a été poursuivi sur un système permettant la transmission de tensions plus importantes. [65]

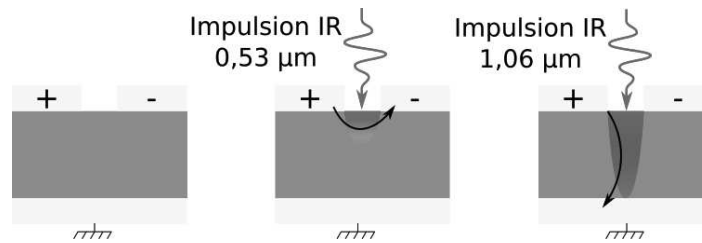


FIGURE VII.6 – Fonctionnement du photoswitch proposé par David H. Auston et son équipe en 1975 [5]. En jaune, les parties conductrices, en bleu le silicium à haute impédance. Les dégradés rouges montrent les zones devenues conductrices du silicium suite aux excitations optiques. La flèche noire présente le courant électrique.

Les temps caractéristiques de ces sources permettent l'émission d'ondes THz comme présenté dans [26]. Aujourd'hui, d'autres compositions de semi-conducteurs que le Si sont utilisées. Ainsi, le GaAs déposé par épitaxie à basse température s'est illustré pour ses propriétés, présentées dans [17]. La longueur d'onde de l'impulsion est de 800nm, mais il est possible de contrôler des structures de InGaAs avec une impulsion femtoseconde dont la longueur d'onde est $1,550\mu\text{m}$. Ceci a certains avantages, dont la facilitation de la mise en place de l'expérimentation. Une différence majeure avec les systèmes tout optique précédemment présentés est la caractéristique opto-électronique de ces systèmes. En effet, bien que le contrôle de l'émission se fasse par une excitation optique, une tension est appliquée à la structure, selon la géométrie présentée dans la figure VII.7. Enfin, ces systèmes peuvent faire partie d'un ensemble pour générer une émission ajustable. [108] On appelle généralement ces structures des "Switch d'Auston". Elles ont joué un rôle majeur dans le développement des technologies THz.

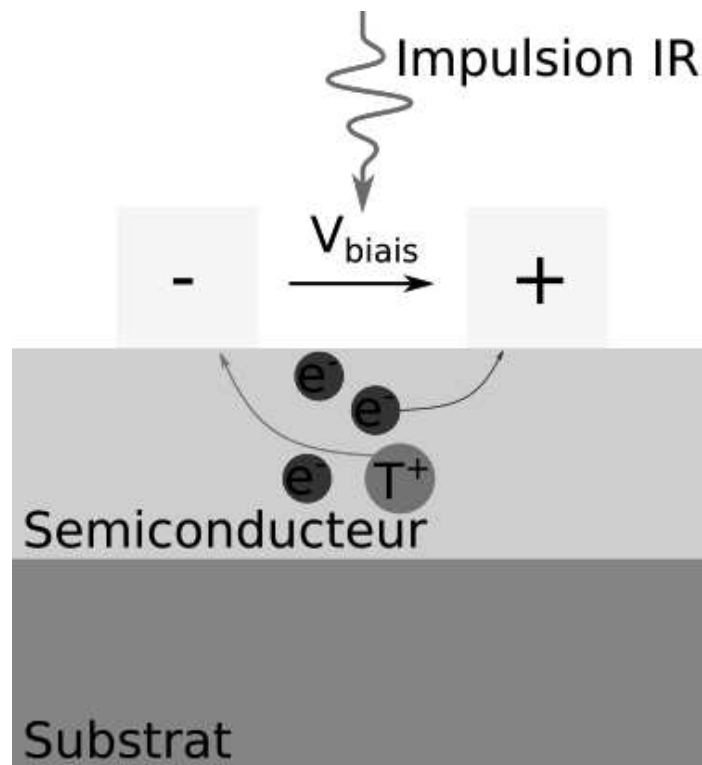


FIGURE VII.7 – Géométrie d'un photoswitch.

Modélisation d'une source photoconductrice.

Lorsque le matériau semi-conducteur est excité, des paires électron-trou sont créées. Ceci diminue la résistance de la couche semi-conductrice, la rendant conductrice. Les porteurs de charges sont accélérés sous l'effet de la tension appliquée aux électrodes. Le courant ainsi créé est à l'origine du champ électromagnétique émis dans l'espace libre grâce à une antenne. Il est possible de modéliser le système par le circuit équivalent suivant :

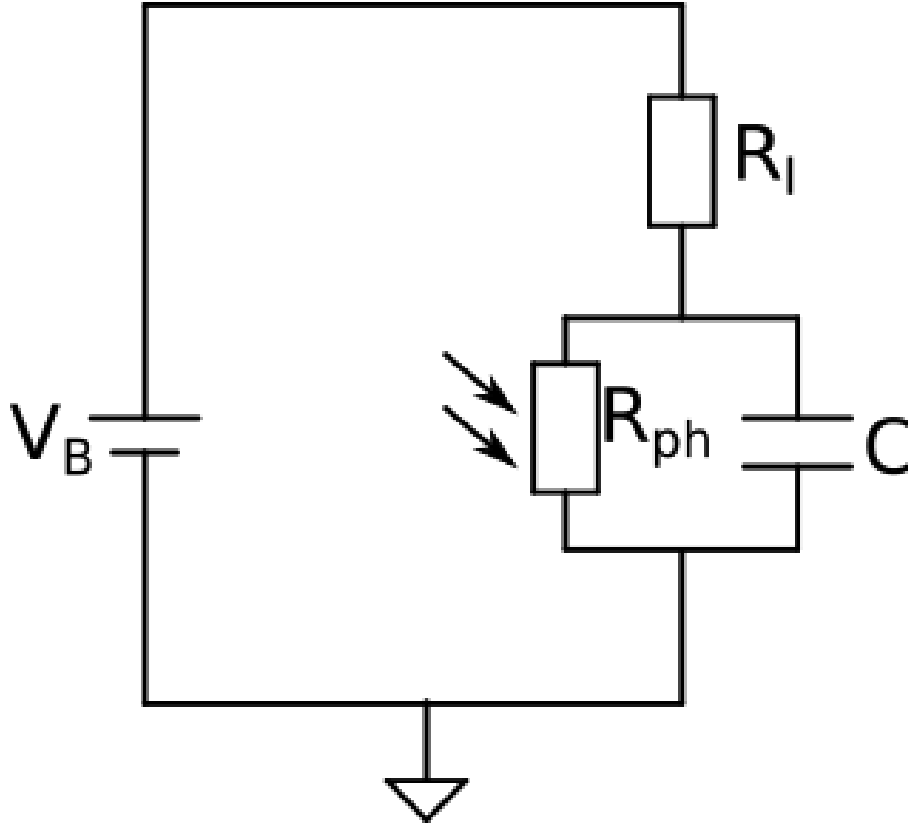


FIGURE VII.8 – Circuit électronique équivalent d'un photoswitch.

Dans la figure VII.8, V_b est la tension de biais, R_l la résistance du circuit, R_{ph} la résistance du semi conducteur, qui varie en fonction de l'excitation optique, et C la capacité du montage entre deux électrodes. Ce schéma permet d'expliciter la génération du courant transitoire décrit dans le premier paragraphe. Posons

$$j(t) = -e \times n(t) \times v(t) \quad , \quad (\text{VII.24})$$

Le courant composé des termes e , la charge élémentaire, n , la densité volumique de porteurs charges et v , la vitesse de ces porteurs. Les charges accélérées vont émettre un champ électrique dans la structure, puis dans l'espace libre dont certaines fréquences sont de l'ordre du THz. Cette variation de courant transitoire est générée par deux effets. Le premier est l'accélération des charges du milieu, et le deuxième est l'apparition de nouvelles charges à la suite de l'excitation optique. Il vient donc :

$$\frac{\partial J}{\partial t} = e \cdot n \cdot \frac{\partial v}{\partial t} + e \cdot v \cdot \frac{\partial n}{\partial t} \quad . \quad (\text{VII.25})$$

Pour la suite de la discussion, nous allons nous placer dans le cas du GaAs, déposé par épitaxie à basse température. Pour ce matériau particulier, le temps de vie des électrons est $\tau_e = 0,1$ ps et celui des trous $\tau_t = 0,4$ ps.

Posons τ_m , le temps de vie moyen d'un porteur de charge tel que :

$$\tau_m = \frac{\tau_e + \tau_t}{2} . \quad (\text{VII.26})$$

Notons que les temps de vie de porteurs de charges sont courts grâce à la capacité du matériau à piéger les porteurs de charges dans des niveaux d'énergie au milieu du gap. En effet, le temps caractéristique de recombinaison des paires électron-trou est beaucoup plus long.[85, 31] Notons que ce paramètre peut être modifié à la fabrication du matériau, en changeant les concentrations relatives d'arsenic et de gallium, en dopant le matériau ou en changeant la température de recuit. La densité de porteur de charge évolue selon l'équation suivante :

$$\frac{dn}{dt} = G(t) - \left(\frac{n(t)}{\tau_e}\right) . \quad (\text{VII.27})$$

Le terme $\frac{n(t)}{\tau_e}$ correspond à la déplétion spontanée de ces porteurs tandis que $G(t)$ est le taux de génération de porteurs de charges par excitation optique. Étant donné que l'excitation est de type gaussienne, $G(t)$ prend la forme suivante :

$$G(t) = n_0 \cdot \exp\left(-\left(\frac{t}{\tau_P}\right)^2\right) . \quad (\text{VII.28})$$

n_0 est le nombre de porteurs libres généré à l'instant $t=0$ et τ_P est la largeur temporelle de l'impulsion excitatrice. Celle-ci varie généralement entre 20 et 200 fs. Constatons que si le comportement du système dépend de paramètres relatifs à sa conception au travers de τ_m , il reste cependant modulable, au travers de la durée d'impulsion de l'excitation optique.

Explicitons maintenant le terme relatif à la variation de vitesse. Celui-ci se compose d'un terme de frottement, issu du modèle de Drude, qui est le rapport entre la vitesse des porteurs de charge et τ_{rel} . Cette variable est le temps caractéristique de relaxation du moment. Dans le GaAs, celui-ci est égal à 30 fs. La variation de la vitesse dépend aussi du champ électrique local E_{loc} . Pour le relier à la vitesse, il est nécessaire de prendre en compte la charge $q_{e/t}$ et la masse effective $m_{eff\ e/t}$ du porteur auquel est appliqué ce champ local. Notons que celui-ci diffère du champ électrique global à cause d'effet d'écrantage des électrons. On obtient ainsi l'équation suivante :

$$\frac{dv_{e,h}}{dt} = -\frac{v_{e,h}}{\tau_{rel}} + \frac{q_{e,h} \cdot E_{loc}}{m_{eff\ e/t}} . \quad (\text{VII.29})$$

Rappelons que dans le cas présent, l'émission d'ondes THz est proportionnelle à la variation de courant. On a donc :

$$E_{THz} \propto \frac{dJ}{dt} , \quad (\text{VII.30})$$

en injectant VII.27 ,VII.28 et VII.29 dans VII.25 on obtient l'expression suivante pour le champ électrique THz émis :

$$E_{THz} \propto e \cdot n \cdot \left(-\frac{v_{e,t}}{\tau_{rel}} + \frac{q_{e,t} \cdot E_{loc}}{m_{eff\ e,t}} \right) + e \cdot v \cdot \left(n_0 \cdot \exp\left(\left(\frac{t}{\Delta T}\right)^2\right) - \left(\frac{n(t)}{\tau_e}\right) \right) . \quad (VII.31)$$

Ce modèle a été confirmé par des simulations, réalisées par Piao et son équipe.[85] L'émission d'onde THz a été modélisée en fonction d'une excitation optique incidente et en fonction des caractéristiques du matériau. Les paramètres importants du semi-conducteur sont : sa capacité à générer des porteurs de charges, leur temps de vie caractéristique, la masse des porteurs et le temps caractéristique de relaxation de la vitesse. L'impact de la pompe est constaté au travers de la durée d'impulsion.

VII.3.3 Emetteur spintronique

Principe général

L'émetteur spintronique est le type d'émetteur sur lequel l'équipe que j'ai intégrée a travaillé. Nous allons expliquer son fonctionnement, décrit par T.Seifert et ses collaborateurs[98]. L'article décrit la structure qui est composée d'une couche métallique ferromagnétique (FM) et d'au moins une couche métallique non-magnétique (NM). Cette multi-couche est excitée par une impulsion pompe infra-rouge de longueur d'onde 800nm. L'énergie est majoritairement absorbée par les nuages électroniques des deux couches résultant en deux distributions électroniques différentes. Un courant d'électrons chauds polarisés en spin va alors se former de la couche FM à la couche NM. [114] La polarisation en spin du courant d'électrons chauds est justifiée par la population électronique de la couche FM. En effet, celle-ci présente une majorité de spin orienté dans une direction expliquant son caractère magnétique. Les mécanismes à l'origine de ce transport sont partiellement décrits dans les parties I.1.1 et IV.3. En effet, la population d'électrons de l'orbitale 3d du cobalt est excitée vers les couches de conduction sp. Le phénomène est similaire à celui présenté dans la figure I.1. Il est cependant nécessaire de présenter un modèle plus fin, afin d'expliquer la polarisation du courant d'électrons chauds, dès sa génération, comme présenté sur la figure suivante :

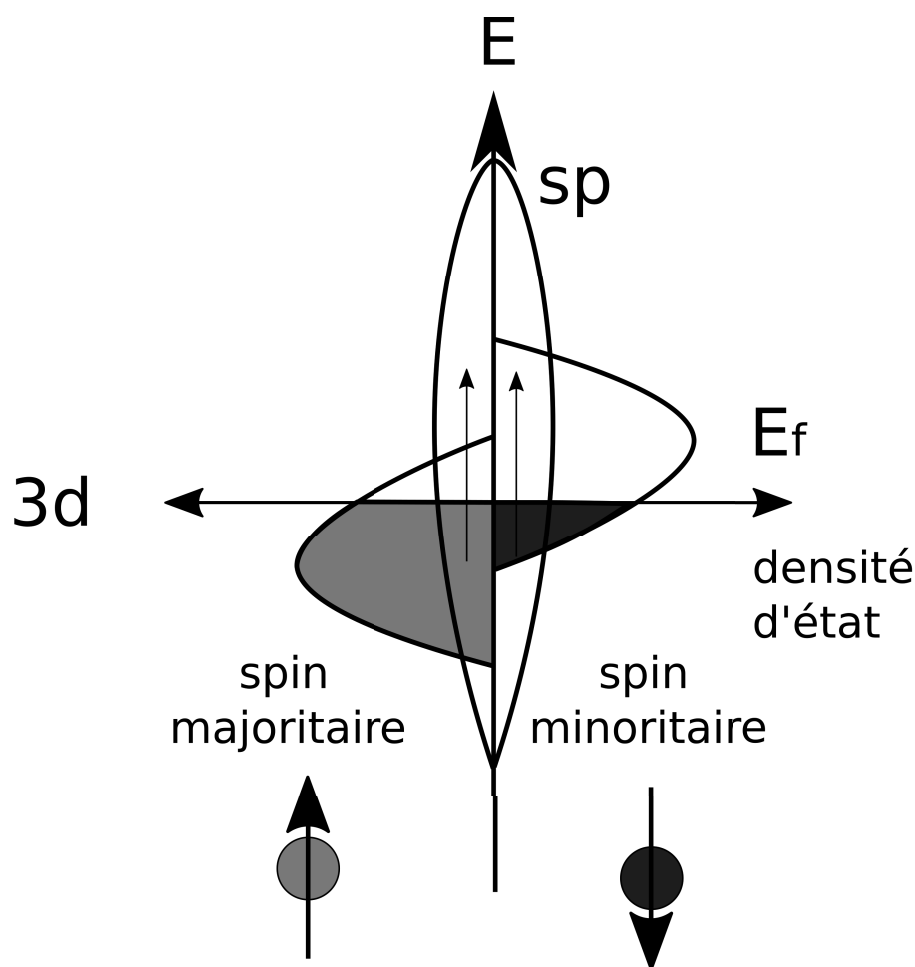


FIGURE VII.9 – Mécanisme à l'origine de la génération de courant de spin dans l'émetteur spintronique

En se diffusant dans la deuxième couche métallique, choisie pour avoir un couplage spin-orbite important (métal lourd), les électrons sont défléchis en fonction de leur spin. Le courant de spin est partiellement converti en courant de charge, dont la direction est perpendiculaire à celle du courant de spin et à l'aimantation du système. L'amplitude de cette déflexion, et donc de la conversion, dépend du matériau et est appelée angle Hall de spin. Ce phénomène est appelé effet Hall de spin inverse (inverse spin Hall effect, ISHE) [103]. Ce courant de charge est ensuite à l'origine de l'émission d'un champ électrique en espace libre.

L'émission optimale est observée pour des multicouches mesurant quelques nanomètres d'épaisseur.

Description mathématique

Il est intéressant à ce stade de comparer le comportement de l'émetteur spintronique à celui des émetteurs que nous avons précédemment présentés. Excités par les mêmes impulsions optiques, les mécanismes à l'origine

de la génération des ondes THz sont cependant différents, comme le paragraphe précédent le présente. Nous allons ici proposer un modèle mathématique simple explicitant l'émission d'ondes THz dans une bicouche composée d'une couche ferromagnétique et d'une couche non-magnétique ayant un grand effet Hall de spin, présentée dans la figure VII.10.

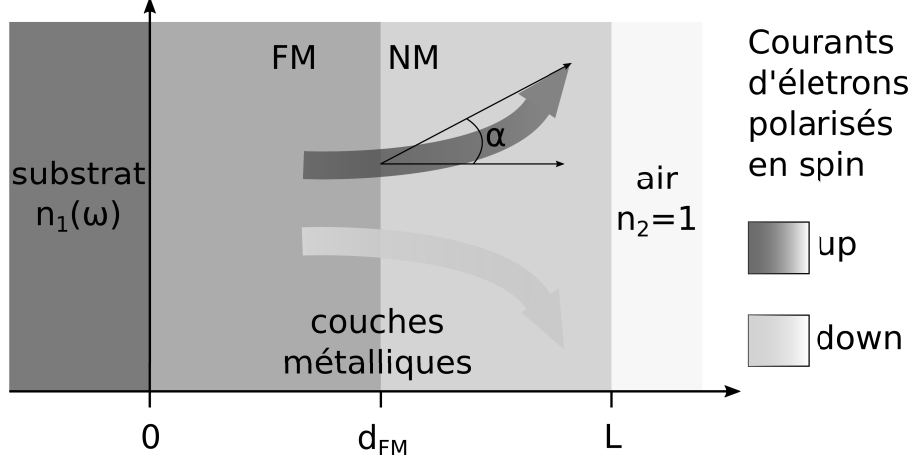


FIGURE VII.10 – Géométrie utilisée pour décrire l'émission de l'émetteur spintronique. On voit ainsi les courants de spin défléchis par l'effet Hall de spin ainsi que l'atténuation du courant d'électrons chauds. α est l'angle Hall de spin de la couche non magnétique.

Commençons par écrire l'équation d'onde du champ électrique dans un matériau conducteur, dérivée des équations de Maxwell, décrit dans [71]. Pour la suite, et comme présenté dans VII.10 nous supposons que la propagation de l'onde excitatrice est unidirectionnelle selon l'axe z . Ceci se vérifie généralement de façon expérimentale. En effet, les dimensions latérales en jeu (diamètre de la pompe optique, extension latérale de l'émetteur) sont généralement bien supérieures aux épaisseurs des couches. Nous constatons que cette approximation se justifie par la suite pour la plupart des cas expérimentaux. On obtient ainsi :

$$\Delta E(z, t) - \mu \cdot \epsilon \cdot \frac{\partial^2 E(z, t)}{\partial t^2} = \mu \cdot \frac{\partial J(z, t)}{\partial t} . \quad (\text{VII.32})$$

Constatons que si les membres de gauche sont identiques à ceux de l'équation VII.14 (si l'on suppose que le champ électrique prend la forme d'une onde harmonique), le terme source, à droite, est différent. En effet, l'équation VII.14 décrit la propagation de l'onde dans un milieu diélectrique, et le terme source est donc la polarisation de celui-ci, tandis que l'équation VII.32 décrit la propagation de l'onde dans un milieu conducteur : le terme source est le courant électrique.

À ce stade, il est nécessaire de détailler le terme de courant. Celui-ci comporte bien sûr le courant de charge j_c issu de la conversion du courant de spin par effet Hall de spin. Il inclut également la réponse du matériau

au champ électrique porté par l'onde THz. Selon la loi d'Ohm, ce dernier terme fait intervenir la conductivité σ . On obtient ainsi le terme de courant suivant :

$$J = j_c + \sigma E \quad . \quad (\text{VII.33})$$

L'équation VII.32 peut être simplifiée en passant dans le domaine fréquentiel. Afin de continuer la simplification, notons que $\mu \cdot \epsilon = \frac{1}{v^2}$ et $Z_0 = \mu_0 \cdot c$. Détaillons maintenant la simplification du deuxième terme à gauche de l'égalité.

$$TF[-\mu \cdot \epsilon \cdot \frac{\partial^2 E(z, t)}{\partial t^2}] = \frac{(n \cdot \omega)^2}{c^2} E(z, \omega) \quad . \quad (\text{VII.34})$$

De la même façon, le membre de droite de l'équation VII.32 devient :

$$TF[\mu \frac{\partial J(z, t)}{\partial t}] = \frac{Z_0}{c} (i \cdot \omega \cdot j_c(z, \omega) + \sigma \cdot i \cdot \omega \cdot E(z, \omega)) \quad . \quad (\text{VII.35})$$

Il devient alors possible de regrouper les termes relatifs au champ électrique à gauche de l'égalité. Dans un souci de simplification, posons tout d'abord :

$$k_0^2 = \frac{(n \cdot \omega)^2}{c^2} \quad \text{et} \quad \Delta(k^2) = \frac{i \cdot Z_0 \cdot \sigma \cdot \omega}{c} \quad . \quad (\text{VII.36})$$

Le terme k_0 est issu de la dispersion dans le milieu sans l'effet du film métallique. Celui-ci est, en effet, contenu dans le terme $\Delta(k^2)$. Regroupons enfin ces termes de vecteurs d'onde de la façon suivante : $k(z, \omega)^2 = k_0^2 + \Delta(k^2)$. Ces simplifications permettent d'obtenir la transformée de Fourier de VII.32 simplifiée.

$$[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2(z, \omega)] E(z, \omega) = \frac{Z_0 \cdot \omega}{i \cdot c} \cdot j_c(z, \omega) \quad . \quad (\text{VII.37})$$

Remarquons la similarité entre les équations VII.37 et VII.20. Toutes les deux présentent ainsi une équation d'onde, obtenue grâce aux équations de Maxwell, avec un terme source. Celui-ci est cependant différent dans les deux cas. Dans VII.20, nous avons directement l'effet de l'impulsion optique excitant le système, alors que dans VII.37, l'excitation est relative au courant de charge. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, ce courant de charge est bien sûr le résultat de l'excitation optique, mais le lien n'est pas encore explicité par le modèle.

Dans un premier temps, abrégeons le terme excitateur tel que :

$$\frac{Z_0 \cdot \omega}{i \cdot c} \cdot j_c(z, \omega) = Q(z) \quad . \quad (\text{VII.38})$$

On peut ensuite réécrire l'équation VII.37 sous la forme d'une intégrale.

$$E(z) = \int [Q(z') - \Delta(k^2)(z') E(z')] G_0(z, z') dz' \quad . \quad (\text{VII.39})$$

$G_0(z, z')$ est la fonction de Green du système dans le cas où il n'y a pas de film métallique c'est-à-dire dans le cas où $k=k_0$. Lorsque le z et z' sont tous deux strictement supérieurs à zéro, on peut expliciter $G_0(z, z')$ tel que :

$$G_0(z, z') = \frac{e^{i \cdot k_2 \cdot |z-z'|}}{2 \cdot i \cdot k_2} \cdot (1 + r_{21} \cdot e^{2 \cdot i \cdot k_2 \cdot |z|}) . \quad (\text{VII.40})$$

On pose $r_{21} = (n_2 - n_1)/(n_2 + n_1)$, ce qui traduit la réflexion de l'onde entre l'air et le substrat, à $z=0$.

Constatons à ce stade que l'épaisseur de la bicouche métallique est faible comparée à la longueur d'onde excitatrice et à la longueur caractéristique d'atténuation de l'onde THz dans le substrat. On peut donc supposer que E et G_0 ne varient pas en fonction de z . Ceci permet d'ailleurs de simplifier $G_0 = (c/i \cdot \omega)/(n_1 + n_2)$ et on peut donc sortir les deux termes de l'intégrale dans VII.39. En posant $j_c = e\gamma j_s$, il vient

$$E(\omega) = Z(\omega) \cdot e \cdot \int_0^L \gamma(z) j_s(z, \omega) dz , \quad (\text{VII.41})$$

avec

$$\frac{1}{Z(\omega)} = \frac{n_1(\omega) + n_2(\omega)}{Z_0} + \int_0^L \sigma(z, \omega) . \quad (\text{VII.42})$$

On obtient ainsi une équation décrivant le champ électrique en fonction de l'épaisseur totale $L = d_{FM} + d_{NM}$ de la couche métallique et de son efficacité $\gamma(z)$ à convertir le courant de spin j_s en courant de charge.

Il reste maintenant à expliciter le terme $j_s(z, \omega)$ décrivant le courant de spin issu de l'excitation optique de la couche magnétique. Pour cela, on supposera que l'effet Hall de spin inverse n'a lieu que dans la couche non-magnétique. On supposera la propagation des électrons comme étant balistique dans cette deuxième couche. Lorsqu'un électron subit un phénomène de diffusion, la direction de sa vitesse devient aléatoire et l'on suppose donc que sa contribution à la génération d'un courant de charge devient négligeable. On suppose donc que la densité d'électrons chauds dans la couche NM est proportionnelle à l'expression suivante :

$$n_{hot} \propto e^{-\frac{(z-d_{FM})}{\lambda_{rel}}} . \quad (\text{VII.43})$$

Ici λ_{rel} est la longueur caractéristique de relaxation de la vitesse des électrons chauds. Une dernière hypothèse est que les électrons sont parfaitement réfléchis à l'interface FM/substrat. Comme présenté dans la référence [104], les précédentes hypothèses permettent de déterminer la dépendance spatiale de la densité de courant balistique de spin au sein de la couche NM, comprise entre les limites d_{FM} et L :

$$j_s(z) = j_s(d_{FM}) \cdot \frac{\sinh(d_{FM} - z)/\lambda_{rel}}{\sinh(d_{NM})/\lambda_{rel}} , \quad (\text{VII.44})$$

$j_s(d_{FM})$ est la densité de courant de spin à l'interface entre couches FM et NM. Ce terme ne dépend pas de z , et on peut donc le sortir de l'intégrale de l'équation VII.41. Les résultats empiriques présentés dans la référence [98] montrent que ce terme est proportionnel à la fluence du laser. On pose alors $j_s(d_{FM}) \propto \frac{F}{L}$. En injectant l'équation VII.44 et VII.42 dans VII.41 on obtient l'expression de l'amplitude de l'onde THz générée en fonction de différents paramètres.

$$E(d) \propto \gamma_{NM} \cdot \lambda_{rel} \cdot \frac{F}{L} \cdot \frac{\tanh(\frac{d_{NM}}{2 \cdot \lambda_{rel}})}{n_1 + n_2 + Z_0 \cdot \int_0^L \sigma(z) dz} \quad . \quad (\text{VII.45})$$

Ici λ_{rel} est le seul paramètre ajustable non directement vérifiable. Toujours selon [98], les meilleurs résultats sont obtenus lorsque ce paramètre est fixé à 1nm. La modélisation reste pertinente pour des épaisseurs totales de la couche métallique supérieures à 4nm. En dessous de cette valeur, les propriétés magnétiques et de transport de la bi-couche changent et les résultats s'écartent de ceux prédits par le modèle. Remarquons que, comme pour le cas du photo-switch et de la rectification optique, la réponse dépend de l'amplitude de l'impulsion excitatrice. Cependant, le modèle n'est pas assez précis pour donner la forme de la réponse. L'équation nous permet néanmoins d'isoler les paramètres importants de l'émetteur, comme pour les deux autres modélisations.

La réponse fréquentielle de l'émetteur spintronique n'étant pas donnée par l'expression littérale isolée présentée en VII.45, il est nécessaire de se référer aux résultats expérimentaux. Comme présentés sur la figure VII.5 ceux-ci sont extrêmement encourageants pour cette gamme d'émetteurs, puisque le spectre de la réponse est large et dépasse celle des autres émetteurs présentés précédemment. Notons enfin que l'émetteur spintronique peut encore bénéficier de nombreuses études afin d'améliorer son émission. Des optimisations ont déjà été proposées par Seifert et son équipe dans [98], et présentées dans VII.11, mais d'autres études sur différents matériaux magnétiques bénéficient à l'étude du système. Ceci est présenté dans un autre article de Seifert, plus récent : [99]. Ainsi, des champs magnétiques exotiques ont été testés pour contrôler la polarisation de l'émission, tandis que des matériaux topologiques et des structures composées de plusieurs couches d'émetteurs usuels ont été proposées pour améliorer l'émission.

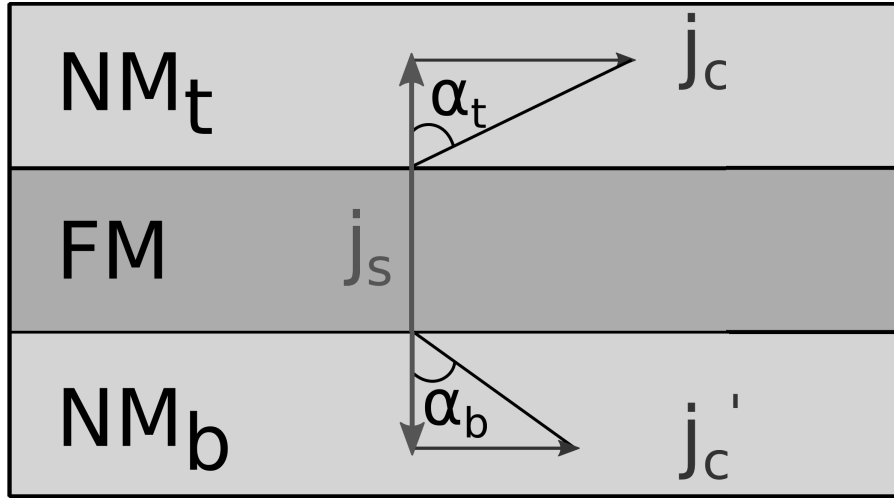


FIGURE VII.11 – Géométrie générale de l'émetteur spintronique et présentation du principe de l'ISHE pour deux matériaux non magnétiques d'angle Hall de spin d'amplitudes différentes et de direction opposée. α est l'angle Hall de spin, $NM_{t/b}$ les couches non magnétiques, et FM la couche magnétique

Il existe de nombreuses pistes pour améliorer l'émission en espace libre. Ainsi, une optimisation des matériaux de l'émetteur a été réalisée dans [27] afin de maximiser l'amplitude d'émission. La bi-couche peut également être améliorée en rajoutant une troisième couche métallique, dont l'angle Hall de spin est opposé au premier, permettant d'augmenter le courant. Ainsi la tri-couche présentée dans l'article a la forme représentée dans la figure VII.11. L'emploi d'une antenne et d'une lentille de silicium a également été proposé, par U.Nandi et son équipe [76] et présenté dans la figure VII.12. L'émetteur que j'ai utilisé est très similaire à celui utilisé par U.Nandi et son équipe. Cependant, afin d'améliorer le signal, ceux-ci se sont concentrés sur l'adaptation du substrat, les recherches sur les géométries d'antenne n'étant pas une priorité. À l'opposé, la piste principale que nous avons étudiée a été d'adapter des géométries d'antennes usuelles à l'émetteur THz.

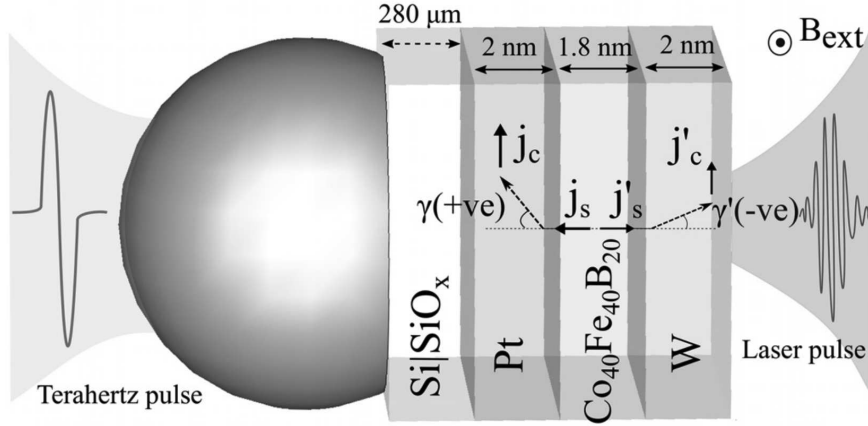


FIGURE VII.12 – Géométrie générale de l'émetteur spintronique, du substrat et de la lentille de Si utilisés par Nandi et son équipe. Le schéma est issu de l'article [76].

VII.4 Antennes électromagnétiques

Une antenne est un dispositif permettant de rayonner ou de capter des ondes électromagnétiques dans l'espace. [4] Proposer une modélisation pour l'émission d'une telle structure est un problème classique [15], mais dont l'importance a grandi avec l'essor des technologies de télécommunication. Historiquement, la première géométrie d'antenne décrite est la géométrie dipolaire, utilisée en 1888 par Heinrich Hertz.

Dans cette partie, nous allons nous intéresser à la modélisation de l'antenne dipôle. L'objectif de cette partie est d'introduire une méthode permettant de proposer une expression du champ lointain émis par la géométrie tout en soulignant la difficulté à le faire, même pour une géométrie simple. Nous noterons enfin qu'il n'existe pas de solution littérale pour des géométries plus complexes, en particulier pour les géométries à large bande décrites à la fin de cette section, ce qui explique notre recours systématique aux simulations.

VII.4.1 Fréquence d'émission d'une antenne dipôle

Le courant transmis dans une antenne dipôle se comporte comme une onde stationnaire. Pour le démontrer, on le présente sous la forme d'une fonction dépendante de la position, selon z , et du temps. Cette fonction subit une décomposition en série de Fourier [100] et on peut ainsi écrire :

$$I(t) = \sum_{j=-\infty}^{+\infty} I_j \times e^{ijw(t - \frac{z}{v})} , \quad (\text{VII.46})$$

avec I_j les coefficients complexes et constants et v la vitesse de l'onde électromagnétique dans le milieu qui supporte l'antenne.

En isolant la dépendance temporelle et en développant l'exponentielle complexe, l'équation VII.46 peut alors être écrite de la façon suivante :

$$I(t) = \sum_{i=-\infty}^{+\infty} \mathbf{I}_{aj}(t) \times \cos(-jw \frac{z}{v}) + \mathbf{I}_{bj}(t) \times \sin(-jw \frac{z}{v}) \quad (\text{VII.47})$$

L'émetteur impose une condition limite dans la mesure où il représente un ventre d'émission. Il vient que $\mathbf{I}_{bi} = 0 \forall j$. Enfin, comme présenté dans le schéma VII.13, le courant est nul pour $z = \pm \frac{L}{2}$. En effet, il s'agit de la limite de l'antenne. Ainsi,

$$\cos(-jw \frac{L}{2 \times v}) = 0 \quad . \quad (\text{VII.48})$$

Il vient donc :

$$L = \frac{2j+1}{2} \lambda, j \in \mathbb{N} \quad (\text{VII.49})$$

où $\lambda = 2\pi c/\omega$.

On obtient donc un lien entre la longueur de l'antenne et la longueur d'onde d'émission.

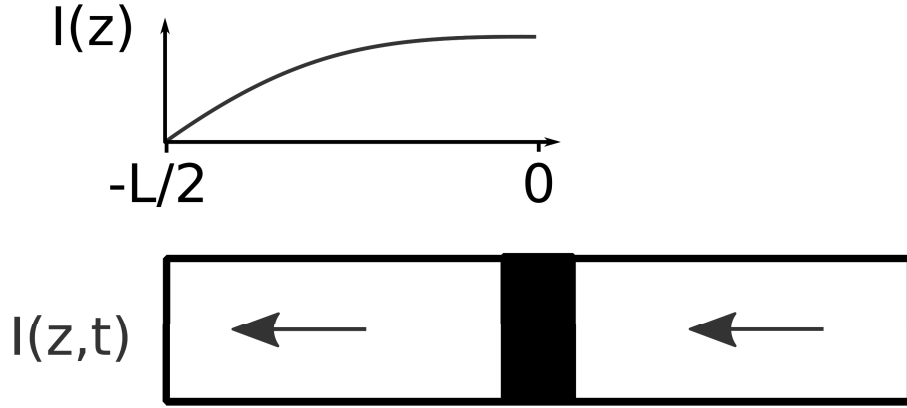


FIGURE VII.13 – Schéma du courant dans une antenne dipôle.

À l'ordre zéro, c'est-à-dire $n=0$, on obtient ainsi $L = \frac{\lambda}{2}$: l'antenne est donc une antenne demi-onde et sa longueur est directement proportionnelle à la longueur d'onde que cette antenne peut émettre.

Nous allons maintenant nous intéresser au champ lointain émis par une antenne dipôle. Le champ d'émission d'une telle antenne a été décrit par Arnold Sommerfeld dans [107] en termes de champs électromagnétiques proches et lointains. Le champ lointain est rappelé dans [18], selon la géométrie présentée dans la figure VII.14.

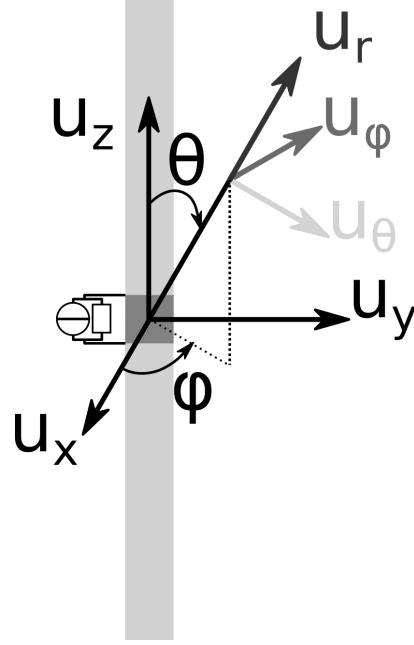


FIGURE VII.14 – Géométrie utilisée dans la modélisation d’une antenne dipôle.

Les équations des champs électriques et magnétiques sont les suivantes :

$$\vec{E}_\theta = \frac{k_0^3 p}{4\pi\epsilon_0} \sin(\theta) \frac{e^{in_i R'}}{R'} , \quad (\text{VII.50})$$

$$\vec{H}_\psi = \frac{k_0^3 n_i p}{4\pi Z_0 \epsilon_0} \sin(\theta) \frac{e^{in_i R'}}{R'} , \quad (\text{VII.51})$$

avec $k_0^2 = \omega^2 \mu_0 \epsilon_0$, $\kappa_i = n_i^2 = \frac{\epsilon_i}{\epsilon_0}$ et $Z_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}$

Application à l’émetteur spintronique

Dans le cas d’un émetteur spintronique, fabriqué par dépôt métallique sur un substrat, l’antenne a, par commodité et par souci d’efficacité, une structure coplanaire. Il faut donc s’intéresser à l’émission d’un émetteur dipolaire, posé sur un substrat d’un matériau diélectrique, à l’horizontale. Le traitement analytique de l’émission électromagnétique issue d’une antenne dipolaire est un problème rendu ardu par l’asymétrie relative à la présence d’un substrat. S.R.J. Brueck a néanmoins proposé une solution générale, en ce sens que le cas qui nous occupe est une déclinaison particulière de sa solution. En effet, cet article présente le champ émis par un dipôle d’orientation arbitraire et de position arbitraire dans une couche de diélectrique. Nous présenterons les résultats proposés par S.R.J Brueck, en soulignant les impacts de la géométrie d’intérêt sur la solution générale proposée par les équations VII.50 et VII.51

Introduisons la modélisation du problème qui nous occupe : celle-ci est présentée sur le schéma VII.15.

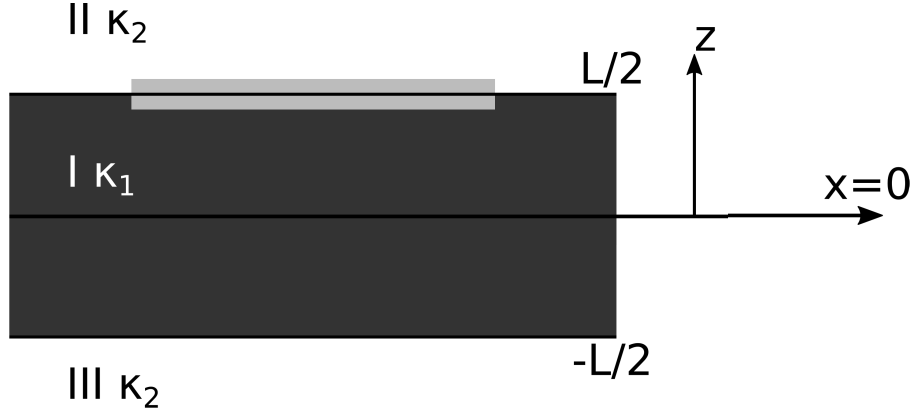


FIGURE VII.15 – Modèle du problème, l'antenne dipôle, en jaune est placée en $L/2$ et est considérée comme infiniment mince. Le substrat d'épaisseur L a une constante diélectrique relative κ_1 , tandis que le milieu extérieur a une constante κ_2 . Le matériau est infini dans le plan (xy) . La verticale désigne la direction portée par le vecteur $\vec{u}_z$ et l'horizontale celle portée par le vecteur $\vec{u}_x$.

Il est également nécessaire d'introduire un certain nombre de variables avant de présenter l'expression des champs. Ainsi :

$$k_0^2 = \omega^2 \mu_0 \epsilon_0 \quad , \quad (\text{VII.52})$$

$$\kappa_i = n_i^2 = \frac{\epsilon_i}{\epsilon_0} \quad , \quad (\text{VII.53})$$

$$\eta_i = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_i}} \quad , \quad (\text{VII.54})$$

$$\gamma_i = \sqrt{\lambda^2 - \kappa_i} \xrightarrow{\lambda \rightarrow 0} -i\eta_i \quad , \quad (\text{VII.55})$$

$$\tilde{R} = k_0 \times r \quad , \quad (\text{VII.56})$$

tel que μ_0 et ϵ_0 sont respectivement la perméabilité et la permittivité du vide, ϵ_i la permittivité du matériau et r une variable de distance. Ainsi $\tilde{R}$ est une grandeur sans dimension, distance sans dimension mise à l'échelle de la longueur d'onde en espace libre. Notons également $\mathbf{a}$, la localisation de l'antenne par rapport au centre de la couche diélectrique et $\tilde{a} = k_0 \times a$. Définissons également R_p , la réflectivité du champ magnétique, pour une onde polarisée de façon transverse (TM) et passant de la région I à la région II de la façon suivante :

$$R_p = \frac{1 - \alpha}{1 + \alpha}, \quad \alpha = \frac{\kappa_1 \gamma_2}{\kappa_2 \gamma_1} \quad , \quad (\text{VII.57})$$

ainsi que R_s la réflectivité du champ électrique pour une onde polarisée de façon transverse (TE) à la limite de la zone I à la zone II.

$$R_s = \frac{1 - \beta}{1 + \beta}, \alpha = \frac{\gamma_2}{\gamma_1} . \quad (\text{VII.58})$$

Notons également :

$$\begin{aligned} m &= n_2/n_1 \\ \cos(\nu) &= \sqrt{1 - m^2 \sin^2(\theta)} \\ R_{s0} &= \frac{\cos(\nu) - m \cos(\theta)}{\cos(\nu) + m \cos(\theta)} \\ R_{p0} &= \frac{m \cos(\nu) - \cos(\theta)}{m \cos(\nu) + \cos(\theta)} \end{aligned} \quad (\text{VII.59})$$

ν est l'angle intérieur dans le substrat et R_{p0} est la réflectivité du champ magnétique de l'angle dépendante.

Introduisons enfin F_x^H et F_z^H tel que :

$$F_x^H = k_0 e^{i(n_1 \cos(\nu) - n_2 \cos(\theta))\tilde{L}/2} \times \frac{(1 - R_{s0})[e^{-in_1 \tilde{a} \cos(\nu)} + R_{s0} e^{in_1(\tilde{L} + \tilde{a}) \cos(\nu)}]}{1 - R_{s0}^2 e^{2in_1 \tilde{L} \cos(\nu)}} . \quad (\text{VII.60})$$

$$\begin{aligned} F_z^H &= \frac{e^{i(n_1 \cos(\nu) - n_2 \cos(\theta))\tilde{L}/2} (1 - R_{s0})(\kappa_1 - \kappa_2)}{(1 - R_{p0}^2 e^{2in_1 \tilde{L} \cos(\nu)})(1 - R_{s0}^2 e^{2in_1 \tilde{L} \cos(\nu)})(\kappa_2 n_1 \cos(\nu) + \kappa_1 n_2 \cos(\theta))} \\ &\times e^{-in_1 \tilde{a} \cos(\nu)[1 + (-R_{s0} + R_{p0} - R_{s0} R_{p0} e^{2in_1 \tilde{L} \cos(\nu)})]} \times e^{in_1 \tilde{a} \cos(\nu)[-1 + R_{s0} - R_{p0} + R_{s0} R_{p0} e^{2in_1 \tilde{L} \cos(\nu)}]} . \end{aligned} \quad (\text{VII.61})$$

Les champs électrique $\vec{E}$, magnétique $\vec{H}$ ont alors les expressions suivantes :

$$\vec{E} = \frac{k_0^2 e^{in_1 \tilde{R}}}{\tilde{R}} \times [F_x^H \sin(\Phi \tilde{e}_\Phi) + (F_x^H \cos(\theta) - F_z^H \sin^2(\theta)) \cos(\Phi) \tilde{e}_\theta] , \quad (\text{VII.62})$$

$$\vec{H} = \frac{k_0^2 k_2 e^{in_1 \tilde{R}}}{\eta_0 \tilde{R}} \times [F_x^H \cos(\theta) - (F_z^H \sin^2(\theta)) \cos(\Phi) \tilde{e}_\Phi - F_x^H \sin(\Phi) \tilde{e}_\theta] . \quad (\text{VII.63})$$

Ces formules mettent en avant l'impact des interfaces, au travers des termes R_p et R_s , déformant les champs, et au travers des dénominateurs de F_x^H et F_z^H , témoignant d'effets de réflexions multiples dans l'épaisseur du substrat (résonance de type Fabry-Pérot). On obtient ainsi le champ électromagnétique émis par une antenne dipolaire. Cependant, l'article montre aussi les limites d'une analyse littérale, seule une forme simple a pu être étudiée ici.

VII.4.2 Antennes large-bande

Deux autres géométries d'antennes ont été étudiées pour équiper l'émetteur spintronique : des géométries noeud papillon et spirales, présentées en figure VII.16.

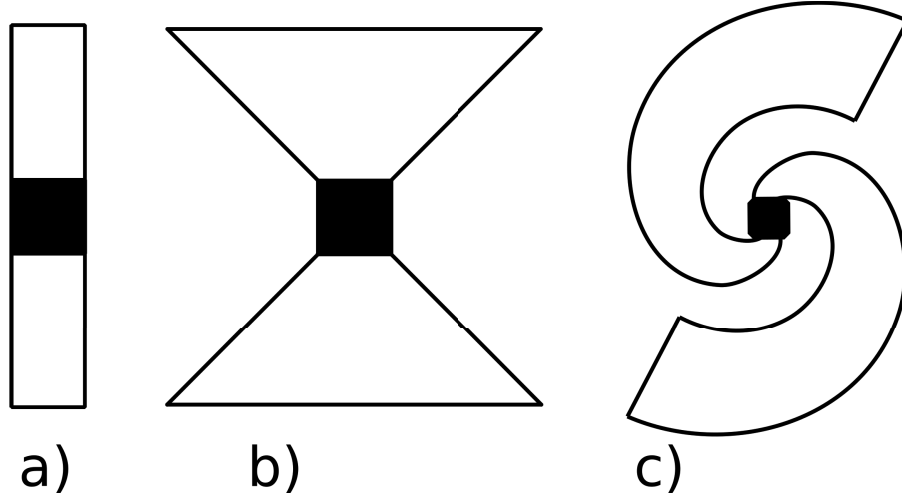


FIGURE VII.16 – Silhouettes des formes théoriques des antennes avec en noir l'émetteur spintronique. a) antenne dipôle, b) antenne bow-tie, c) antenne spirale

Pour ces géométries, selon [62], p696, il n'y a pas de fréquence de résonance. Ceci est dû à deux facteurs. Tout d'abord, ces géométries sont auto-complémentaires, c'est-à-dire que la structure complémentaire (la zone où l'antenne est absente) est identique, jusqu'à une certaine distance, à la structure de l'antenne. Ceci est particulièrement visible sur la figure VII.16 b. Ensuite, ces géométries ont également une caractéristique d'auto similarité. Par exemple, pour une géométrie bow-tie infinie et avec un émetteur infiniment petit, la géométrie ne change pas avec l'échelle. Il en va de même avec une géométrie spirale.

La géométrie théorique bow-tie est définie de façon directe : les côtés reliant l'émetteur aux extrémités sont des lignes à 45 degrés d'un axe central. Il est cependant nécessaire de définir l'équation des courbes définissant l'antenne spirale. Il existe un certain nombre de spirales différentes [84], telles que la spirale d'Archimède, la spirale hyperbolique ou toute spirale algébrique telle que son équation polaire est du type $\rho = f(\theta)$ avec f une fonction monotone. Pour les spirales logarithmiques l'équation de l'un de ses bras est : $r = a \times b^\theta$, ce qui donne dans un référentiel cartésien :

$$\begin{aligned}x &= a \times b^\theta \cos(\theta) \\y &= a \times b^\theta \sin(\theta)\end{aligned}\tag{VII.64}$$

Cette dernière équation sera particulièrement utile pour la réalisation des antennes.

Conclusion

Les ondes THz ont un nombre important d'applications, tant dans le domaine de la spectroscopie que de la télécommunication. Mon travail se focalise sur l'amélioration de l'émission, grâce à l'adaptation de géométries d'antennes usuelles, d'un émetteur particulier : l'émetteur spintronique, utilisant un courant d'électrons chauds polarisés en spin afin d'émettre dans l'espace.

Dans cette partie, nous avons donc présenté une introduction à la physique des ondes THz. Nous nous sommes ainsi intéressés à trois générateurs, deux importants dans le domaine (le cristal de ZnTe et le photswitch d'Auston), et celui sur lequel j'ai travaillé. Une modélisation mathématique a été proposée dans chaque cas.

J'ai également introduit la physique des antennes électromagnétiques fonctionnant dans le domaine d'intérêt, et montré que les modèles mathématiques étaient difficiles à obtenir, justifiant ainsi la modélisation informatique. Dans le chapitre suivant, nous allons étudier les méthodes des trois pans de mon travail, à savoir la modélisation des géométries d'antenne, leur réalisation et leur caractérisation.

Chapitre VIII

Méthodes

VIII.1 Introduction

Nous allons ici décrire les méthodes relatives aux trois volets, à savoir la conception des antennes, la fabrication des échantillons et la caractérisation des émetteurs équipés d'antennes, ayant structuré mon travail sur les émetteurs spintroniques THz. L'émetteur, présenté dans l'encart de la figure VII.1 de la section VII.1, est déposé sur un substrat et équipé d'une antenne, représentée en jaune sur la même figure. Afin de maximiser l'émission électromagnétique, celle-ci a été simulée pour différentes géométries d'antennes (forme et dimension, section VIII.2). Les antennes présentant les meilleures émissions ont été ensuite fabriquées par lithographie (VIII.3). Enfin, les émetteurs équipés des différentes antennes réalisées ont été caractérisés afin de vérifier les résultats des simulations dans des conditions réelles (section VIII.4). Les résultats obtenus à l'aide de ces différentes méthodes seront décrits dans le chapitre suivant.

VIII.2 Simulations électromagnétiques

Comme expliqué dans la section VII.4.1, il est ardu de proposer une expression littérale du champ électromagnétique pour une géométrie d'antenne quelconque. Nous avons choisi d'adapter des géométries usuelles d'antennes à un émetteur spintronique à l'aide de simulations numériques des équations de Maxwell-Lorentz. C'est ce que nous allons détailler dans la partie suivante.

VIII.2.1 Description générale de la simulation

La simulation est réalisée dans CST (Computer Simulation Technology) [105] Studio en utilisant le template Antenne-Guide d'onde. Notre objectif est de résoudre les équations de Maxwell-Lorentz en tout point discrétisé de l'espace simulé. La simulation est réalisée dans le domaine temporel. Elle

étudie l'évolution d'une impulsion, composée de fréquences comprises entre 0,5 et 3 THz, lors de sa propagation dans le volume simulé. Cette impulsion se dissipe à cause de l'émission de l'énergie en espace libre, les pertes relatives aux matériaux ayant été négligées. La simulation s'arrête lorsque l'énergie totale contenue dans le volume simulé est inférieure à un seuil. Une transformée de Fourier est ensuite effectuée pour passer dans le domaine fréquentiel. Deux éléments sont extraits : le paramètre S qui est le rapport entre la tension retournée par l'émetteur et celle qui y est injectée, ainsi que la dépendance angulaire de la puissance rayonnée en champ lointain.

VIII.2.2 Géométrie et matériaux

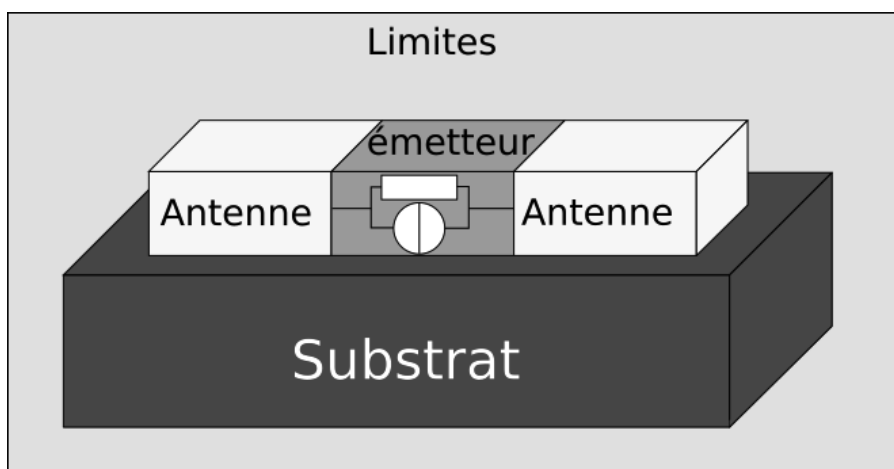


FIGURE VIII.1 – Schéma de principe de la simulation

La géométrie du système est schématisée sur la figure VIII.1. Le système est représenté par les bras de l'antenne, de géométrie variable, encadrant l'émetteur. Celui-ci est simulé dans le programme par un port qui se comporte comme un générateur de courant en parallèle d'une résistance. Le port est une donnée de simulation imposant des conditions de courants et de résistance à certains points de la géométrie, ici, l'intérieur des bras de l'antenne. La simulation génère donc une impulsion de courant de fréquence THz, qui générera en espace libre un champ électromagnétique. Le tout est posé sur un substrat semi-infini.

L'interface graphique dans l'environnement de simulation est présentée dans la figure VIII.2.

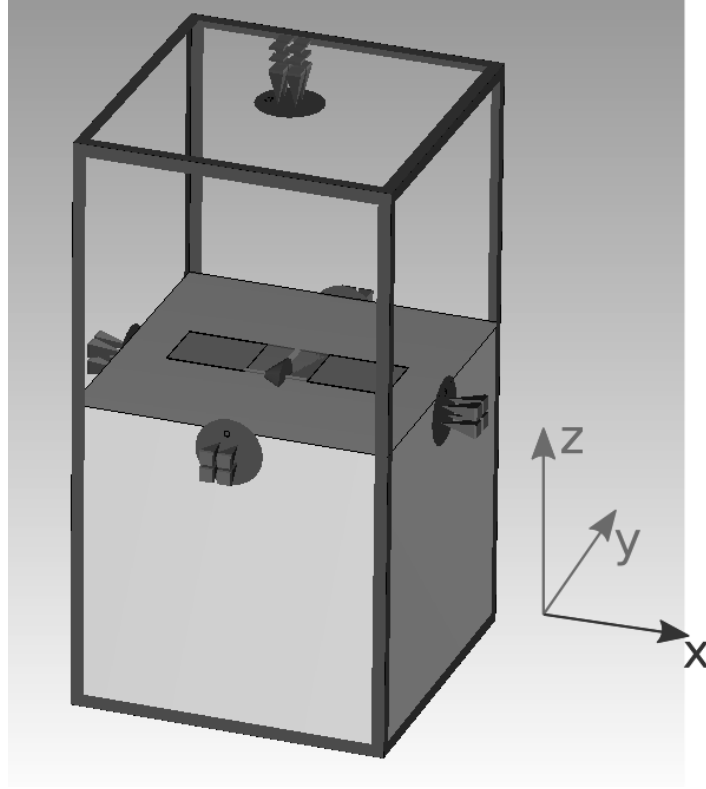


FIGURE VIII.2 – Géométrie de la simulation

Les arêtes violettes représentent les conditions limites appliquées aux faces externes. Celles-ci sont toutes réglées sur "ouvertes", à l'exception de la limite supérieure, réglée sur "ouverte(ajouter de l'espace)". Ceci permet de simuler un substrat et un demi-espace vide semi-infinis. Trois matériaux ont été testés pour le substrat. Le paramètre d'intérêt est la permittivité électrique relative du matériau $\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0}$. En effet, cette grandeur physique est liée à l'impédance du milieu (Eq. VIII.1) ce qui influe sur la forme de l'émetteur qui doit avoir une impédance similaire pour pouvoir émettre en limitant les pertes d'énergie.

$$Z = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}} . \quad (\text{VIII.1})$$

Les valeurs sont présentées dans le tableau VIII.1. La plupart des résultats présentés ici, sont issus des travaux réalisés sur substrat de saphir. En effet, le substrat de silicium est opaque à la pompe IR utilisé dans le montage de caractérisation et les substrats de silice se sont avérés moins favorables pour les caractérisations ultérieures.

Matériaux	Permittivité électrique relative (ϵ_r)
Silicium	11.9
Saphir	9.4
Silice	3.75

TABLE VIII.1 – Permittivité électrique relative ϵ_r des trois substrats utilisés dans les simulations.

L'antenne est représentée par les deux zones rouges, composée de PEC (perfect electrical conductor). Il s'agit de deux polygones symétriques selon un centre placé à l'origine de la structure, extrudés sur une épaisseur de $0,1 \mu m$. Enfin, l'émetteur THz est représenté par des conditions aux limites internes de l'antenne, sous forme d'un générateur de courant en parallèle d'une résistance. Dans les premières simulations, cette résistance était fixée à 50 ohms, mais les derniers tests ont été réalisés avec une impédance reliée à la résistivité ρ moyenne de la couche métallique, faisant ainsi intervenir la géométrie de l'émetteur dans le modèle.

$$Z = \rho \frac{L}{l \times e} . \quad (\text{VIII.2})$$

Où L est la longueur de l'émetteur, l sa largeur et e son épaisseur.

VIII.2.3 Discrétisation et maillage

Afin de réaliser la simulation, il est nécessaire de discrétiser l'espace simulé. La discrétisation utilise un maillage de type hexahédral, sans déformation dans la maille. La taille des cellules est ajustée de façon automatique par le modèle pour s'adapter aux formes modélisées. Ceci est visible sur la figure VIII.3

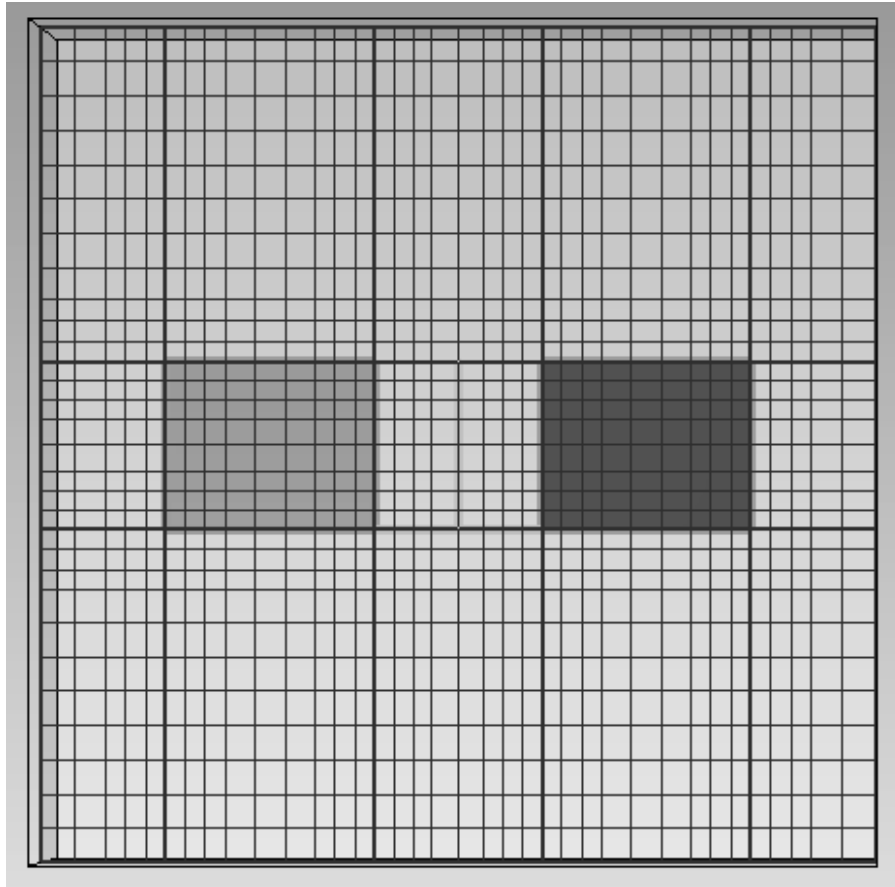


FIGURE VIII.3 – Maillage hexahédral utilisé pour la simulation.

L'emploi de ce maillage se justifie ici par des formes géométriques simples et par une cellule de petite taille par rapport à la longueur d'onde la plus courte de la simulation. Le rapport est compris entre $1/20$ et $1/15$. Le choix de la taille de la cellule est extrêmement important. En effet, dans CST studio, la cellule sera considérée comme pleine de la matière majoritaire, et le calcul sera réalisé sur l'approximation de la forme proposée par le maillage employé, comme présenté sur la figure VIII.4. Intuitivement, l'utilisateur voudra utiliser une cellule de la taille la plus petite possible, afin de limiter l'effet de crénelage.

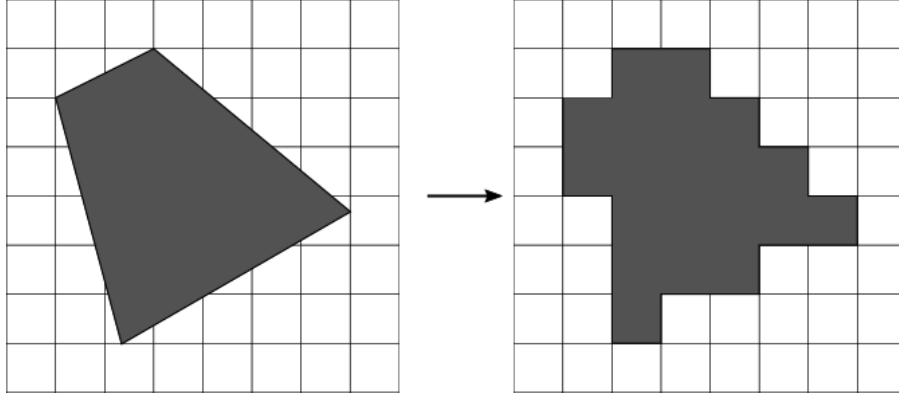


FIGURE VIII.4 – Illustration de l'effet de crénelage.

La taille de la cellule affecte cependant le temps de calcul. En effet, dans ce type de résolution étudiant la propagation d'une onde, il est nécessaire de vérifier l'égalité suivante, proposée par [118], afin de proposer des résultats pertinents.

$$\Delta t_{max} \leq \frac{1}{u_{max}} \left[\frac{1}{\Delta x^2} + \frac{1}{\Delta y^2} + \frac{1}{\Delta z^2} \right]^{-\frac{1}{2}} . \quad (\text{VIII.3})$$

On posera Δt_{max} le pas de temps le plus grand, $\Delta x/y/z$ la plus petite dimension d'une cellule élémentaire, u_{max} la vitesse maximale de phase de l'onde dans le modèle. L'égalité VIII.3 montre de façon explicite le lien entre le temps de calcul et la taille d'une cellule. En effet, une cellule de dimensions plus petites entraîne un pas de temps plus petit et donc plus d'étapes de calcul.

Le choix de la discrétisation de l'espace est donc le fruit d'un compromis entre la vitesse de calcul et la pertinence des résultats obtenus.

VIII.2.4 Déroulement de la simulation

La simulation se déroule comme suit : une impulsion de courant est injectée dans le port, excitant la structure. L'impulsion est composée des fréquences à étudier, ici de 1 à 3000 GHz. Le pas de fréquence est 3 GHz, et l'amplitude suit une fonction gaussienne, comme présenté sur la figure VIII.5.

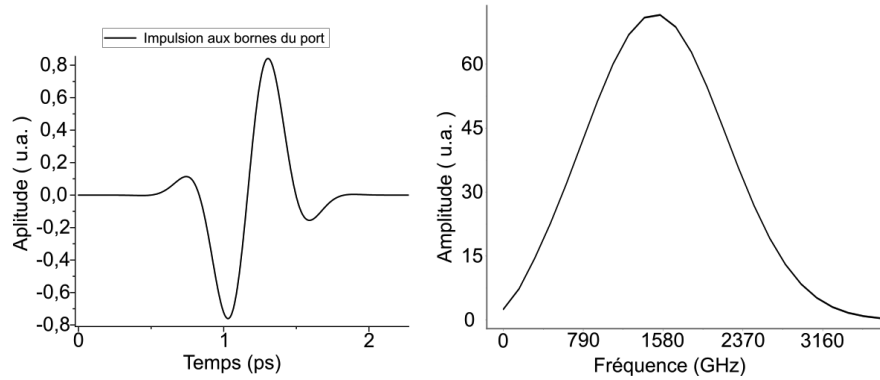


FIGURE VIII.5 – Impulsion aux bornes du port, présentée dans le domaine temporel et fréquentiel.

La simulation se fait dans le domaine temporel, et le pas de temps de la simulation est d'environ 10^{-3} ps. Le calcul est réalisé par la méthode des différences finies (FDM en anglais). Il consiste à discrétiser l'espace et le temps de la simulation et à déterminer le champ électromagnétique en tout point, à chaque pas de temps. L'étude s'est concentrée sur l'optimisation du facteur de réflexion, c'est-à-dire la racine carrée du rapport entre puissance réfléchie par l'émetteur et la puissance injectée dans celui-ci, en fonction de la fréquence. Ce paramètre est noté S et son amplitude est présentée dans la suite avec une échelle logarithmique. Un exemple est présenté sur la figure VIII.6.

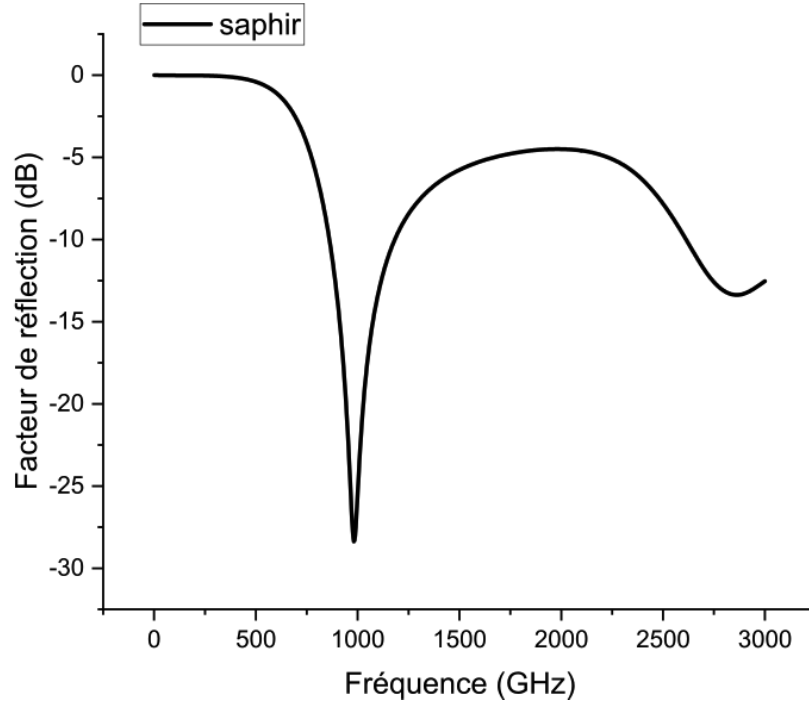


FIGURE VIII.6 – Paramètre de réflexion de l’antenne dipôle, défini comme un paramètre S , dont l’amplitude est présentée de façon logarithmique, en fonction de la fréquence. Données issues des simulations sur substrat de saphir.

Soit T la fraction de l’amplitude rayonnée et A_{perte} la fraction absorbée par conservation de l’énergie ; il vient :

$$T^2 = 1 - |S|^2 - A_{perte} . \quad (\text{VIII.4})$$

On note S la réflexion. Dans la simulation, les matériaux sont supposés sans perte. Ainsi $A_{perte} = 0$. Si $|S|^2 = 0$, c’est-à-dire s’il n’y a pas de puissance réfléchie, alors la puissance est intégralement émise sous forme de rayonnement.

Un autre élément étudié dans l’étude est le champ lointain émis par la structure, en particulier la polarisation et l’angle solide d’émission des différents systèmes. Cette étude a permis d’interpréter les résultats obtenus lors des mesures de caractérisation des antennes.

VIII.2.5 Géométrie de l’antenne

La simulation n’a pas pris en compte les pertes dues à l’absorption du milieu, liant ce paramètre directement à l’énergie émise. L’étude s’est concentrée sur trois designs d’antennes : dipôle, bow-tie et spirale. Ces designs ont ensuite été adaptés aux substrats précédemment décrits.

Antenne dipôle

Cette antenne est la plus simple géométriquement parlant. La géométrie possède deux axes de symétrie, ce qui signifie que le nombre de paramètres d'intérêt peut être réduit à trois : la largeur de l'antenne h , la longueur de l'émetteur L_c , et la longueur des bras de l'antenne $(L-L_c)/2$.

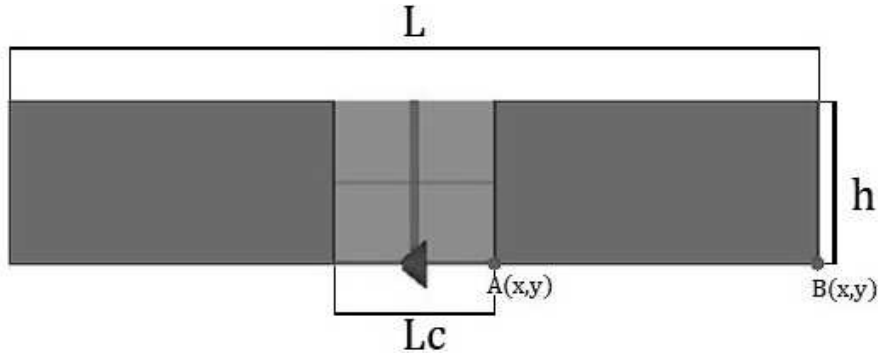


FIGURE VIII.7 – Schéma de l'antenne dipôle.

Ce type d'antenne est la plus compacte et a la meilleure performance à sa fréquence de résonance. Celle-ci a été choisie pour être 1 THz. Les dimensions changent légèrement en fonction du substrat.

Cette antenne a la plus petite surface, ce qui est un avantage important lorsque l'objectif est de créer un réseau d'émetteurs qui, par la suite, permet à l'utilisateur d'atteindre un signal THz dont l'amplitude est importante. Le contre-coup est l'absence de spectre d'émission large.

Antenne bow-tie

Cette antenne est relativement plus complexe, comme montrée dans Figure VIII.8. Cependant, avec toujours 2 axes de symétrie, le nombre de paramètres peut être réduit à 5. Ces paramètres sont les coordonnées des points A, B et C présentés sur la figure VIII.8. Il est nécessaire de noter que le paramètre Y du point B a été fixé. En effet, l'objectif était d'avoir un angle indépendant de la largeur de l'émetteur, tout en maintenant la forme générale de l'antenne bow-tie. Ceci a nécessité un point intermédiaire dont la distance par rapport à l'émetteur sur l'axe Y était petit. Cette distance a été fixée à $10\mu\text{m}$, rendant la distance négligeable par rapport à la taille de l'un des bras de l'antenne.

Ceci permet d'obtenir les dimensions de l'antenne, E_a , L_a , E_e , L_e et E_c , comme présenté dans Figure VIII.8. Ce sont les paramètres qui ont servi pour l'optimisation, et qui sont présentés dans la suite du manuscrit.

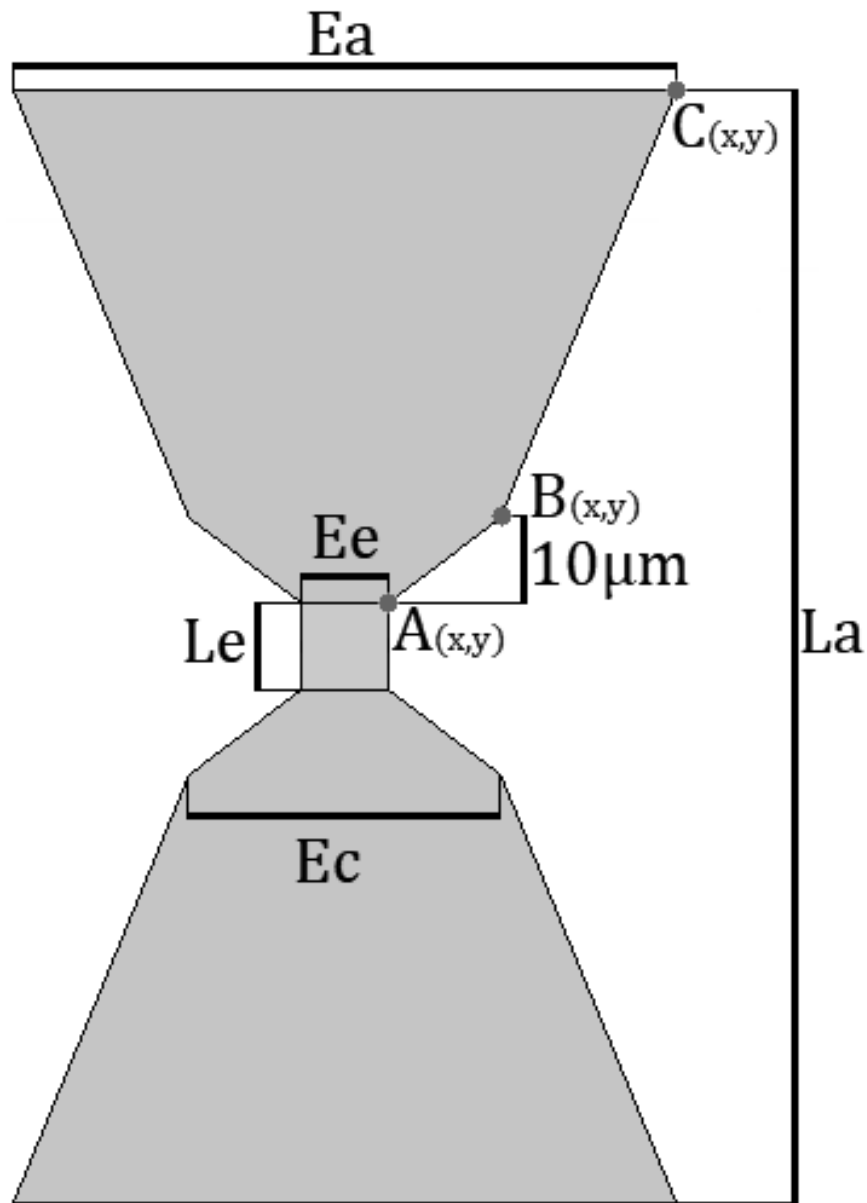


FIGURE VIII.8 – Schéma d’une antenne nœud papillon. Les dimensions représentées sont celles employées pour réaliser une antenne large sur saphir.

Cette antenne est la première ayant un spectre d’émission large. Deux sous-designs ont été réalisés pour chaque substrat : un qualifié de large et un autre, plus compact et qualifié par la suite de cette façon.

Antenne Spirale

Cette antenne est plus complexe à réaliser d’un point de vue géométrique, un polygone de plus de 100 points étant nécessaire pour chaque bras, afin

de créer une forme ayant un échantillonnage satisfaisant. Il est néanmoins possible de paramétrer les polygones avec seulement 4 degrés de liberté. En effet, l'équation des points d'une spirale logarithmique est la suivante :

$$r = \alpha \times \beta^\theta \quad . \quad (\text{VIII.5})$$

Dans un repère polaire, à partir du moment où la distance au centre $\mathbf{r}$ du point est relié à l'angle θ par l'équation VIII.5, la forme géométrique est une spirale logarithmique. Il suffit donc de deux paramètres pour décrire totalement un brin de la ligne délimitant un des bras de l'antenne. Cependant, chaque bras est composé de deux brins afin de former une surface et deux bras sont nécessaires. Il faut donc paramétrer 4 brins différents pour obtenir une antenne spirale.

J'ai donc ajouté deux paramètres supplémentaires, γ_k et θ_j afin de décrire totalement le polygone d'intérêt. Pour le bras supérieur, $\theta_{haut} = 0^\circ$ et $\theta_{bas} = 180^\circ$ pour le bras inférieur. De la même façon, il est nécessaire de séparer le brin extérieur du bras, et le brin intérieur, plus petit. Le paramètre γ_k est utilisé pour cela et vaut 0 pour γ_e tandis que γ_i pilotant l'épaisseur du bras, est optimisé.

On obtient ainsi les équations VIII.6 et VIII.7 décrivant les coordonnées d'un points $\mathbf{i}$ du polygone décrivant les antennes spirales dans un repère cartésien, utilisées dans les programmes que j'ai employés pour réaliser les géométries.

$$x_i = (a \times i + a_0) \times \gamma_k \times \sin(\theta_j + b \times \log(i)) \quad . \quad (\text{VIII.6})$$

$$y_i = (a \times i + a_0) \times \gamma_k \times \cos(\theta_j + b \times \log(i)) \quad . \quad (\text{VIII.7})$$

Le paramètre a est le coefficient directeur définissant l'éloignement du point. Il est responsable de "l'ouverture" des bras. Un grand paramètre $\mathbf{a}$ résulterait en une spirale presque plate, tandis que le cas contraire donnerait une spirale très arquée, mais plus petite. a_0 est un coefficient constant que j'ai rajouté afin de m'assurer que les points initiaux de la spirale ne changent pas lors de l'optimisation du paramètre $\mathbf{a}$. Afin de relier la spirale à un émetteur, une antenne dipôle relie celui-ci aux points de départ de la spirale.

Le résultat est présenté en figure VIII.9.

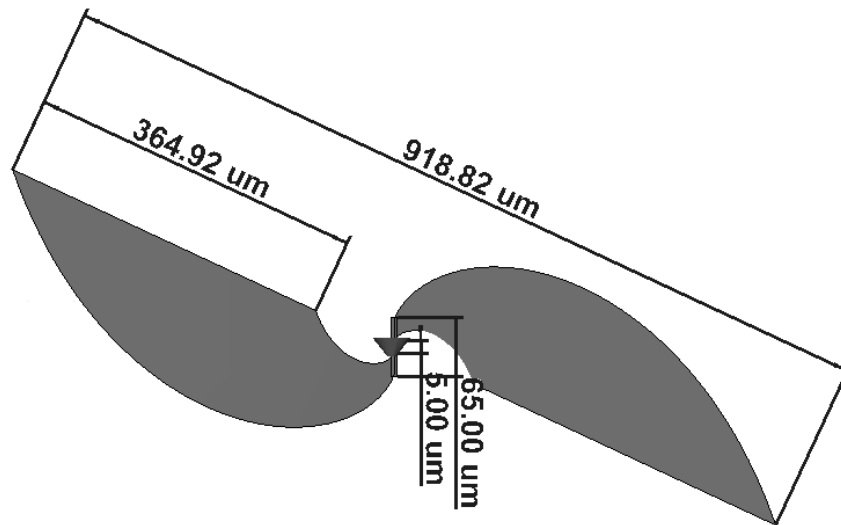


FIGURE VIII.9 – Géométrie d'antenne spirale. Les dimensions sont celles issues des paramètres utilisés pour un substrat de saphir.

VIII.2.6 Optimisation

L'optimisation a été réalisée en deux étapes. Tout d'abord, j'ai balayé la valeur des différents paramètres des antennes, entre un minimum et un maximum définis de façon arbitraire. Les différents paramètres ont été modifiés de façon indépendante, afin de minimiser le paramètre S sur une gamme de fréquences la plus large possible comprise entre 500 et 2500 GHz. Ceci a permis d'obtenir des maxima locaux, autour desquels une optimisation par stratégie d'évolution avec adaptation de matrices de covariance (CMA-ES) a été employée pour affiner les résultats, tout en prenant appui sur les balayages déjà réalisés. Les réglages présentés dans les différents tableaux sont ceux employés pour la réalisation des antennes par la suite.

Champ lointain

Une fois le design optimisé, son champ lointain a été étudié. Je me suis ainsi intéressé à l'amplitude de la puissance rayonnée en fonction de la fréquence et de l'angle, afin de connaître les directions privilégiées d'émissions des antennes.

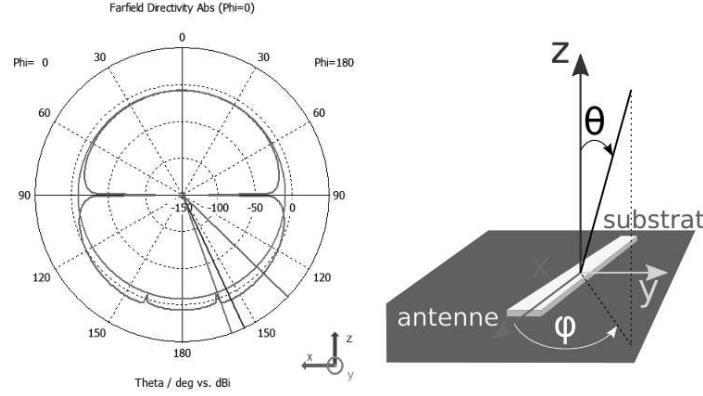


FIGURE VIII.10 – Coupe du champ lointain pour $\phi=\{0;180\}$ deg pour un substrat de saphir.

La ligne rouge sur la figure VIII.10 représente le gain d'amplitude de l'émission de la structure, en dBi, comparée à la ligne verte représentant une émission isotrope, normalisé à l'émission moyenne. Les lignes bleues représentent l'angle d'émission principale. À droite, un schéma définissant les angles utilisés dans la figure.

Nous nous sommes également intéressés à la polarisation des ondes émises. Pour cela, nous avons regardé le rapport $\frac{E_\phi}{E_\theta}$. Si ce rapport est égal à 1, l'émission est parfaitement circulaire. Si le rapport tend vers zéro ou l'infini, l'émission est polarisée linéairement. Dans la pratique, on présente le logarithme de la valeur absolue du rapport. Une valeur comprise entre 0 et 3 représente une polarisation plutôt circulaire, entre 3 et 10 une polarisation elliptique, et au-dessus de 10 une polarisation plutôt linéaire.

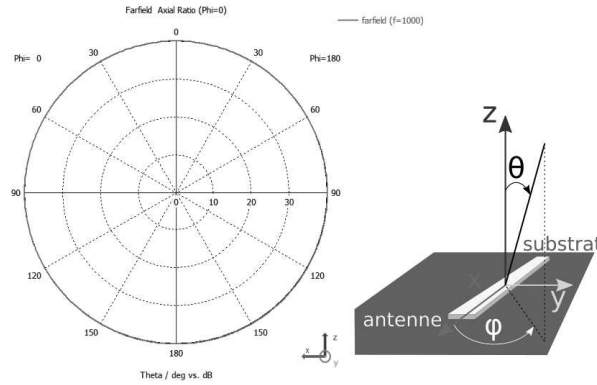


FIGURE VIII.11 – Coupe de la polarisation du champ lointain selon le plan de normale $\vec{u}_y$ d'une antenne dipôle sur substrat de saphir.

La ligne rouge sur la figure VIII.11 représente le rapport $\frac{E_\phi}{E_\theta}$. On voit ainsi que l'émission est polarisée linéairement ici. À droite, un schéma définissant les angles utilisés dans la figure.

Nous allons détailler la fabrication dans la partie suivante.

VIII.3 Réalisation des échantillons et fabrications des antennes sur des émetteurs spintroniques

Description de l'émetteur

La composition de l'émetteur est présentée sur la figure VIII.12. Conformément aux optimisations rapportées par Seifert et al. (section VII.3.3, [98]) l'empilement est constitué d'une couche de métal ferromagnétique (Co) entourée par deux couches de métaux non-magnétiques (Ta et Pt) qui sont connus pour des angles de Hall de spin élevés et de signes opposés. Celui-ci est plus épais que la triple couche optimisée dans [98] et [99], celle-ci ayant une épaisseur totale de 4 nm. Ceci s'explique par un vœu de polyvalence, dans le projet initial, le même empilement devait également servir à détecter des courants THz.

Pt (3 nm)
Co (4 nm)
Ta (3 nm)
Substrat

FIGURE VIII.12 – Composition de la tricouche spintronique utilisée.

La triple couche est fabriquée, par sputtering, à l'Institut Jean Lamour par Michel Hehn et est composée de la façon suivante : Substrat/Ta(3nm)/Co(4nm)/Pt(3nm). Les différents substrats ont été le silicium, le saphir et la silice. L'emploi d'une couche de tantale se justifie par des arguments mécaniques et d'adhésion permettant au reste de la tri-couche d'être réalisée. En effet, le tantale facilite l'adhésion de la couche de cobalt, même si ce matériau a une amplitude d'angle Hall de spin plus faible que le tungstène, qui aurait été préférable pour cette caractéristique seule. Le matériau magnétique utilisé est du Cobalt. ($\text{Co}_4\text{Fe}_4\text{B}_2$ dans [98]). Enfin, le platine est le matériau avec le plus grand-angle Hall de spin à ma connaissance, justifiant son emploi dans le cadre d'un émetteur spintronique. La résistance de la tri-couche est calculée par la formule VIII.2.

La résistance par carré ($\frac{\rho}{e}$ dans l'équation VIII.2) a été mesurée par J.Solano, qui a obtenu une valeur de 44 Ω par méthode Van der Paw, et une valeur de 49 Ω par méthode des 4 points. Dans les simulations, une valeur de 50 Ω a été utilisée. Z varie ainsi entre 50 et 150 Ω en fonction du rapport d'aspect L/l de l'émetteur.

Méthode de réalisation des antennes

La réalisation des échantillons antennes-émetteurs se fait en deux étapes. L'échantillon est récupéré tel que décrit dans le précédent paragraphe, sous la forme d'une tri-couche métallique déposée sur un substrat. Dans un premier temps, la triple couche est gravée par lithographie laser positive. Un dépôt de résine est réalisé puis les zones émettrices sont insolées, rendant la résine résistante au développement dans ces aires. Une gravure ionique est ensuite réalisée, ce qui retire la tri-couche métallique dans les zones nues. La deuxième étape consiste à réaliser les antennes proprement dites. Deux couches de résine sont appliquées, la couche inférieure réagissant plus vite avec la solution de développement que la couche supérieure. Ceci permet d'avoir un surplomb de résine, permettant d'éviter que la couche métallique déposée sur le substrat ne "colle" avec celle déposée sur la résine à retirer lors du lift-off. Une étape d'insolation est ensuite réalisée, durant laquelle il est nécessaire d'aligner la nouvelle zone à éclairer sur les gravures réalisées lors de la première étape. La résine est ensuite développée, puis l'échantillon recouvert d'une bi-couche composée de Ti(10nm)/Au(60nm) par évaporation, par faisceau d'électrons. Le titane a été choisi pour assurer l'adhésion de l'antenne à l'émetteur spintronique ainsi qu'au substrat, tandis que l'or est choisi pour sa bonne conductivité électrique. La totalité de la résine est ensuite retirée, ne laissant la bi-couche que sur les zones initialement "nues". Le protocole complet est donné dans l'appendice .9, et est présenté dans la figure VIII.13.

Trois substrats ont été utilisés : du silicium (Si), du saphir (Al_2O_3) et de la silice fondue (fused silica) (SiO_2). Le premier matériau a essentiellement servi comme entraînement et a très vite été écarté. En effet, il absorbe et atténue la pompe IR utilisée pour exciter l'émetteur spintronique limitant certaines mesures. La principale différence entre l' Al_2O_3 et le SiO_2 , est la constante diélectrique du matériau, qui, comme expliqué plus haut, est liée à l'impédance du matériau.

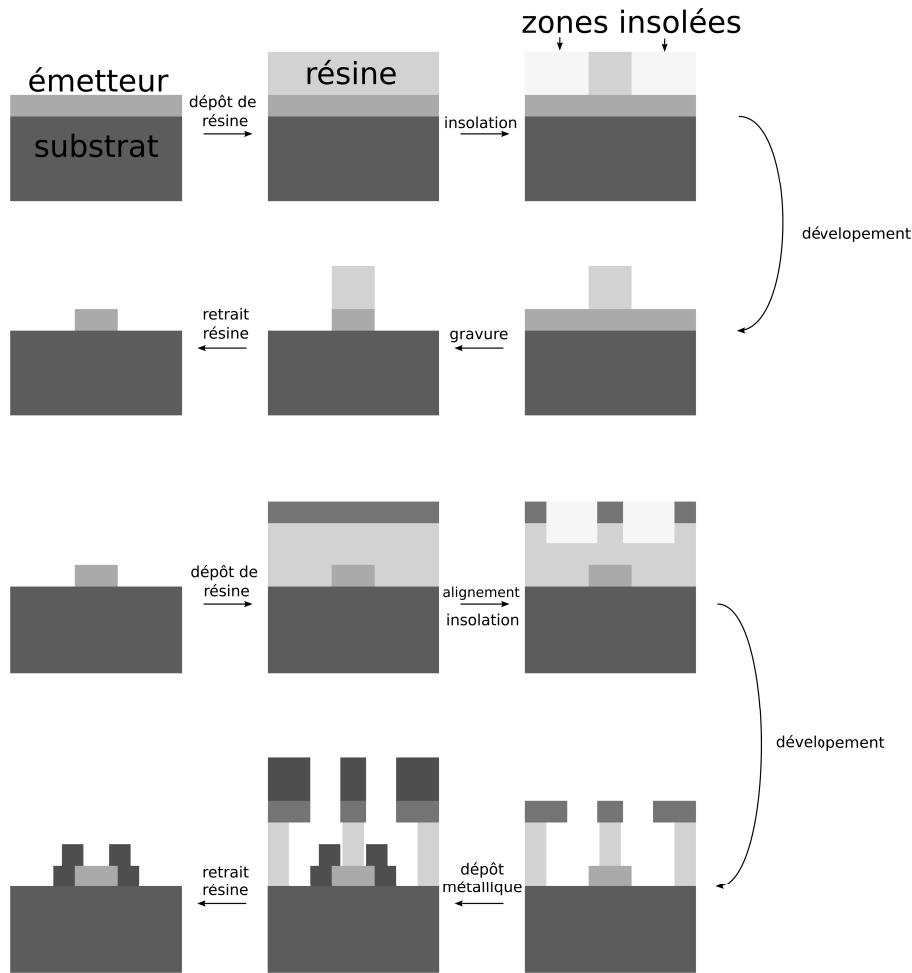


FIGURE VIII.13 – Processus complet de réalisation des antennes sur l'échantillon recouvert d'une tricouche spintronique.

VIII.4 Caractérisation

Il est nécessaire de s'assurer de l'efficacité des antennes réalisées. Pour ce faire, les structures ont été caractérisées à l'aide d'un montage pompe sonde. La particularité de ce montage est que si l'échantillon est excité à l'aide d'une pompe IR classique, la détection est réalisée par un échantillonnage électro-optique. Les ondes THz émises par l'échantillon sont focalisées sur un cristal de ZnTe, modifiant ainsi son indice optique. La réaction d'un cristal de ZnTe à un champ électrique THz externe a été expliqué par C. Winnemisser et son équipe, qui ont proposé une description théorique dans l'article [126]. Ceci impacte la polarisation de la sonde traversant le cristal. Nous allons détailler dans un premier temps le principe de l'échantillonnage électro-optique, avant de décrire le montage pompe-sonde utilisé et de préciser les spécificités des deux campagnes de mesures réalisées.

VIII.4.1 Détection d'onde THz grâce au Tellurure de Zinc.

Le cristal de ZnTe est une pièce centrale de notre système de détection. Il est nécessaire de connaître le fonctionnement de l'organe de détection pour évaluer efficacement l'émetteur testé et ses différentes déclinaisons. Le phénomène physique à l'origine de la détection d'onde THz est un effet d'interaction lumière-matière d'ordre un. De fait, sous l'effet du champ électrique THz externe, l'indice optique du cristal subit une modification. Ce phénomène est connu sous le nom d'effet Pockels. L'évolution de l'indice optique du cristal est ensuite détectée par une sonde optique IR. Ceci permet d'obtenir la valeur du champ électrique.

Il est maintenant nécessaire de lier le retard de phase subi par la sonde dans le cristal avec le champ électrique THz. En supposant que la sonde se propage sur l'axe z, le changement de polarisation s'exprime par un retard de phase entre la polarisation sur l'axe x par rapport à la polarisation sur l'axe y. On peut ainsi décrire le retard de phase relatif élémentaire $\delta\Phi_{THz}(t)$ par l'équation suivante :

$$\delta\Phi_{THz}(t) = \frac{\omega}{c} n_0^3 r_{41} E_{THz}(T) \cdot dz \quad . \quad (VIII.8)$$

Dans cette équation n_0 est l'indice optique du matériau, r_{41} une composante du tenseur électro-optique, $E_{THz}(t)$ le champ électrique THz à l'instant t, polarisé selon x, et dz l'épaisseur élémentaire. En posant $C_{ZnTe} = \frac{\omega}{c} n_0^3 r_{41}$ on obtient :

$$\delta\Phi_{THz}(t) = C_{ZnTe} E_{THz}(t) \cdot dz \quad . \quad (VIII.9)$$

En intégrant ce retard de phase élémentaire sur toute la longueur du cristal, on obtient la formule suivante :

$$\Delta\Phi_{THz}(t) = (1 - R) C_{ZnTe} \int_0^L E_{THz} \left(\frac{z}{c} \Delta n + t \right) e^{-\alpha z} \cdot dz \quad . \quad (VIII.10)$$

R est la réflexion du champ électrique à l'interface air/matériau, t le temps, Δn la variation de l'indice optique du milieu et $1/\alpha$ la longueur caractéristique d'atténuation de l'onde excitatrice THz dans le milieu. En supposant que le champ électrique THz ne varie pas en fonction de la position et que l'atténuation est faible par rapport à la taille du cristal, on peut réaliser l'intégrale et on obtient alors l'égalité suivante :

$$E_{THz}(t) = \frac{\Delta\Phi_{THz}(t)}{C_{ZnTe} \cdot L} \quad . \quad (VIII.11)$$

On relie ainsi la variation de polarisation de la sonde à l'amplitude du champ électrique. Il est important de signaler que le système ne permet pas de mesurer l'énergie de l'impulsion, mais seulement l'amplitude du champ.

En effet, sans calibrage préalable, le terme C_{ZnTe} est inconnu et le signal final n'est que proportionnel à l'amplitude du champ THz. D'autre part, il est important de noter que l'indice du système n_0 est dépendant de la fréquence et devrait donc s'écrire $n(\omega)$. Cependant, ce paramètre est relativement stable entre 0,5 et 3 THz, plage d'intérêt de notre étude, comme le montre la figure VIII.14 a), extraite de [41].

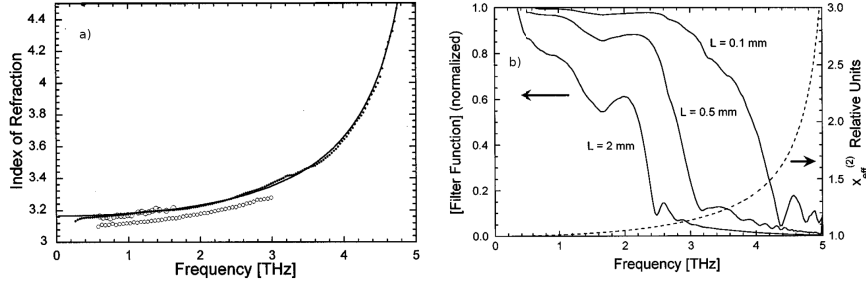


FIGURE VIII.14 – a) Indice du ZnTe en fonction de la fréquence b) Filtre du cristal pour différentes épaisseurs en fonction de la fréquence.

Gallot et al. ont une approche temporelle comme point de départ et définissent le signal électro-optique comme la transformée de Fourier du signal THz, convolué par une fonction de filtre, comme présenté dans l'équation VIII.12, où $S(t)$ est le signal électro-optique détecté, $A_{THz}(\Omega)$ le signal THz dans le domaine temporel et $f(\Omega)$ une fonction de filtrage appliquée au signal THz, lié aux conditions expérimentales.

$$S(t) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} A_{THz}(\Omega) f(\Omega) e^{-i\Omega t} d\Omega \quad . \quad (\text{VIII.12})$$

La fonction $f(\Omega)$ est le produit de trois termes, comme on peut le voir dans l'équation VIII.13.

$$f(\Omega) = C_{opt}(\Omega) \times \chi_{eff}^{(2)}(\omega_0; \Omega, \omega_0 - \Omega) \times \left[\frac{e^{i\Delta k_+(\omega_0, \Omega)l} - 1}{i\Delta k_+(\omega_0, \Omega)} \right] \quad . \quad (\text{VIII.13})$$

$C_{opt}(\Omega)$ est l'auto-convolution de la sonde et change en fonction du montage expérimental. $\chi_{eff}^{(2)}$ décrit la susceptibilité électro-optique du cristal. Enfin, le terme entre crochets est la longueur de cohérence, dépendante de la fréquence, et déterminée par le décalage entre la vitesse de groupe de la sonde et la vitesse de phase de l'onde THz. Ces deux fonctions sont décrites dans la figure VIII.14 b), elle aussi extraite de [41]. La faible variation de ces deux dernières fonctions sur les fréquences de notre étude nous permet de négliger l'impact du moyen de détection sur les spectres obtenus.

VIII.4.2 Système de détection pompe-sonde

Le système de mesure est un montage pompe-sonde, réalisé et calibré par M.Vomir. La campagne de mesures préliminaires a été réalisée par

O.Kovalenko. La ligne de mesures présentée sur le schéma VIII.15, mesure le changement d'indice d'un cristal de Tellurure de Zinc, sensible aux ondes THz émises. Les mesures suivantes se concentrent sur le signal THz émis par l'échantillon, noté S, et soumis à un champ magnétique extérieur produit par un aimant permanent M. La pompe est focalisée, par la lentille FL, sur l'échantillon. Le champ THz émis est focalisé sur le cristal de ZnTe par deux miroirs paraboliques, de même que la sonde, par une lentille. Un pont de polarisation mesure la variation de polarisation de la sonde traversant le cristal optoélectrique.

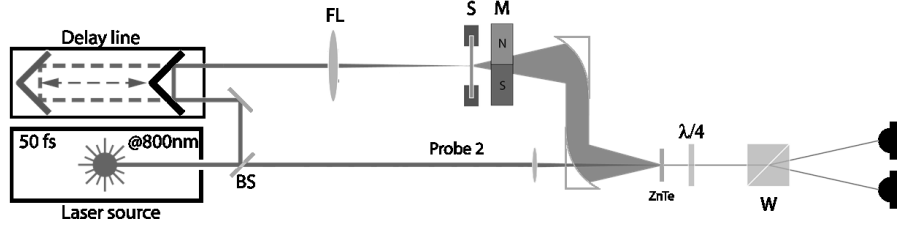


FIGURE VIII.15 – Expérimentation pompe-sonde permettant l'évaluation de l'antenne

Le premier miroir parabolique est une ellipse dont le grand axe horizontal mesure 8 cm et un petit axe vertical de 5 cm et est situé à 10 cm de l'échantillon. Le miroir a cependant une incidence de 45° selon son axe vertical, et il est nécessaire de regarder son angle solide par rapport à l'émetteur. On obtient alors une ellipse avec le même petit axe vertical et un grand axe horizontal de 5,65 cm. Le miroir va donc capter les ondes émises jusqu'à 28° autour de la direction d'émission, placée à 180° . Les angles limites d'émission du champ lointain sont donc 165° et 195° environ.

La longueur d'onde de la pompe est de 800 nm, la durée d'impulsion est de 30 fs, et la fréquence d'impulsion est cadencée à 10 kHz. Un hacheur, cadencé à 5 kHz, permet de mesurer la différence de signal à la sortie du pont de polarisation, entre deux situations : avec et sans le champ THz, en coupant la pompe. Ceci permet de supprimer l'offset du système de mesure. Lors des acquisitions, chaque point est la moyenne du signal reçu pendant 3 s. Les polarisations de la sonde sont séparées par un cristal de Wollaston et sont mesurées par des photo-diodes. Le signal détecté est proportionnel à la différence de tension aux bornes des deux photo-diodes. Cette tension est analysée par un lock-in, cadencé à 10 kHz, permettant la mesure de la différence de signal. Un lock-in a pour effet de mixer le signal détecté avec un signal de référence, puis d'extraire la différence de fréquences afin d'identifier les composantes du signal, ainsi que la phase et l'amplitude de celle-ci. [88]

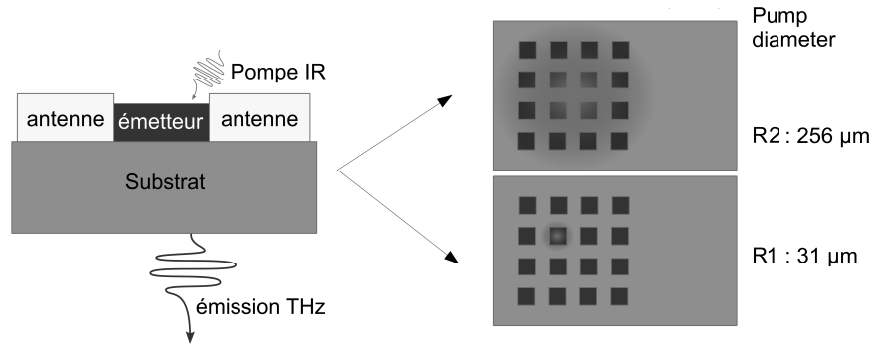


FIGURE VIII.16 – Description de la position et de la forme de la pompe pour les deux campagnes différentes de mesure réalisées.

Les différentes campagnes sont différenciées principalement par la taille de la pompe. La campagne 2 a été réalisées avec des pompes qualifiées d'étendues, car le diamètre est suffisamment important pour recouvrir plusieurs émetteurs. Le diamètre du spot est de $256\ \mu m$. Le diamètre de la pompe pour la campagne 1 est de $31\ \mu m$. Cette série de mesures a permis de comparer les émetteurs un à un.

Un exemple de résultat obtenu est présenté sur la figure VIII.17.

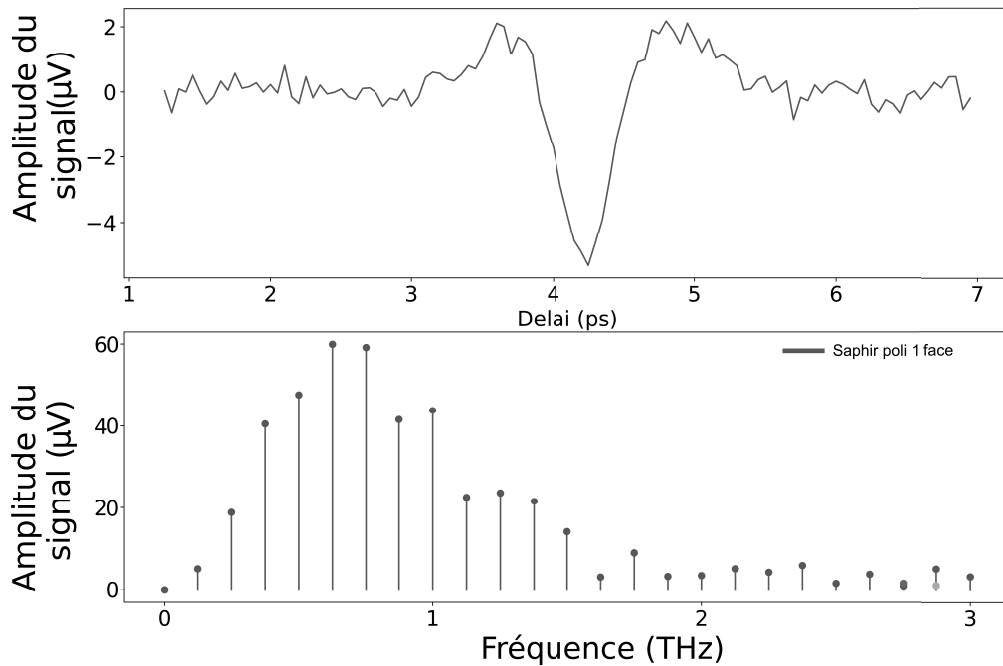


FIGURE VIII.17 – Signal obtenu par un émetteur large de $500\ \mu m$ de côté sur substrat de saphir poli une face.

En haut le signal temporel détecté, la superposition temporelle est située à environ 2,5 ps. L'amplitude du signal est exprimée en μV , et correspond à la tension aux bornes des diodes. En bas la transformée de Fourier entre 0 et

3 THz, présentant l'amplitude de chaque fréquence. À noter que la fréquence nulle a été supprimée lors du traitement.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai présenté les trois parties de mon travail à savoir les simulations, les réalisations d'échantillons en salle blanche et les caractérisations des émetteurs équipés d'antennes. Les méthodes ayant été introduites, elles permettent la compréhension des résultats. C'est ce que nous verrons dans le chapitre suivant.

Chapitre IX

Résultats

Nous allons présenter les résultats des différentes parties ayant abouti à l'adaptation d'antennes sur des émetteurs spintroniques THz.

IX.1 Résultat des simulations

Dans un premier temps, je vais présenter ici les résultats des différentes simulations. Nous allons commencer par une description de l'émetteur seul.

IX.1.1 Travail préparatoire

Émetteur seul : antenne courte

Il a été intéressant de regarder l'effet d'un émetteur sans antenne. Pour parvenir à simuler cela, l'émetteur n'étant décrit que par des conditions limites appliquées aux bras des antennes, une antenne dipôle dont les bras avaient une longueur négligeable devant la taille de l'émetteur a été utilisée. L'antenne a alors les dimensions suivantes (notation de la figure VIII.7) :

Paramètres (μm)	L	Lc	h	Lb
Antenne Courte	9	7	10	1

TABLE IX.1 – Dimensions utilisées pour la simulation d'un émetteur "seul", l'antenne étant petite par rapport à celui-ci.

On peut voir la géométrie réellement simulée sur la figure du maillage présentée sur la figure IX.1, à savoir les volumes des bras de l'antenne, simulés par les points du maillage, et le port, qui se traduit par des conditions limites de courant à ces points.

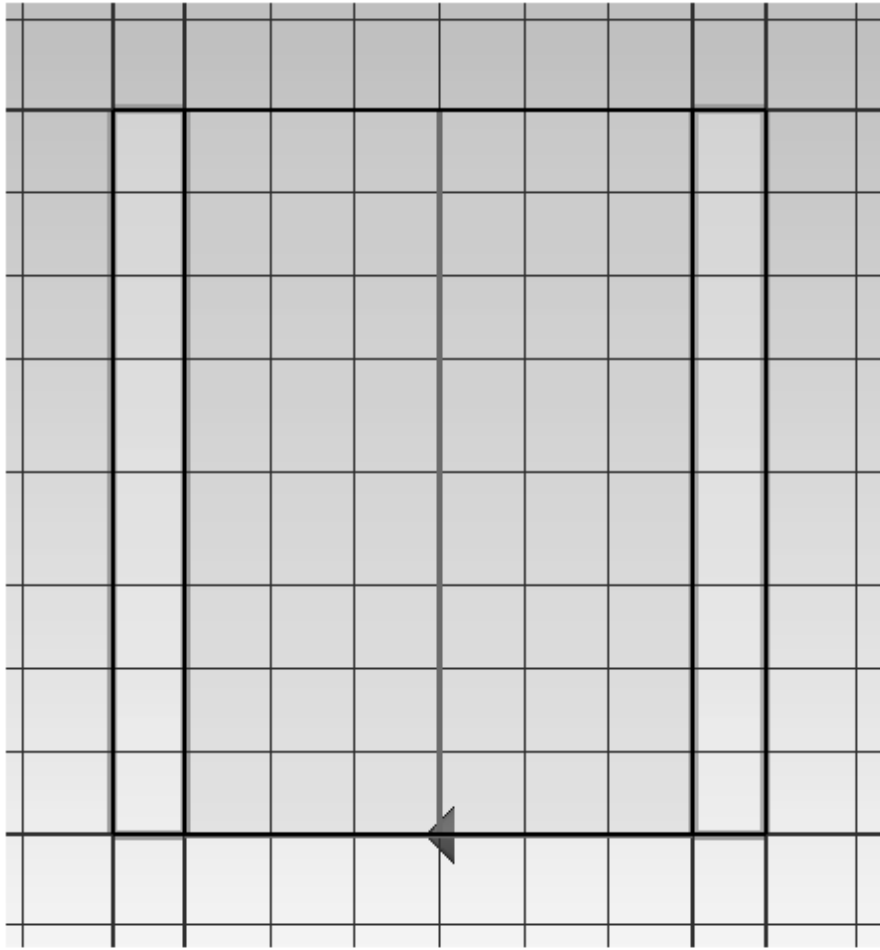


FIGURE IX.1 – Maillage de la géométrie de la simulation avec des bras courts.

La simulation retourne une émission extrêmement faible, comme on peut le voir sur la figure IX.3. Comme on peut le constater, le coefficient de réflexion reste supérieur à -3 dB, soit un rapport de puissance émise inférieur à 30%.

On peut enfin obtenir le champ lointain émis par un émetteur unique, présentés sur la figure IX.2.

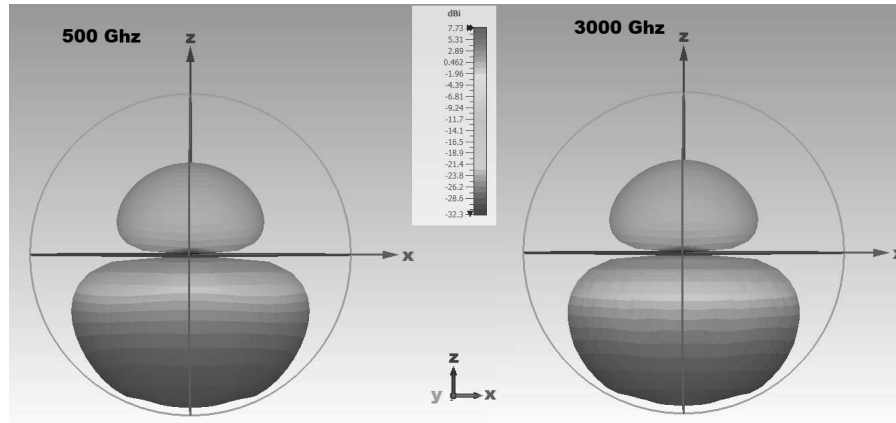


FIGURE IX.2 – Présentation du champ lointain émis par un émetteur sans antenne, sur un substrat de saphir à des fréquences de 500 GHz, à gauche, et 3 000 GHz, à droite.

On constate l'impact du substrat, rendant l'émission anisotrope. En effet, il y a un rapport de 6 entre l'émission isotrope et le champ émis selon $-u_z$. Le substrat a donc un effet important en ce qui concerne la directivité de l'émission. L'effet des bras fins est minime, le champ étant quasi-invariant par rotation autour de l'axe z . Ceci s'explique par leur longueur inférieure aux plus courtes longueurs d'ondes simulées. Enfin, la fréquence n'a pas, ou peu, d'impact, le champ ne variant que peu entre 500 et 3 000 GHz, bornes de l'étude. Cette étude est importante pour s'assurer que l'émission se fait selon l'axe z . En effet, étant donné la géométrie du système de mesures présenté dans VIII.4.2, seules les émissions parallèles à la normale du plan du substrat peuvent être détectées.

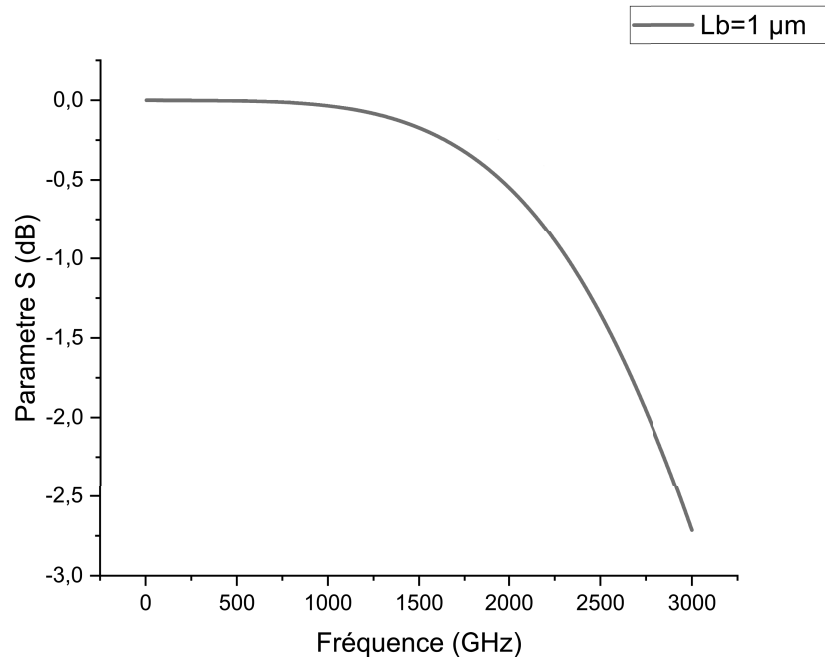


FIGURE IX.3 – Rapport entre l'énergie réfléchie et l'énergie injectée pour un émetteur seul.

Étude de l'impact des limites

Il est nécessaire de s'assurer de l'impact des conditions limites lors d'une simulation. Nous avons donc comparé la même simulation dans deux cas. Dans le premier, la base a donc une dimension de $7000\mu m$ de côté, ce qui permet à la limite physique du système simulé d'être placée à plus de $15\lambda_{500GHz}$ de l'extrémité de l'antenne dans le matériau : ici, du saphir. La fréquence de coupure pour les simulations a été choisie en raison du comportement fréquentiel de l'émetteur, décrite par T. Seifert et son équipe dans la référence [98] et repris dans la figure VII.5 de la partie VII.3.3. Dans le deuxième, la base a une dimension de $1150\mu m$ de côté plaçant la limite à environ $1\lambda_{500GHz}$.

La différence entre les différents paramètres de réflexion est petite, comme on peut le constater dans la figure IX.4, et on ne constate une différence d'émission due aux conditions limites qu'à partir de 150 GHz, pour une limite placée à $1\lambda_{500GHz}$.

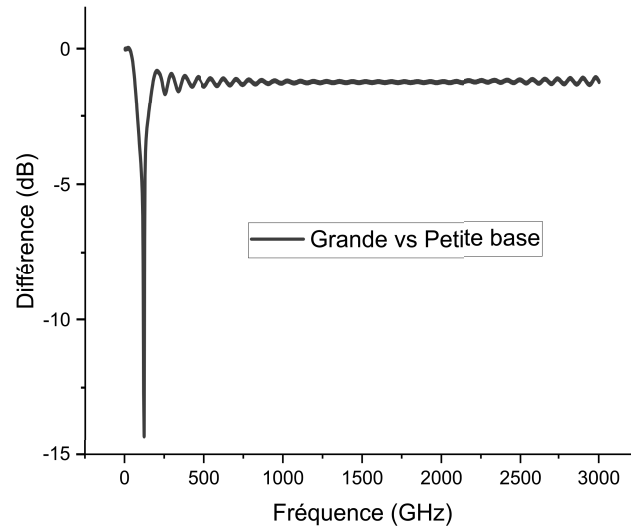


FIGURE IX.4 – Comparaison du paramètre de réflexion d’une limite placée à $15 \lambda_{500GHz}$ vs $1 \lambda_{500GHz}$. Une différence d’1 dB n’est constatée qu’à partir de fréquence de 150 GHz.

Le champ lointain a également été étudié, à 500 GHz, il est identique pour les deux dimensions de la base.

L’étude des limites permet donc de conclure que la simulation n’est pas influencée par les conditions limites sur un intervalle de 500 à 3 000 GHz.

IX.1.2 Antennes

Dans la partie suivante, nous allons décrire les résultats obtenus lors des simulations pour les différentes géométries d’antennes.

Antenne dipôle

Les simulations réalisées sur les antennes dipôles ont permis d’obtenir, comme résultat d’optimisation, les valeurs suivantes pour la géométrie et l’impédance de l’émetteur. Celles-ci sont présentées dans le tableau suivant IX.2.

Nom des paramètres (μm)	L	Lc	h	Z (Ω)
Saphir	57	7	10	37,5
Silice	84	10	10	50

TABLE IX.2 – Paramètres des antennes dipôles optimisées pour un substrat de saphir et de silice.

Leur fréquence de résonance est fixée à 1 THz, comme le présente la figure IX.5. On constate une émission importante à 1 THz, comme attendu, ainsi qu’une émission non-négligeable aux hautes fréquences. Il s’agit probablement d’une harmonique, l’antenne se comportant comme une cavité

résonante à 1 THz. Notons l'absence d'émission à 2 THz. Ceci s'explique par le fait qu'une harmonique "paire" imposerait un nœud de résonance au niveau de l'émetteur, ce qui est incompatible avec son émission, comme discuté dans la section VII.4.1.

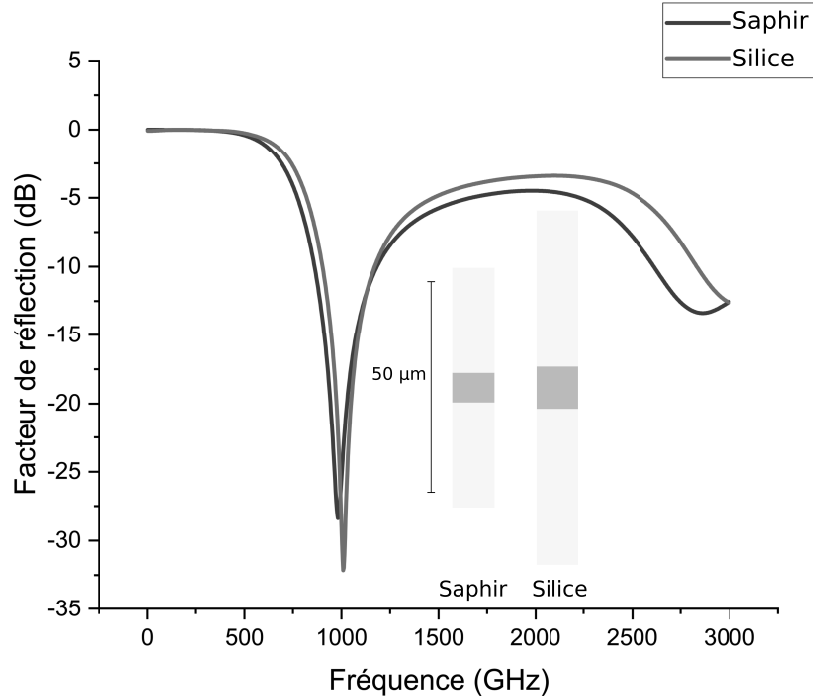


FIGURE IX.5 – Fraction de la puissance réfléchiée en fonction de la fréquence par les antennes dipôles optimisées pour deux substrats.

Le champ lointain des antennes a également été étudié pour les différentes géométries et substrats, à la fréquence d'1 THz. Les études sont présentées sur les figures IX.6 et IX.7. Les champs lointains ont été étudiés en fonction de l'angle θ présenté sur la figure IX.8 (axe de révolution dans le plan du substrat, soit x ou y), pour deux angles phi (axe de révolution normal au plan du substrat, soit z). Pour les quatre diagrammes, on constate un maximum d'amplitude soit à $\theta = 150^\circ$ soit à $\theta = 180^\circ$. La différence d'amplitude est inférieure à 1 dB. Le creux observé pour $\theta = 90^\circ$ s'explique par le fait qu'il y a une interface, brisant la symétrie du système. Notons également que l'émission est maximisée dans la direction du substrat et qu'elle est plus faible en espace libre.

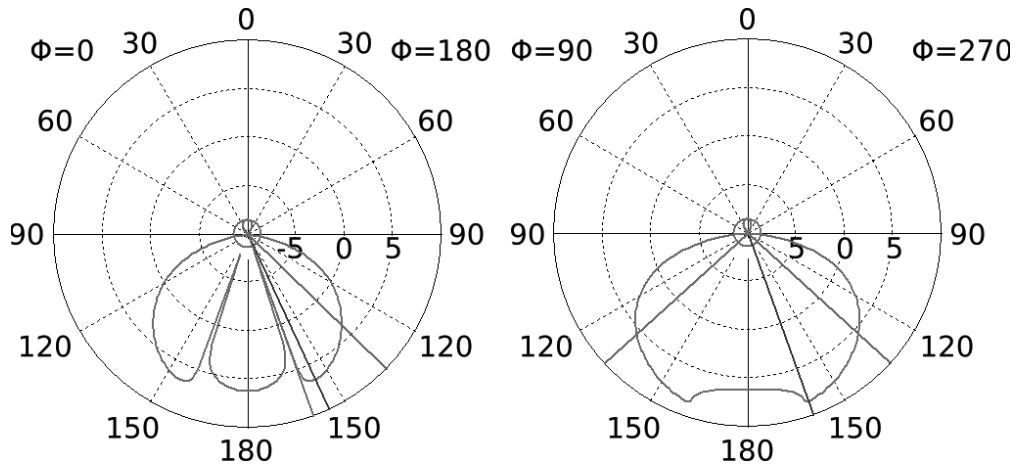


FIGURE IX.6 – Coupe du champ lointain pour $\phi=\{0;90\}^\circ$ pour un substrat de saphir à une fréquence de 1THz. On présente ici l'amplitude du champ en fonction de θ . La partie supérieure représente l'émission en espace libre et la partie inférieure l'émission dans le substrat.

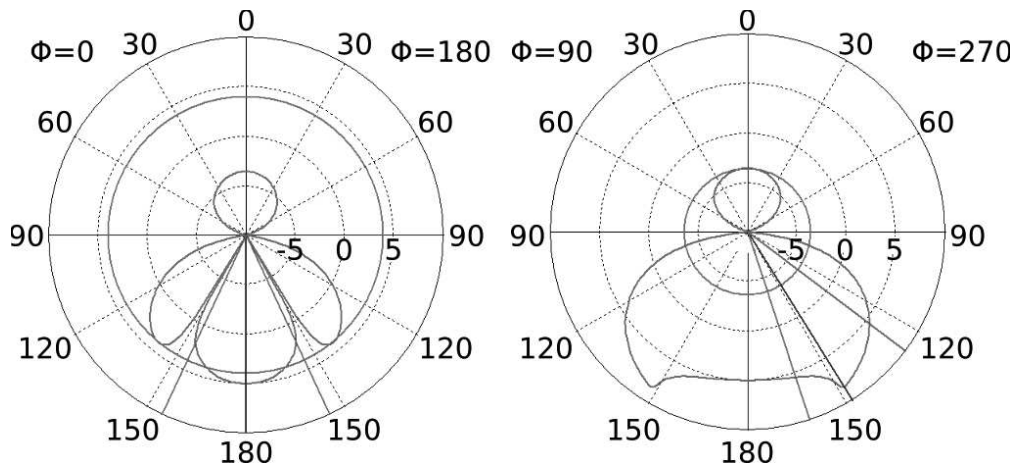


FIGURE IX.7 – Coupe du champ lointain pour $\phi=\{0;90\}^\circ$ pour un substrat de silice à une fréquence de 1THz. On présente ici l'amplitude du champ en fonction de θ . La partie supérieure représente l'émission en espace libre et la partie inférieure l'émission dans le substrat.

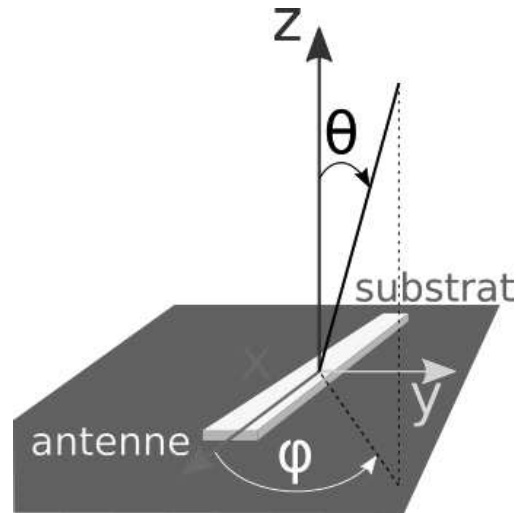


FIGURE IX.8 – Rappel de la géométrie de la structure et des angles ϕ et θ utilisés pour décrire le champ lointain.

Cette étude nous permet d'affirmer que le système de mesures présenté dans la partie VIII.4 est pertinent, puisque l'émission est élevée autour de la direction 180° . Remarquons également deux creux d'émission situés à 160° pour l'antenne sur substrat de saphir et 150° pour l'antenne sur substrat de silice. En calculant l'angle de réfraction limite dans les deux matériaux, on obtient 161° et 149° respectivement, ce qui correspond aux creux d'émission constatés.

Enfin, les antennes dipôles ont toutes une émission polarisée de façon linéaire.

Antenne Bow-tie

Deux designs d'antennes bow-tie ont été proposés pour chaque substrat. Ceci vient du fait que les étapes d'optimisation ont permis de trouver deux optima locaux. Leurs dimensions respectives sont présentées dans le tableau suivant. Leurs paramètres de réflexion sont présentés dans la figure IX.9.

Paramètres (μm)	Le	Ee	Ec	La	Ea	Z (Ω)
Saphir(Compacte)	7.0	10.0	36.35	127.02	77.44	35
Saphir(Large)	7.0	10.0	50.00	314.00	150.00	35
Silice(Compacte)	12.0	5.0	20.54	122.00	75.00	21
Silice(Large)	12.0	5.0	20.54	381.00	240.10	21

TABLE IX.3 – Paramètres des antennes bow-tie optimisées pour un substrat de saphir et de silice.

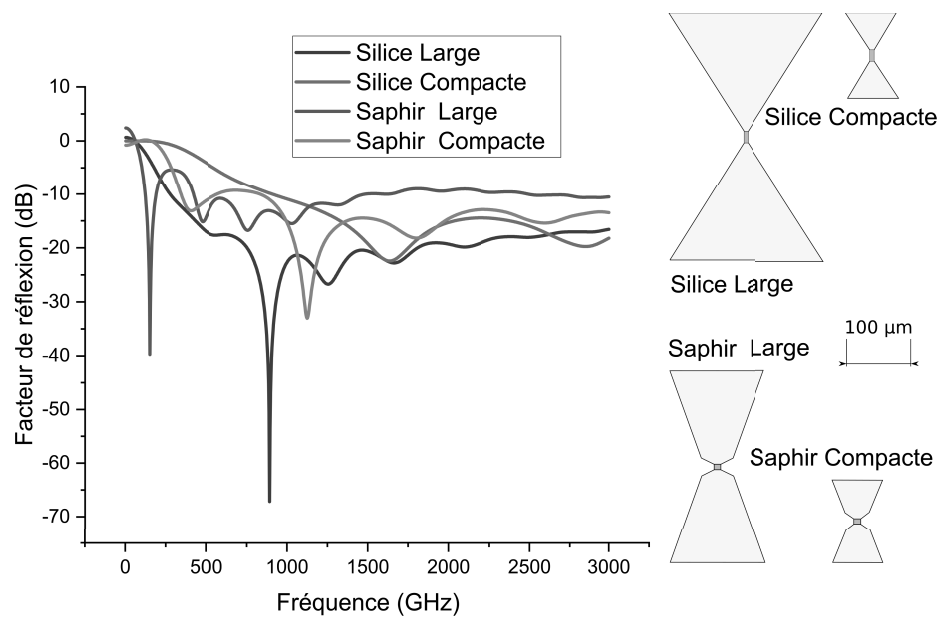


FIGURE IX.9 – Fraction de la puissance réfléchiée en fonction de la fréquence par les antennes bow-tie pour deux substrats et pour deux designs.

La figure IX.9 montre que l'antenne bow-tie large sur le substrat de silice a le plus faible coefficient de réflexion sur la gamme de fréquence la plus large. On dépasse ainsi la barre des -20 dB sur une gamme de fréquences comprise entre 750 et 1800 GHz. L'objectif des -10 dB est atteint à partir de 280 GHz. À l'opposé, l'antenne bow-tie compacte ne devient pertinente que pour des fréquences au-delà de 920 GHz.

L'antenne compacte sur substrat de saphir est efficace à partir de 340 GHz. On constate cependant une remontée de la réflexion au dessus de -10dB de 320 à 590 GHz. Enfin, l'antenne large sur substrat de saphir est pertinente à partir de 420 GHz. On constate là aussi, une remontée du coefficient de réflexion au dessus de -10dB sur une gamme comprise entre 1630 et 2500 GHz.

Les antennes sont donc toutes efficaces à partir de 500 GHz. Il est à présent nécessaire d'étudier le champ lointain de ces géométries pour s'assurer de l'angle de l'émission des antennes.

Champ lointain de l'antenne bow-tie compacte sur un substrat de saphir

Les résultats des différentes antennes en champ lointain sont similaires. Aussi, nous nous intéresserons essentiellement à l'antenne bow-tie compacte sur substrat de saphir avant de réaliser une rapide comparaison avec les autres structures. Son émission en trois dimensions est présentée sur la figure 45 dans l'annexe .11. D'autres figures y sont également présentes.

Nous allons tout d'abord nous intéresser à l'antenne bow-tie compacte sur un substrat de saphir. La figure IX.10 présente une coupe selon le plan de normale $\vec{u}_y$ de l'évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie compacte sur substrat de saphir en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz, par pas de 500 GHz.

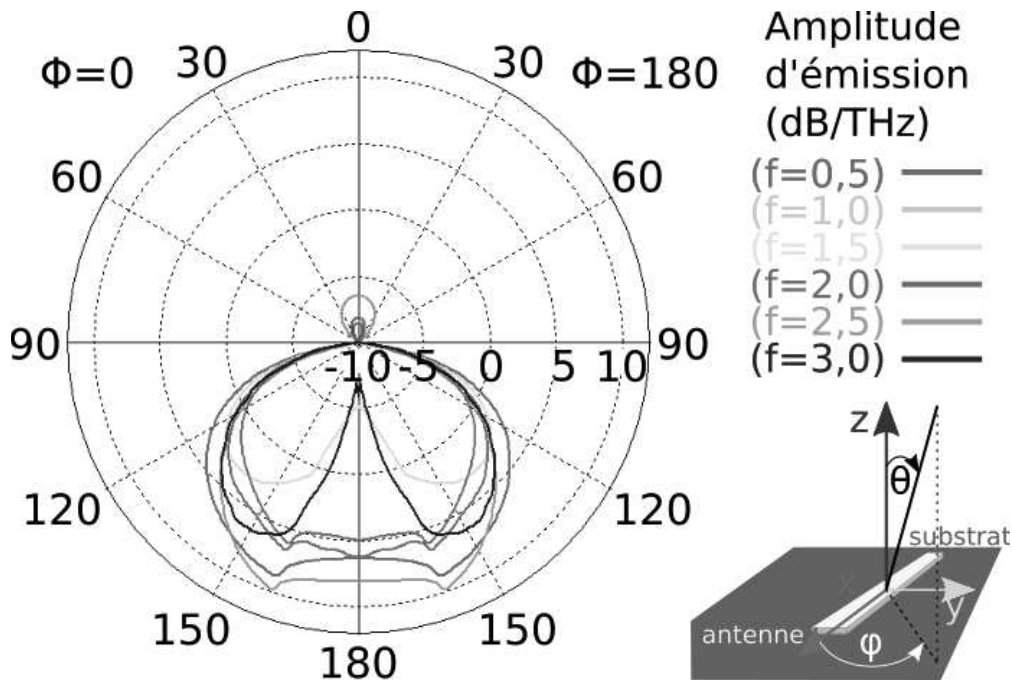


FIGURE IX.10 – Coupe pour $\phi = 0^\circ$ de l'évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie compacte sur substrat de saphir en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz, par pas de 500 GHz. La partie supérieure représente l'émission en espace libre et la partie inférieure l'émission dans le substrat.

Constatons que la direction d'émission du champ lointain de l'antenne bow-tie compacte sur un substrat de saphir varie en fonction de la fréquence. L'émission selon $-\vec{u}_z$ est maximum à 1THz, mais le maximum d'émission reste hors de l'axe. Les lobes principaux se situant autour de 150° . Notons que l'émission selon $-\vec{u}_z$ est négligeable à 1,5 et 3 THz. Ceci pourrait être assimilé à des nœuds de résonance, l'antenne se comportant comme une cavité, comme pour l'antenne dipôle.

La coupe du champ lointain selon le plan de normal $\vec{u}_x$ est présenté sur la figure IX.11, afin de compléter l'étude.

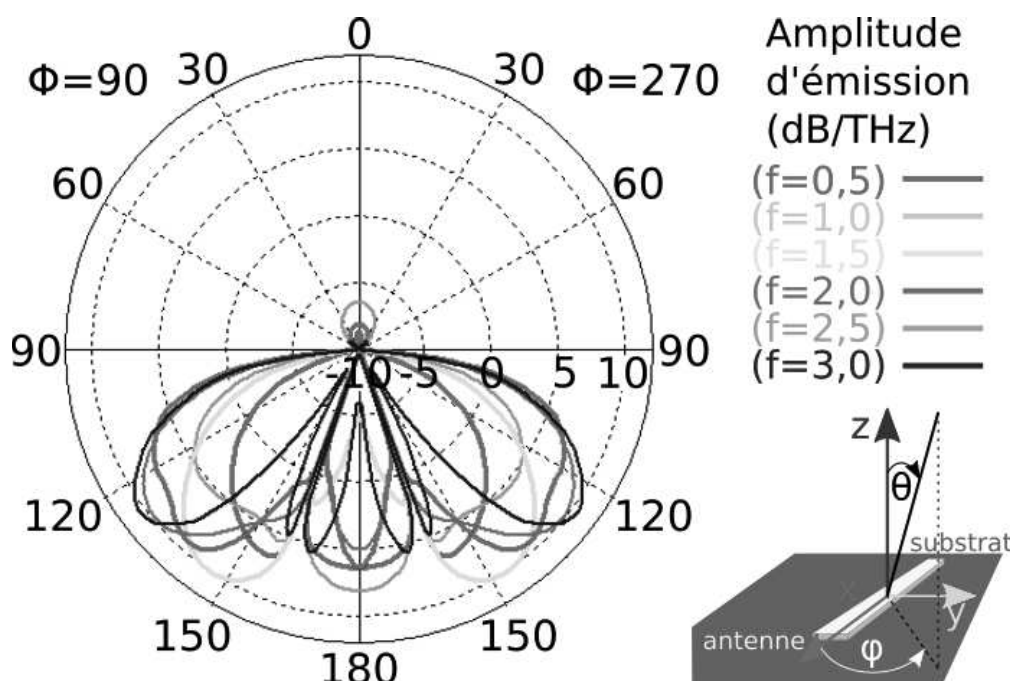


FIGURE IX.11 – Coupe pour $\phi = 90^\circ$ de l'évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie compacte sur substrat de saphir en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz, pour un pas de 0,5 THz. La partie supérieure représente l'émission en espace libre et la partie inférieure l'émission dans le substrat.

Le comportement de l'antenne est similaire à celui constaté selon l'autre plan de coupe, avec une émission importante selon $-\vec{u}_z$ pour certaines fréquences (ici 1 THz et 2 THz) et une émission selon les lobes secondaires pour d'autres fréquences (ici 1,5 et 3 THz).

L'antenne Bow-Tie large sur substrat de saphir se comporte de façon similaire, à ceci près que pour $\phi = 0$, les lobes compris entre 100 et 150 ° sont toujours les lobes principaux. On retrouve une émission faible selon $-\vec{u}_z$ à certaines fréquences (ici 1,25 THz et 3 THz). Constatons également que le comportement en cavité est plus prononcé, ce qui est peut-être lié à la taille plus importante de l'antenne.

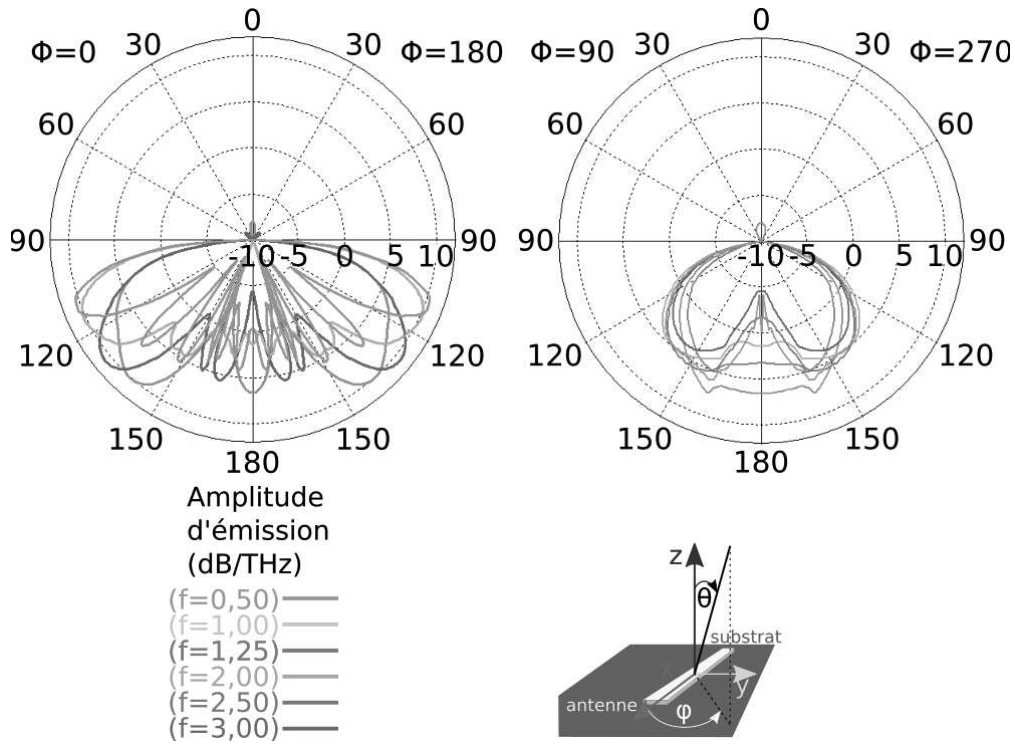


FIGURE IX.12 – Coupe selon les plans $\vec{u}_x$ à gauche et $\vec{u}_y$, à droite, de l'évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie large sur substrat de saphir en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz, pour un pas de 0,5 THz. 1,5 THz a été remplacé par la courbe à 1,25 THz, cette dernière permettant une meilleure description des résultats. La partie supérieure représente l'émission en espace libre et la partie inférieure l'émission dans le substrat.

L'antenne bow-tie compacte sur substrat de silice est très similaire à la structure sur substrat de saphir (voir figures 42,43,45 et 47 de l'annexe .11). Notons toutefois l'émission plus importante en espace libre. Remarquons également une amplitude d'émission maximale selon $-\vec{u}_z$ à 1,25 THz. Le minima à 3 THz est présent dans les deux cas.

L'antenne bow-tie large sur substrat de silice est aussi similaire à la structure sur substrat de saphir (voir figures 38,39,40 et 41 de l'annexe .11). Là aussi, l'émission est plus importante en espace libre et l'amplitude d'émission maximale selon $-\vec{u}_z$ se situe à 1,25 THz. Un minima à 3 THz est également présent. Les creux d'émissions sont situés à 150 °.

Antenne spirale

Un design d'antenne spirale a été proposé pour chaque substrat. Leurs dimensions respectives sont présentées dans le tableau suivant. Leurs paramètres de réflexion sont présentés dans la figure IX.13.

Nom des paramètres	a (μm)	a_0 (μm)	k (u.a)	γ (u.a)	L (μm)	L_c (μm)	h (μm)	$Z(\Omega)$
Saphir	0.02982	30	0.836728	1.89	65	15	6	125
Silice	0.03145	55	1,39749	2	75	25	8.75	143

TABLE IX.4 – Valeurs des paramètres de l'antenne spirale.

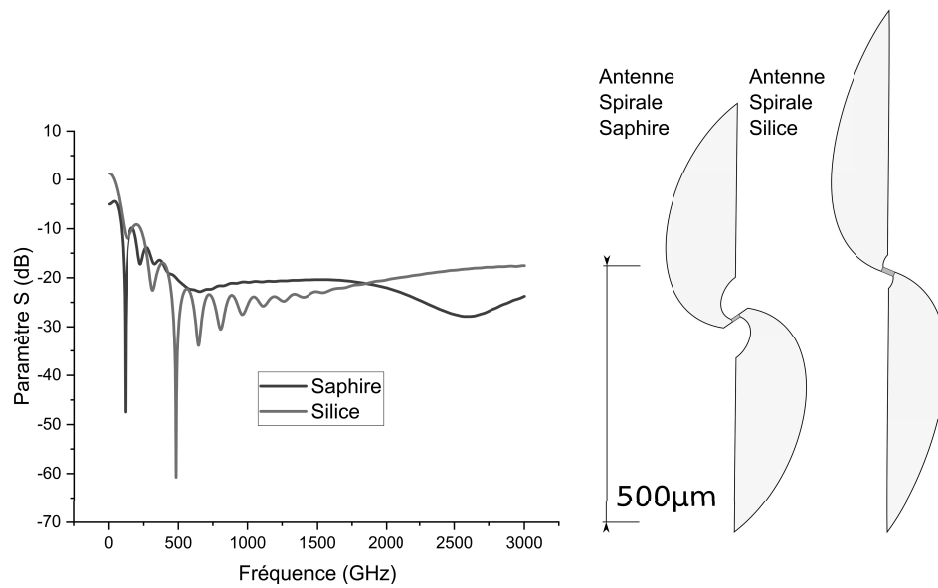


FIGURE IX.13 – Fraction de la puissance réfléchie en fonction de la fréquence par les antennes spirales optimisées pour les deux substrats.

Le coefficient de réflexion des antennes est extrêmement bas sur une large bande de fréquence. En effet, les deux géométries ont un facteur de réflexion autour de -10 dB dès 90 GHz pour l'antenne sur substrat de saphir et 120 GHz pour le substrat de silice. Les deux géométries passent en dessous de cette limite de façon définitive pour 170 et 240 GHz respectivement. Elles atteignent également un coefficient de réflexion de -20 dB à 490 et 440 GHz, respectivement.

Les antennes sont donc toutes deux efficaces à partir de 500 GHz. Il est à présent nécessaire d'étudier le champ lointain de ces géométries pour s'assurer de l'angle de l'émission des antennes.

Champ lointain de l'antenne spirale sur un substrat de saphir

Nous allons ici présenter le champ lointain de l'antenne spirale sur substrat de saphir. Celui-ci est présenté sur la figure IX.14 qui est une représentation en échelle de couleur à 3 dimensions.

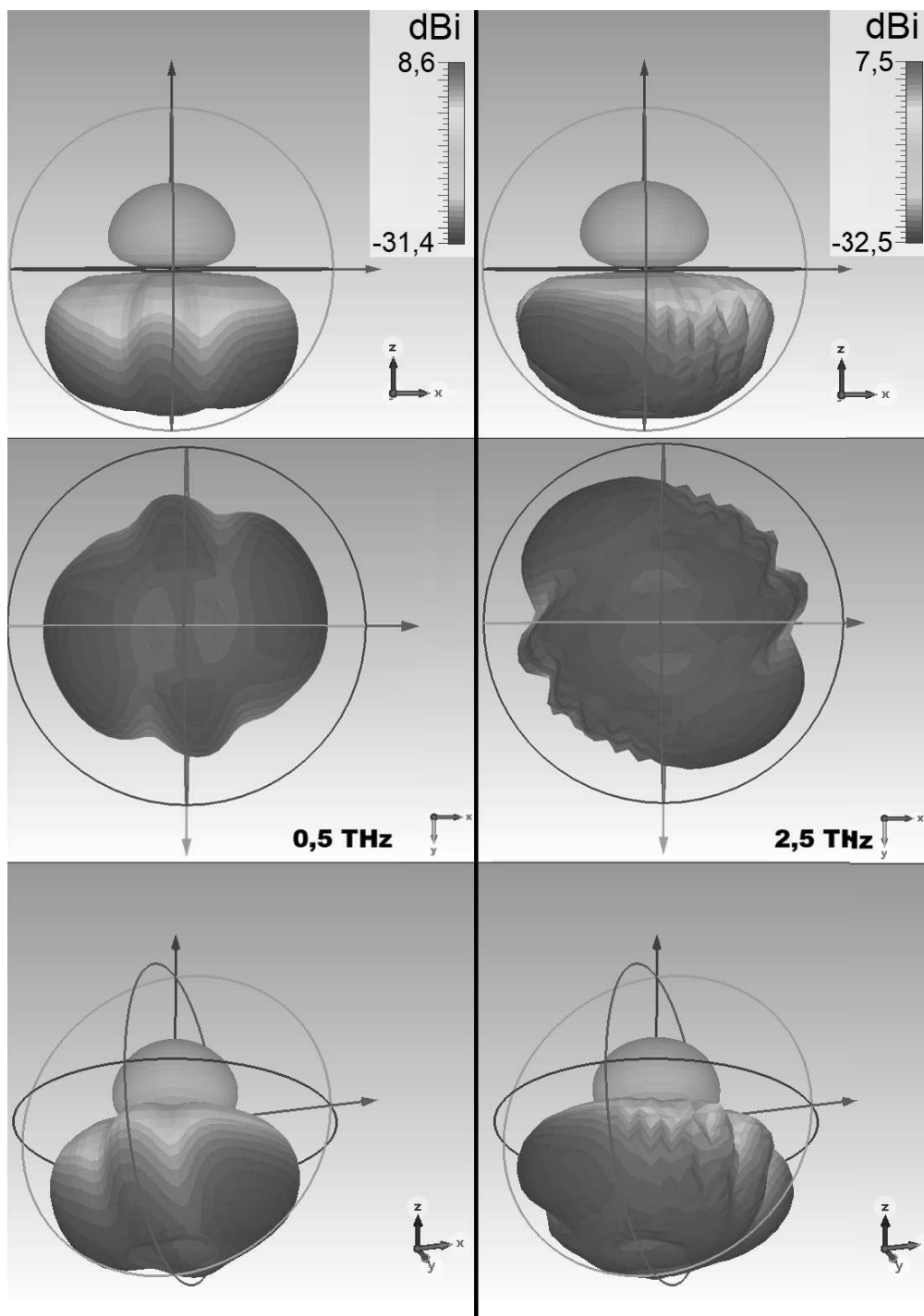


FIGURE IX.14 – Évolution du champ lointain émis par une antenne spirale sur substrat de saphir pour des fréquences de 500 GHz (gauche) et 2,5 THz (droite). La partie supérieure représente l'émission en espace libre et la partie inférieure l'émission dans le substrat. Les trois lignes présentent des vues depuis des angles différents permettant de localiser les minima et maxima d'émission.

On constate la présence de lobes principaux en dehors du cône d'intérêt. Si ceux-ci sont présents à toutes les fréquences, l'émission dans le cône d'intérêt reste supérieure à l'émission isotrope (facteur à 5 dB jusqu'à 1,5 THz, diminuant à 3 dB vers 3 THz).

Intéressons-nous à présent à la polarisation de l'émission de l'antenne. Comme on le voit sur les figures IX.15, les rapports sont strictement inférieurs à 10 dans le cône d'intérêt, et inférieur ou égal à 3 jusqu'à 1 THz. Ceci montre que l'émission est essentiellement elliptique et circulaire contrairement aux antennes décrites plus haut qui émettaient toutes des ondes polarisées linéairement, parallèlement à l'axe de l'antenne.

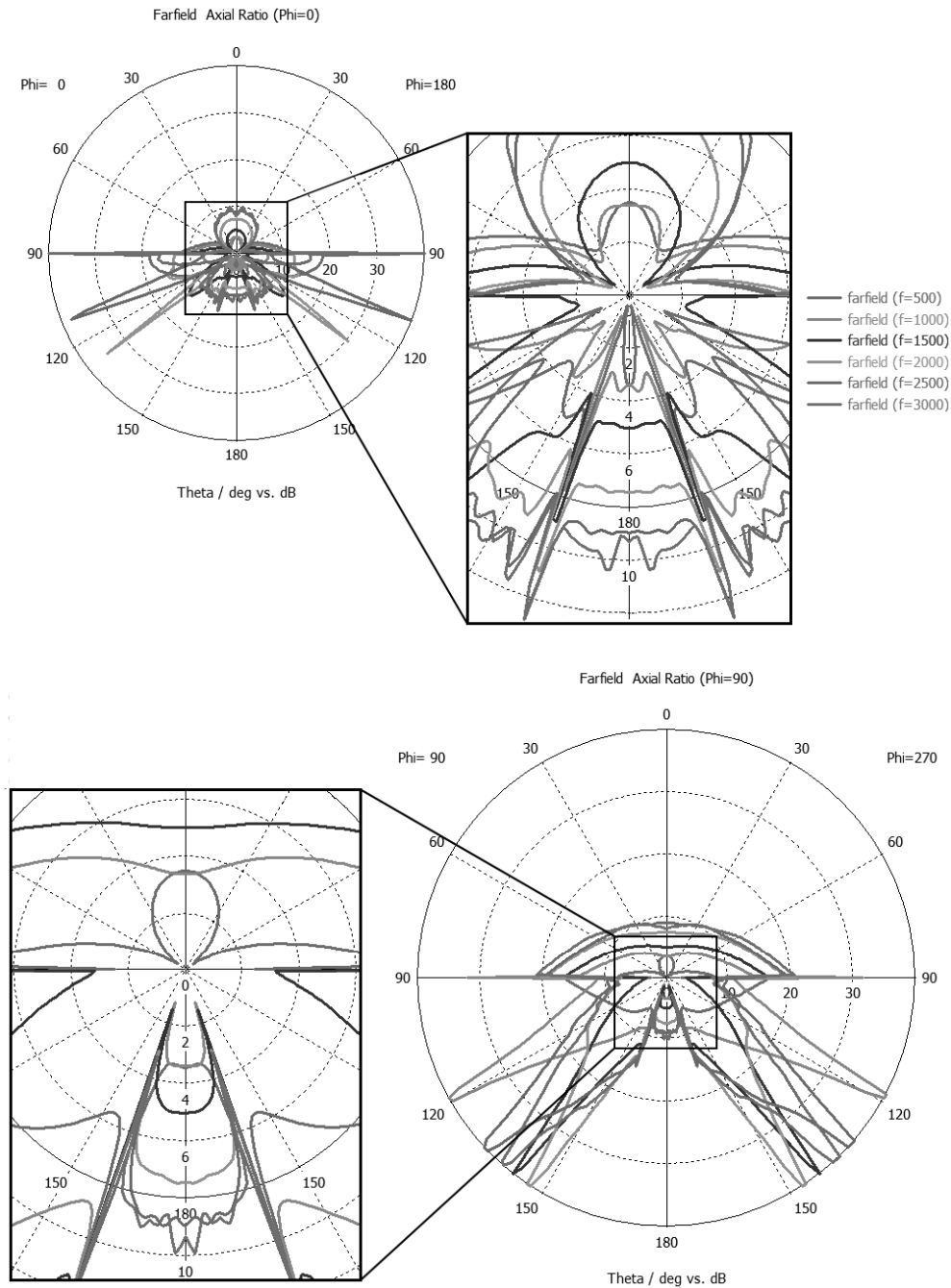


FIGURE IX.15 – Polarisation du champ lointain d'une antenne spirale sur substrat de saphir en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz avec un échantillonnage de 500 GHz.

Ainsi, si l'antenne spirale sur substrat de saphir est particulièrement favorable en termes de bande passante, la polarisation de cette émission est susceptible de réduire sa détection par notre système de mesures, qui n'est sensible qu'à une direction de polarisation. Le signal peut être ainsi réduit de 50% au maximum.

IX.2 Résultat de la fabrication

Plusieurs tests ont été réalisés afin de prendre en main les processus de fabrication. Ces premiers échantillons ont été réalisés sur un substrat de silicium. Par la suite, quatre échantillons ont été réalisés : un sur un substrat de silicium (poli deux faces), deux sur des substrats de saphir (un poli une face et un poli deux faces) et un sur un substrat de silice (poli deux faces). Les résultats sont présentés ci-après.

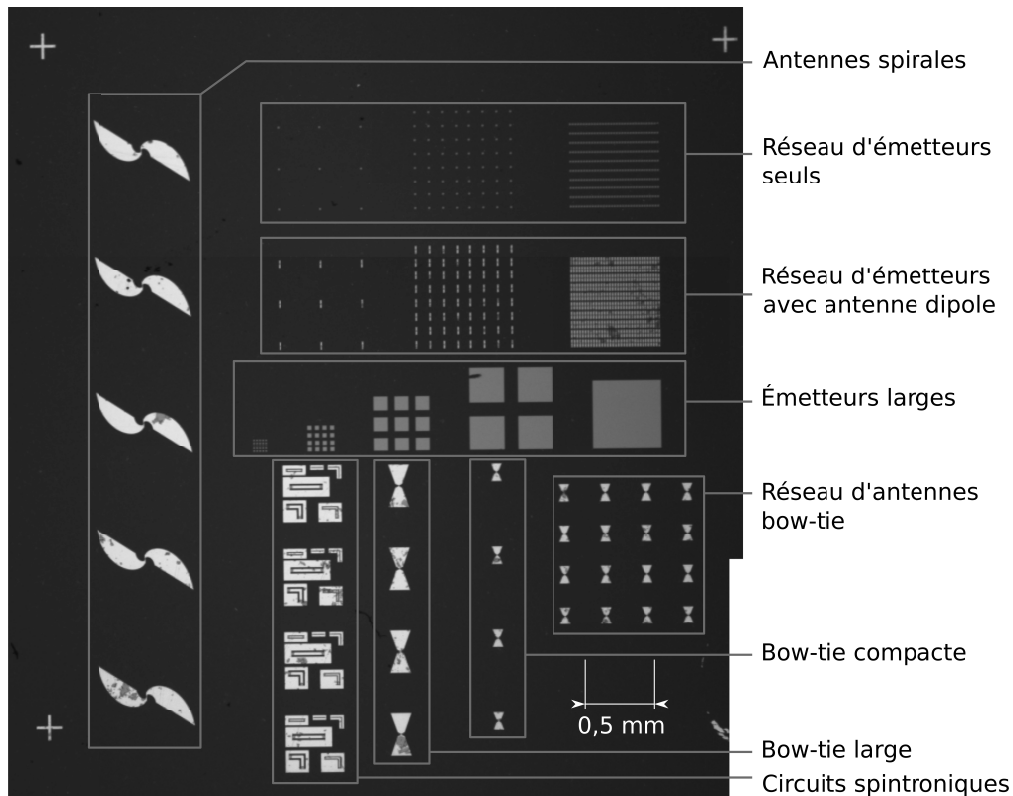


FIGURE IX.16 – Cartographie de l'échantillon fabriqué sur un substrat de saphir poli sur une face.

Les géométries fabriquées sur l'échantillon de saphir ont permis de réaliser les mesures présentées dans la section suivante. Un zoom sur les géométries est présenté dans la figure IX.17

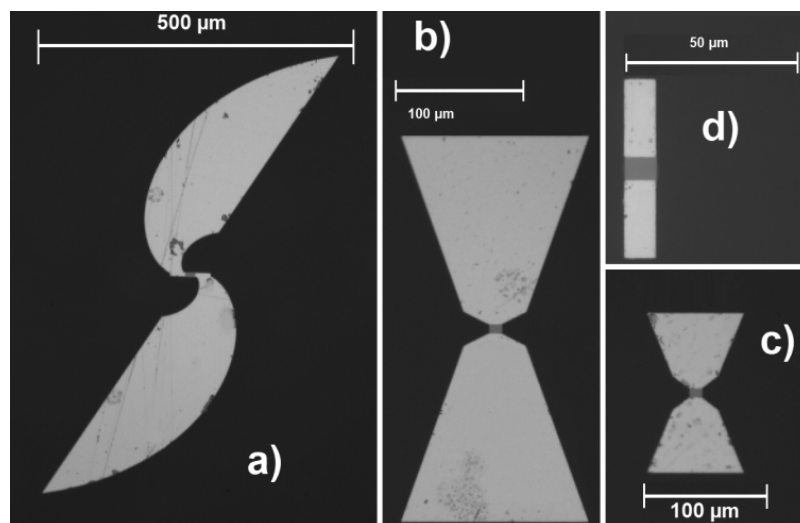


FIGURE IX.17 – Géométries d’antennes adaptées au substrat de saphir. Géométries d’antennes a) Spirale, b) bow-tie étendue, c) bow-tie compacte, d) dipôle.

Constatons la présence de taches sombres sur l’antenne. Ceci est probablement dû à des portions de la couche métallique déposées sur la résine qui se redéposent sur la structure lors du lift off.

IX.3 Résultats des mesures

Nous allons ici présenter les résultats des mesures ayant permis de caractériser l’émission des différentes géométries.

IX.3.1 Résultats pompe focalisée

Nous allons commencer par décrire les résultats d’une campagne de mesures permettant d’observer l’émission de chaque émetteur de façon individuelle, pour les différents substrats. Ceci permet de comparer entre eux les émetteurs équipés des différentes géométries d’antennes ainsi que les émetteurs dépourvus d’antenne.

Comparaison des différents substrats

Dans un premier temps, nous allons comparer l’émission de la tri-couche pour les différents substrats. L’émetteur utilisé est un carré large de $500\ \mu\text{m}$ de côté sur différents substrats. Les conditions de pompage sont identiques, les différents émetteurs ayant été excités par une pompe de $31\ \mu\text{m}$ de diamètre pour une puissance de $0,8\ \text{mW}$. On constate que l’amplitude maximale est obtenue pour l’émetteur sur le saphir poli une face. Je n’explique pas les différences d’amplitude d’émission entre les différentes mesures réalisées sur les différents substrats.

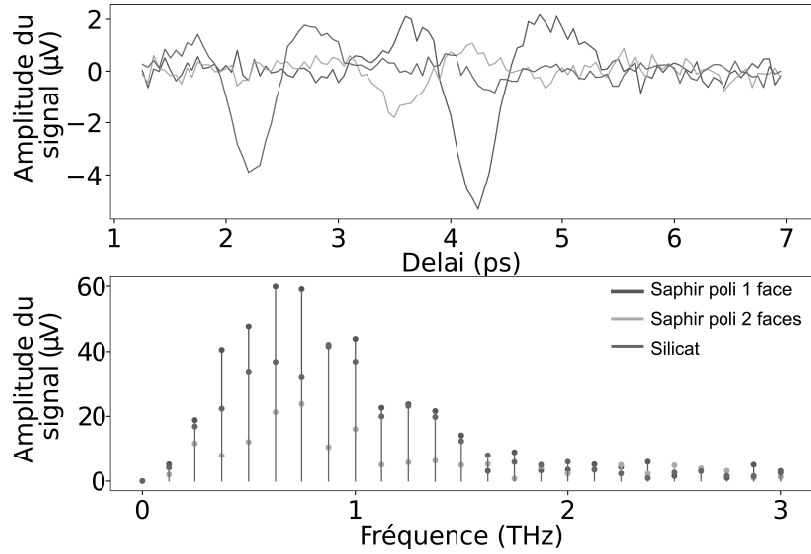


FIGURE IX.18 – Comparaison de l’émission entre émetteurs larges identiques de $500\ \mu\text{m}$ de côté sur différents substrats. En vert foncé, le saphir poli une face, en vert turquoise le saphir poli deux faces et en kaki le silice poli deux faces.

Pour la suite, nous allons donc principalement nous concentrer sur les mesures réalisées sur le substrat de saphir poli une face, le signal étant le plus important, nous permettant ainsi d’avoir des mesures moins bruitées.

Émetteurs sans antennes (large et discret)

Les signaux obtenus pour un émetteur carré de $500\ \mu\text{m}$ de côté, qualifié d’émetteur large, et celui obtenu pour un rectangle de $10 \times 13\ \mu\text{m}$ de côté sont présentés sur la figure IX.18. On constate que le signal de l’émetteur large est bien plus important, d’un facteur 30 environ.

Avec un modèle naïf, on peut supposer que l’éclairage est uniforme sur une surface estimée à partir de la largeur à mi-hauteur du faisceau laser, soit une aire totale à considérer de $961\ \mu\text{m}^2$. L’aire d’un petit émetteur est de $130\ \mu\text{m}^2$. Il y a donc environ $961/130 \approx 7$ fois plus d’émetteur éclairé dans le cas de l’émetteur étendu que dans le cas du petit émetteur. Le rapport des signaux mesurés (30) est 4 fois plus grand que ce rapport de surfaces (7), comme présenté dans la figure IX.19. Il pourrait donc y avoir un facteur supplémentaire à prendre en compte pour expliquer ce résultat, comme par exemple la directivité de l’antenne, meilleure dans le cas d’un émetteur étendu que pour un émetteur plus ponctuel. Ce dernier a, en effet, tendance à rayonner dans un angle solide plus grand, se traduisant par un signal moindre dans le cas d’une détection directionnelle telle que nous l’avons utilisé dans notre montage de caractérisation.

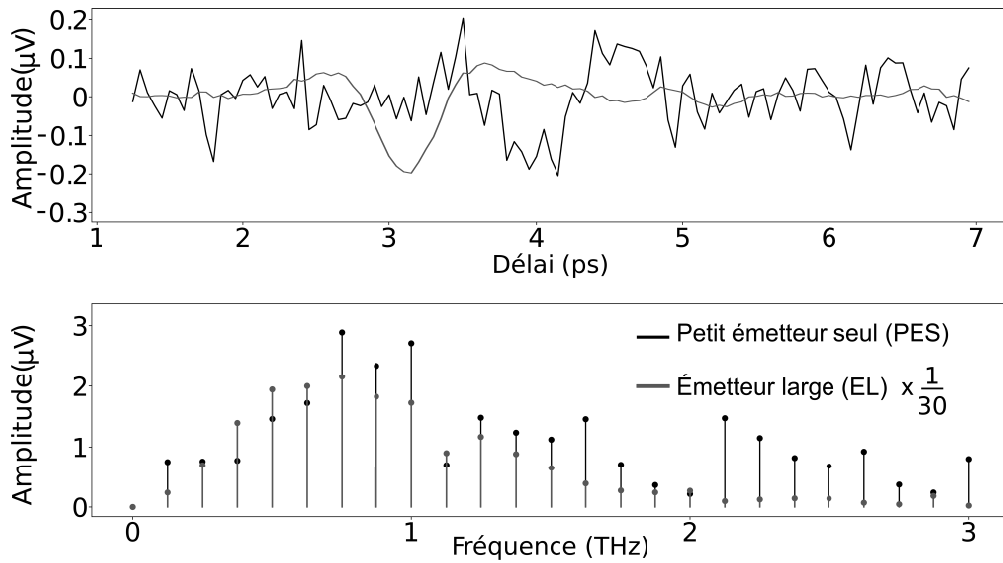


FIGURE IX.19 – Comparaison de l'émission entre un émetteur de 10 par 13 μm de côté (PES) et un émetteur de 500 μm de côté, tous deux excités par une pompe de 31 μm de diamètre. Le signal émis de l'émetteur large est divisé par 30.

Émetteurs avec antenne

Les mesures des émetteurs équipés des différentes géométries d'antennes ont permis de mesurer les signaux représentés sur la figure IX.20. On constate que jusqu'à 1,5 THz un signal non nul est détecté, et les différentes géométries d'antenne augmentent l'émission détectée, en particulier entre 0 et 1 THz. On remarque que les géométries bow-tie compactes et larges ont la plus haute amélioration d'émission. La géométrie spirale, elle, donne une amélioration plus modeste d'émission, comparable à celle de l'antenne dipôle. Ceci peut éventuellement s'expliquer par le fait que le montage ne peut détecter que la polarisation linéaire de l'émission THz et que les simulations, ainsi que la littérature [42] semblent montrer que l'antenne spirale génère une émission avec une polarisation circulaire. On ne détecterait ici que la partie polarisée linéairement du signal. On peut cependant remarquer que l'amplitude du signal de l'antenne spirale est extrêmement stable (environ 1,5 μV) entre 0,2 et 1 THz, là où le signal issu des autres géométries est plus "piqué", avec même des pics secondaires dans le cas de l'antenne bow-tie large.

Remarquons enfin que l'amplitude de tous les signaux s'effondre à partir d'1 THz. Ceci peut être expliqué par plusieurs facteurs : la directivité des antennes, qui, d'après les simulations, diminue quand la fréquence augmente, mais aussi la sensibilité de notre système de détection qui chute vraisemblablement à haute fréquence.

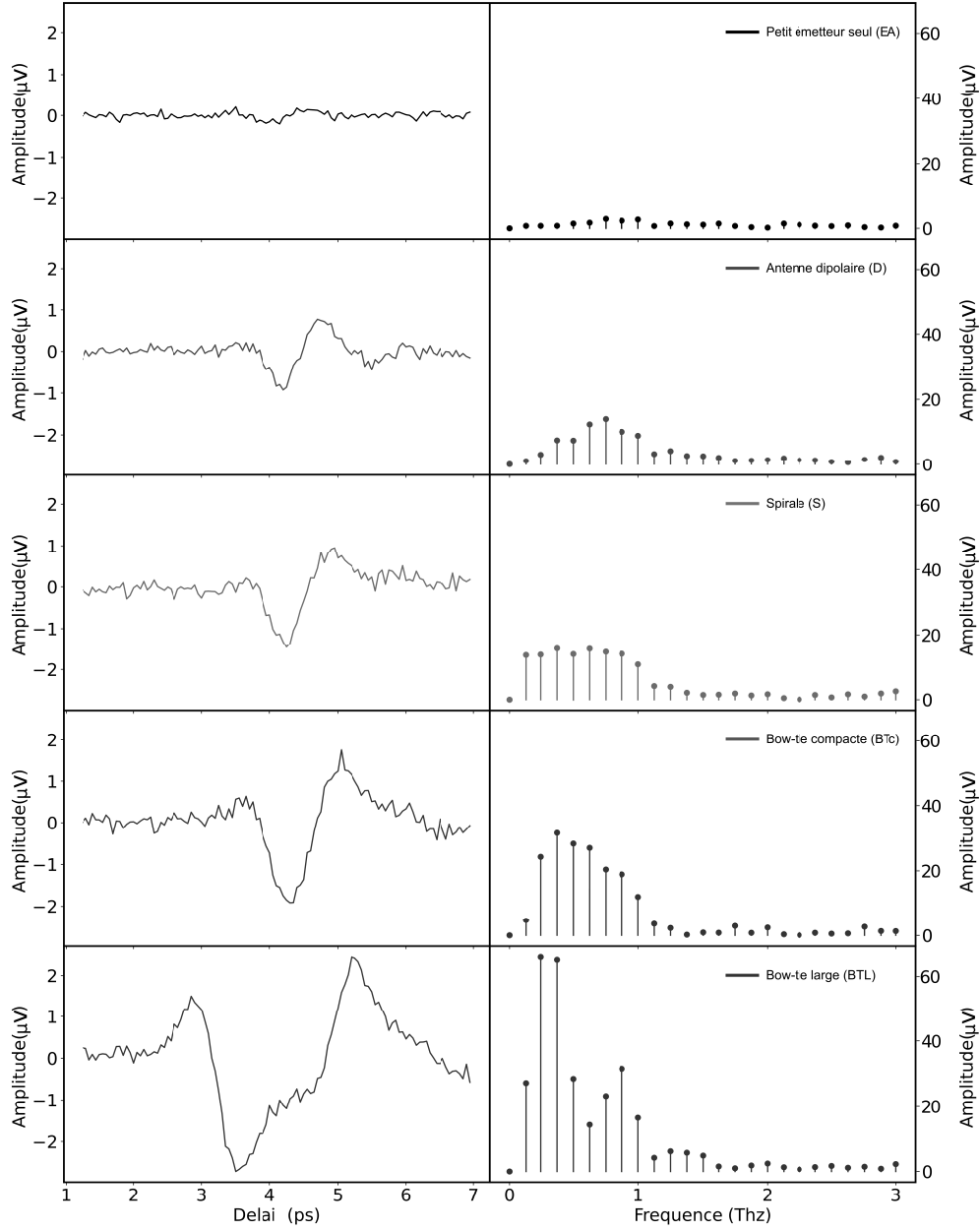


FIGURE IX.20 – Comparaison de l’émission d’émetteurs identiques équipés de différentes géométries d’antennes En noir, l’émetteur seul, en rouge sombre, un émetteur équipé d’une antenne dipôle, en rouge clair, un émetteur équipé d’une antenne spirale, en violet, un émetteur équipé d’une antenne bow-tie compacte, et en bleu sombre, un émetteur équipé d’une antenne bow-tie large.

Notons que des mesures pour tenter d’évaluer l’impact de l’excitation optique de l’antenne ont également été réalisées. Pour ce faire, l’antenne bow-tie large a directement été excitée, en laissant l’émetteur spintronique

en dehors de la pompe. Nous n'avons obtenu que du bruit.

Nous avons également réalisé des mesures avec le champ magnétique appliqué à l'émetteur inversé. Les résultats sont présentés dans la figure IX.21.

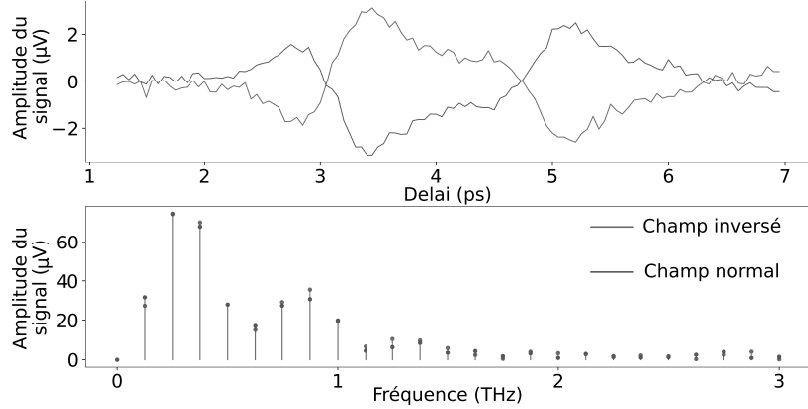


FIGURE IX.21 – Emission d'une antenne bow-tie compacte sur substrat de saphir avec un champ orienté dans une direction (appelée normale), en vert sur le graphique, comparée à l'émission de la même antenne, sur le même substrat mais avec un champ orienté dans la direction opposée (appelée inverse), en rouge sur le graphique.

On constate que le signal est bien inversé, et pratiquement identique dans les deux cas, ce qui est compatible avec le principe de fonctionnement de l'émetteur spintronique [98, 76].

IX.3.2 Résultats obtenus avec la pompe défocalisée

Nous allons maintenant décrire les résultats obtenus avec une pompe défocalisée. Ces mesures permettent d'obtenir des données moins bruiteuses pour les réseaux et l'émetteur large, car le signal est plus important, étant émis par une plus large surface d'émetteur ou par plusieurs émetteurs isolés. Nous avons également remesuré les émetteurs individuels équipés de géométries trop grandes pour qu'ils soient placés en réseau. La puissance de la pompe défocalisée était de 35 mW environ avec un diamètre de 256 μm , pour une fluence de $6,8 \times 10^5 \text{ W/m}^2$.

Émetteurs sans antennes et réseaux

La figure IX.22 compare l'émission d'un émetteur large de 500 μm de côté avec celle d'environ 40 émetteurs de 10 par 13 μm de côté. On constate que l'émission de l'émetteur large est plus importante.

L'émission supérieure de l'émetteur large semble s'expliquer ici encore par un raisonnement géométrique. En effet, la pompe, représentant un disque de 256 μm de diamètre, excite une aire plus importante lorsqu'elle est dirigée sur l'émetteur large que sur le réseau de petits émetteurs. Lorsque le rapport

des aires est fait, celui-ci nous donne un facteur 13. En divisant l'amplitude de l'émission détectée lors de la mesure du signal issu du carré large par ce facteur, les deux signaux ont des amplitudes similaires.

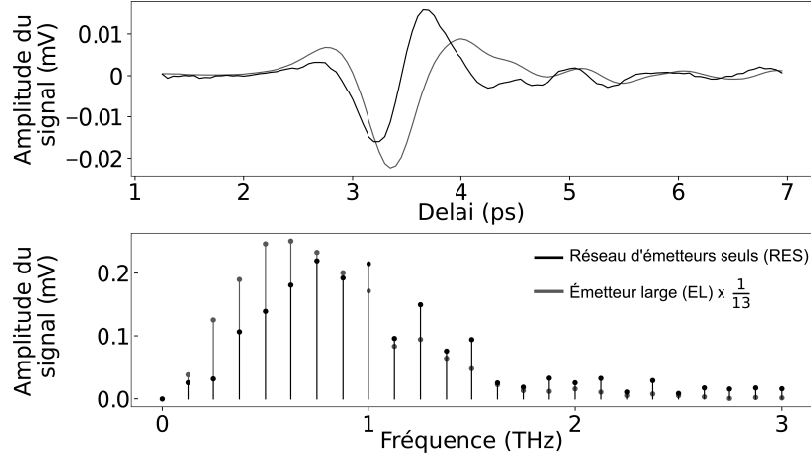


FIGURE IX.22 – Comparaison de l'émission entre une centaine d'émetteurs de 10 par $13 \mu m$ de côté (PES) et un émetteur de $500 \mu m$ de côté, excités dans les deux cas par une pompe de $256 \mu m$ de diamètre. Le signal émis de l'émetteur large est ici divisé par 13, correspondant au rapport entre l'aire éclairée de l'émetteur large et l'aire des petits émetteurs.

Ce résultat confirme que l'amplitude du signal évolue de façon presque linéaire avec l'aire excitée. Ainsi, la façon la plus simple d'obtenir un signal de grande amplitude est d'utiliser un émetteur large, excité de façon uniforme. Cependant, l'emploi d'antenne continue de faire sens dans une optique d'efficacité du système. Ceci se vérifie ainsi lorsque l'on compare l'amplitude émise par un réseau d'émetteurs nus avec un réseau d'émetteurs équipés d'antennes dipôles (fig IX.23). Le signal est amélioré par un facteur 2, confirmant les mesures réalisées avec une pompe focalisée.

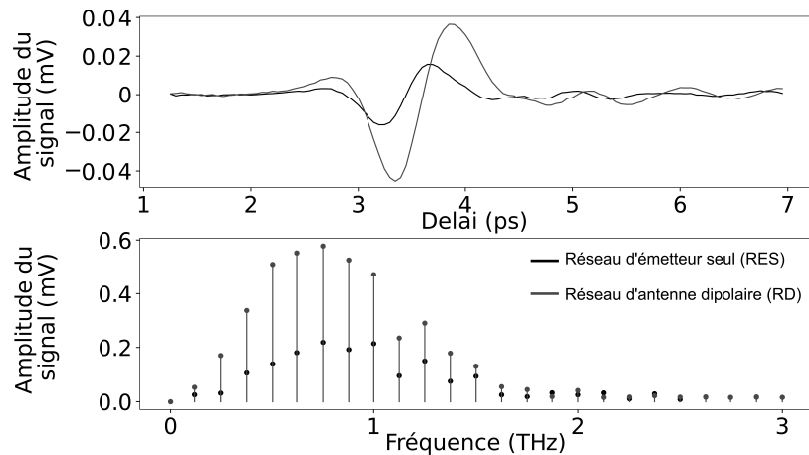


FIGURE IX.23 – Comparaison de l'émission de deux réseaux d'émetteurs identiques. En noir le signal détecté issu d'émetteurs nus, en rouge sombre, le signal détecté issu d'émetteurs équipés d'antennes dipôles.

Comparons enfin l'émission d'un émetteur seul, excité par la pompe focalisée et équipé d'une antenne dipôle à un réseau d'émetteurs équipés de la même géométrie d'antenne. Les résultats sont présentés sur la figure IX.24. L'amplitude de l'émetteur seul a été multipliée par 50, afin de compenser l'émission des multiples émetteurs du réseau, la fluence étant à peu près la même dans les deux mesures. Constatons que les spectres sont similaires.

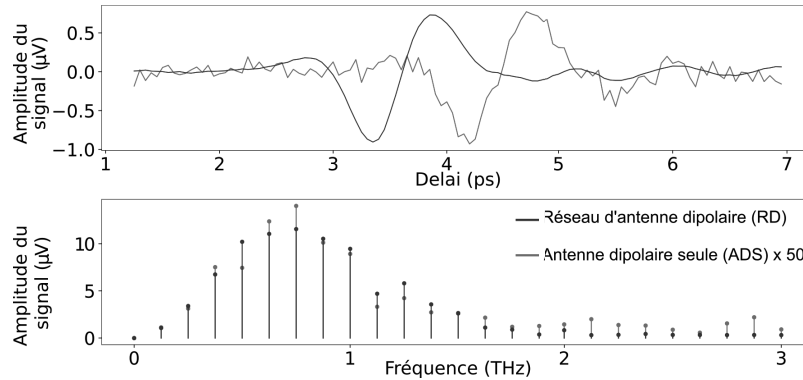


FIGURE IX.24 – Comparaison de l'émission entre un réseau d'émetteurs dipolaires et un émetteur dipolaire seul. En bleu, un réseau d'antennes dipolaires, en rouge, une antenne dipolaire seule. L'amplitude de l'antenne dipolaire seule a été multipliée par 50.

Émetteurs avec antenne

L'amplitude de l'émission des réseaux est bien plus importante que celle des émetteurs seuls équipés des antennes larges. L'intérêt de ces antennes vient donc de l'amélioration de l'émission sur une large gamme de spectre. L'émission dans des directions non couvertes par le système de mesures limite cependant la démonstration.

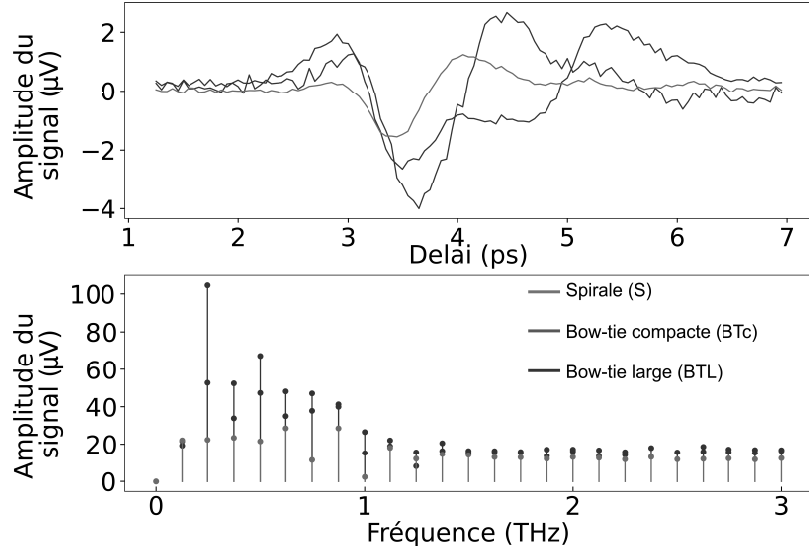


FIGURE IX.25 – Comparaison de l’émission d’émetteurs équipés d’antennes larges et excités par une pompe large. En rouge, l’antenne spirale, en violet l’antenne bow-tie compacte, en bleu l’antenne bow-tie large.

Nous constatons que les signaux sont similaires à ceux obtenus lors des mesures réalisées avec une pompe focalisée. Constatons également que les signaux ont des amplitudes similaires à ceux présentés sur la figure IX.20. Ceci confirme l’absence d’impact de l’excitation optique des bras de l’antenne. Constatons cependant que l’amplitude crête à crête de l’antenne bow-tie large est un peu plus faible que dans le cas de la pompe focalisée. Ceci peut s’expliquer par le fait que de nombreuses mesures ont été réalisées sur cette géométrie, et sur cet émetteur en particulier. Comme expliqué dans la partie VIII.4.2, la fluence utilisée était à la limite de la dégradation de l’échantillon, et il n’est pas impossible qu’une légère ablation de la couche supérieure de platine, principale responsable de l’effet ISHE, explique cette diminution d’émission.

IX.4 Comparaison entre simulation et expériences.

La figure IX.26 permet de comparer l’émission réelle des émetteurs équipés des différentes géométries d’antennes avec les simulations réalisées. On constate un accord aux basses fréquences, concernant les pics d’émissions, et une largeur de bande plus élevée pour les antennes larges.

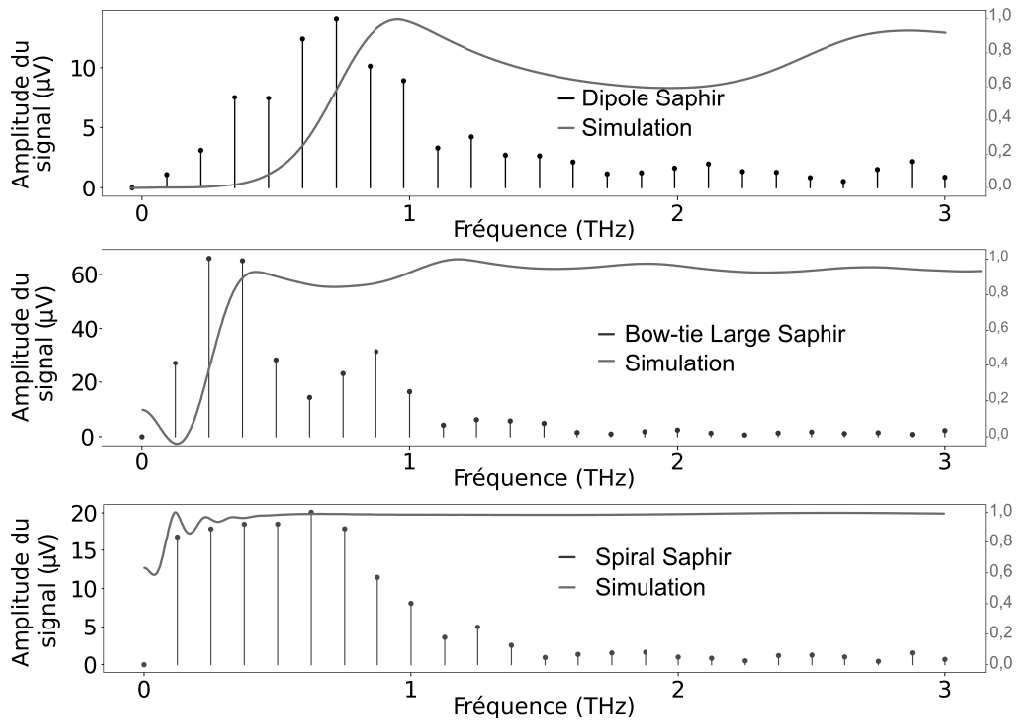


FIGURE IX.26 – Comparaison de l’émission d’émetteurs équipés d’antennes avec, en rouge, les résultats issus des simulations sous la forme $\sqrt{1 - S^2}$. Du haut vers le bas, l’antenne dipôle, l’antenne bow-tie, l’antenne spirale.

Des différences sont cependant constatées dans les résultats de la simulation par rapport aux résultats expérimentaux, notamment un décalage du pic d’émission vers les basses fréquences, et une émission presque nulle aux hautes fréquences pour les résultats expérimentaux. Ceci s’explique néanmoins partiellement par les effets de champ lointain, en particulier aux hautes fréquences, puisque $1 - S^2$ est l’émission isotrope et que le montage expérimental recouvre un faible angle solide par rapport à l’ouverture totale.

Enfin, la simulation diffère de la réalité expérimentale sur d’autres points. Tout d’abord, l’échantillon n’a pas une épaisseur infinie, ce qui a pour effet de transformer le substrat en une cavité de Fabry-Perot. Bien que des simulations aient été réalisées dans ces conditions, le modèle n’a pas été conservé afin de limiter les effets parasites et de faciliter les études. Ensuite, le substrat, comme l’antenne sont responsables de pertes n’ayant pas été incluses dans les simulations.

IX.5 Conclusion générale de la partie II

Dans cette partie de mon travail, j'ai étudié comment le phénomène d'émission THz spintronique pouvait être modifié en reliant l'émetteur spintronique à une antenne électromagnétique. Le principe de cette étude est représenté sur la figure VII.1.

L'émetteur spintronique utilisé, présenté dans [98], est composé d'une couche de métal ferromagnétique (en rose dans l'encart de la figure VII.1) encadrée de deux couches métalliques non-magnétiques (en bleu).

Lors d'une excitation par une impulsion laser femtoseconde, la couche magnétique génère un courant d'électrons chauds. Le courant ainsi généré est associé à un courant de spin j_s du fait de la polarisation en spin des électrons dans la couche ferromagnétique. Un courant de charge j_c est créé par effet Hall de spin inverse dans les couches non-magnétiques adjacentes. La forme temporelle de l'impulsion de courant est reliée à l'enveloppe de l'excitation optique. Le courant électrique se comporte alors comme une source de champ électrique THz rayonné.

Une première étape a été consacrée à des simulations électromagnétiques de différentes géométries d'antennes en utilisant le logiciel CST studio. L'objectif était de chercher des géométries d'antenne pouvant améliorer l'émission en espace libre des émetteurs térahertz spintroniques et de tester plusieurs substrats (section IX.1.2). Les géométries développées sont présentées dans la figure IX.17. Toutes présentent un spectre d'émission centré autour de 1 THz. On distingue des géométries larges bandes (a, b, c) et une géométrie bande étroite (d).

La deuxième étape a été de fabriquer les antennes par deux étapes de lithographie. En effet, l'échantillon est reçu de telle sorte que l'émetteur est présent sur tout le substrat. Les trois couches le composant, choisies comme suit : Pt(3nm)/Co(4nm)/Ta(3nm), ont été déposées par pulvérisation cathodique à l'Institut Jean Lamour (collaboration Michel Hehn). L'échantillon final présente les émetteurs (10 μm de côté) équipés d'antennes, des réseaux de différentes densités d'émetteurs nus ou équipés d'antennes dipôles, ainsi que plusieurs émetteurs larges (100 à 500 μm de côté).

Le montage pompe-sonde utilisé fonctionne comme suit : une impulsion infrarouge très brève (50 fs), la pompe, excite l'émetteur, générant une impulsion THz qui est ensuite émise en espace libre par l'émetteur et l'antenne. La mesure est réalisée par échantillonnage électro-optique. Le champ électromagnétique est focalisé sur un cristal de ZnTe, ce qui change son indice optique. Une sonde traversant le cristal voit sa polarisation changer en fonction du champ THz, ce qui est ensuite mesuré par un pont de polarisation.

Une série de mesures a été réalisée avec une pompe dont le diamètre est de petite taille (30 μm). Ceci a permis de connaître l'émission d'un émetteur seul avec différentes géométries d'antennes. La réponse temporelle et fréquentielle est présentée dans la section IX.3.1. Ces mesures ont confirmé l'utilité d'une antenne et permis de déterminer l'amplitude relative d'émis-

sion des différentes géométries. Une autre série de mesures a été réalisée avec des pompes larges, excitant plusieurs émetteurs dans les réseaux. Ces mesures ont confirmé l'utilité d'une antenne avec un signal ayant un meilleur signal sur bruit. De façon générale, ce travail a montré que l'adjonction d'une antenne électromagnétique peut modifier significativement l'émission d'un émetteur THz spintronique de petite taille, avec une augmentation d'amplitude pouvant aller jusqu'à un facteur dix. (cf. Fig. IX.20). De plus, le contenu spectral de l'émission varie selon la forme de l'antenne (cf. Fig. IX.26).

Ce travail a donné lieu à une publication [80] en cours de préparation et à une présentation sous forme de poster[79].

Bibliographie

- [1] A.BORDOLOI et Sushil AULUCK. « Electronic structure of platinum ». In : *Journal of Physics F: Metal Physics* 13 (nov. 2000), p. 2101. DOI : 10.1088/0305-4608/13/10/019.
- [2] B. Koopmans et AL. « Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization ». In : *Nature Materials* 9.1476-4660 (2010). DOI : 10.1038/nmat2593.
- [3] A ALEKHIN et al. « Magneto-optical properties of Au upon the injection of hot spin-polarized electrons across Fe/Au (0 0 1) interfaces ». In : *Journal of Physics: Condensed Matter* 31.12 (2019), p. 124002.
- [4] *Antenne*. URL : <https://www.larousse.fr/dictionnaires/francais/antenne/3813>.
- [5] D. H. AUSTON. « Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon ». In : *Applied Physics Letters* 26 (fév. 1975), p. 101. DOI : 10.1063/1.88079. URL : <https://doi.org/10.1063/1.88079>.
- [6] D. H. AUSTON, A. M.GLASS et P.LEFUR. « Tunable far-infrared generation by difference frequency mixing of dye lasers in reduced (black) lithium niobate ». In : *Applied Physics Letters* 23.1 (1973), p. 47-48. DOI : 10.1063/1.1654733. eprint : <https://doi.org/10.1063/1.1654733>. URL : <https://doi.org/10.1063/1.1654733>.
- [7] M. BATTIATO, K. CARVA et P. M. OPPENEER. « Superdiffusive Spin Transport as a Mechanism of Ultrafast Demagnetization ». In : *Phys. Rev. Lett.* 105 (2 juill. 2010), p. 027203. DOI : 10.1103/PhysRevLett.105.027203. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.105.027203>.
- [8] M. BATTIATO, K. CARVA et P. M. OPPENEER. « Theory of laser-induced ultrafast superdiffusive spin transport in layered heterostructures ». In : *Phys. Rev. B* 86 (2 juill. 2012), p. 024404. DOI : 10.1103/PhysRevB.86.024404. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.86.024404>.
- [9] E. BEAUREPAIRE et al. « Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel ». In : *Phys. Rev. Lett.* 76 (22 mai 1996), p. 4250-4253. DOI : 10.1103/PhysRevLett.76.4250. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.76.4250>.

-
- [10] N. BERGEARD et al. « Time-resolved photoelectron spectroscopy using synchrotron radiation time structure ». In : *Journal of Synchrotron Radiation* 18.2 (mars 2011), p. 245-250. DOI : 10.1107/S0909049510052301. URL : <https://doi.org/10.1107/S0909049510052301>.
 - [11] N. BERGEARD et al. « Ultrafast angular momentum transfer in multistubblattice ferrimagnets ». In : *Nature Communications* 5.1 (mars 2014), p. 3466. ISSN : 2041-1723. DOI : 10.1038/ncomms4466. URL : <https://doi.org/10.1038/ncomms4466>.
 - [12] Jean-Yves BIGOT et Mircea VOMIR. « Ultrafast magnetization dynamics of nanostructures ». In : *Annalen der Physik* 525.1-2 (2013), p. 2-30.
 - [13] Isabelle M.L. BILLAS, A. CHÂTELAINE et Walt A. de HEER. « Magnetism from the Atom to the Bulk in Iron, Cobalt, and Nickel Clusters ». In : *Science* 265.5179 (1994), p. 1682-1684. DOI : 10.1126/science.265.5179.1682. eprint : <https://www.science.org/doi/pdf/10.1126/science.265.5179.1682>. URL : <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.265.5179.1682>.
 - [14] Kamil BOBOWSKI et al. « Influence of the pump pulse wavelength on the ultrafast demagnetization of Gd(0 0 0 1) thin films ». In : *Journal of Physics: Condensed Matter* 29.23 (mai 2017), p. 234003. DOI : 10.1088/1361-648X/aa6c92. URL : <https://dx.doi.org/10.1088/1361-648X/aa6c92>.
 - [15] KARL Ferdinand BRAUN. « Electrical oscillations and wireless telegraphy ». In : *Nobel Lecture, December 11.1909* (1909), p. 226-245.
 - [16] MSS BROOKS, L NORDSTROM et B JOHANSSON. « 3d-5d band magnetism in rare earth-transition metal intermetallics: total and partial magnetic moments of the RFe₂ (R= Gd-Yb) Laves phase compounds ». In : *Journal of Physics: Condensed Matter* 3.14 (1991), p. 2357.
 - [17] Elliott BROWN et al. *Photoconductive THz Sources Driven at 1550 nm*. Juill. 2021, p. 43-136. ISBN : 9781119460749. DOI : 10.1002/9781119460749.ch3.
 - [18] Steven R. J. BRUECK. « Radiation from a dipole embedded in a dielectric slab ». In : *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 6 (2000), p. 899-910.
 - [19] IA CAMPBELL. « Indirect exchange for rare earths in metals ». In : *Journal of Physics F: Metal Physics* 2.3 (1972), p. L47.
 - [20] Paolo CARRA et al. « X-ray circular dichroism and local magnetic fields ». In : *Phys. Rev. Lett.* 70 (5 fév. 1993), p. 694-697. DOI : 10.1103/PhysRevLett.70.694. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.70.694>.

-
- [21] K. CARVA, M. BATTIATO et P. M. OPPENEER. « Ab Initio Investigation of the Elliott-Yafet Electron-Phonon Mechanism in Laser-Induced Ultrafast Demagnetization ». In : *Phys. Rev. Lett.* 107 (20 nov. 2011), p. 207201. DOI : [10.1103/PhysRevLett.107.207201](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.207201). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.107.207201>.
 - [22] Kai CHEN et al. « Temperature-dependent magnetic properties of ferrimagnetic DyCo₃ alloy films ». In : *Phys. Rev. B* 91 (2 jan. 2015), p. 024409. DOI : [10.1103/PhysRevB.91.024409](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.024409). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.91.024409>.
 - [23] Benjamin CLOUGH, Jingle LIU et X.-C. ZHANG. « All air-plasma terahertz spectroscopy ». In : *Opt. Lett.* 36.13 (juill. 2011), p. 2399-2401. DOI : [10.1364/OL.36.002399](https://doi.org/10.1364/OL.36.002399). URL : <http://www.osapublishing.org/ol/abstract.cfm?URI=ol-36-13-2399>.
 - [24] B. COQBLIN. *The Electronic Structure of Rare-earth Metals and Alloys: The Magnetic Heavy Rare-earths*. (A Anouk) 2;1961. Academic Press, 1977. ISBN : 9780121881504. URL : <https://books.google.fr/books?id=LnJUjwEACAAJ>.
 - [25] D.A.KLEINMAN. « Theory of Second Harmonic Generation of Light ». In : *Phys. Rev.* 128 (4 nov. 1962), p. 1761-1775. DOI : [10.1103/PhysRev.128.1761](https://doi.org/10.1103/PhysRev.128.1761). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.128.1761>.
 - [26] D.H.AUSTON, K.P.CHEUNG et P.R.SMITH. « Picosecond photoconducting Hertzian dipoles ». In : *Applied Physics Letters* 45 (mai 1984), p. 284. DOI : [10.1063/1.95174](https://doi.org/10.1063/1.95174). URL : <https://doi.org/10.1063/1.95174>.
 - [27] M.I. D'YAKONOV et V.I.PEREL. « Possibility of orienting electron spins with current ». In : *A.F. Ioffe Physico-technical Institute, USSR Academy of Sciences* 11.657-660 (1971).
 - [28] F DALLA LONGA et al. « Influence of photon angular momentum on ultrafast demagnetization in nickel ». In : *Physical Review B* 75.22 (2007), p. 224431.
 - [29] A. Giles DAVIES et al. « Terahertz spectroscopy of explosives and drugs ». In : *Materials Today* 11.3 (2008), p. 18-26. ISSN : 1369-7021. DOI : [https://doi.org/10.1016/S1369-7021\(08\)70016-6](https://doi.org/10.1016/S1369-7021(08)70016-6). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1369702108700166>.
 - [30] S.N.Sivanandam S.N. DEEPA. *Introduction to Genetic Algorithms*. Academic Press, 2008.

-
- [31] D. DRAGOMAN et M. DRAGOMAN. « Terahertz fields and applications ». In : *Progress in Quantum Electronics* 28.1 (2004), p. 1-66. ISSN : 0079-6727. DOI : [https://doi.org/10.1016/S0079-6727\(03\)00058-2](https://doi.org/10.1016/S0079-6727(03)00058-2). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0079672703000582>.
 - [32] NH DUC et al. « Exchange interactions in rare earth—transition metal compounds ». In : *Journal of magnetism and magnetic materials* 124.3 (1993), p. 305-311.
 - [33] E.V.CHULKOV et al. « Electronic Excitations in Metals and at Metal Surfaces ». In : *Chemical Reviews* 106.10 (2006). PMID: 17031983, p. 4160-4206. DOI : [10.1021/cr050166o](https://doi.org/10.1021/cr050166o). eprint : <https://doi.org/10.1021/cr050166o>. URL : <https://doi.org/10.1021/cr050166o>.
 - [34] J. L. ERSKINE et E. A. STERN. « Calculation of the M_{23} magneto-optical absorption spectrum of ferromagnetic nickel ». In : *Phys. Rev. B* 12 (11 déc. 1975), p. 5016-5024. DOI : [10.1103/PhysRevB.12.5016](https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.12.5016). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.12.5016>.
 - [35] A. ESCHENLOHR et AL. « Reply to 'Reply to 'Optical excitation of thin magnetic layers in multilayer structures' ' ». In : *Nature Materials* 13 (2 fév. 2014), p. 1476-4660. DOI : [10.1038/nmat3851](https://doi.org/10.1038/nmat3851). URL : <https://doi.org/10.1038/nmat3851>.
 - [36] A. ESCHENLOHR et AL. « Ultrafast spin transport as key to femtosecond demagnetization ». In : *Nature Materials* 12 (4 avr. 2013), p. 1476-4660. DOI : [10.1038/nmat3546](https://doi.org/10.1038/nmat3546). URL : <https://doi.org/10.1038/nmat3546>.
 - [37] Andrea ESCHENLOHR et al. « Ultrafast spin transport as key to femtosecond demagnetization ». In : *Nature materials* 12.4 (2013), p. 332-336.
 - [38] T. FERTÉ et al. « Laser induced ultrafast 3d and 4f spin dynamics in CoDy ferrimagnetic alloys as a function of temperature ». In : *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 530 (mars 2021), p. 167883. DOI : [10.1016/j.jmmm.2021.167883](https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304885321001591). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304885321001591>.
 - [39] Tom FERTÉS. « Dynamique ultrarapide de l'aimantation dans les alliages de métaux de transitions et de terres rares. » Thèse de doct. 2017.
 - [40] Björn FRIETSCH et al. « Fluence-dependent dynamics of the 5d6s exchange splitting in Gd metal after femtosecond laser excitation ». In : *Japanese Journal of Applied Physics* 55.7S3 (juin 2016), p. 07MD02. DOI : [10.7567/JJAP.55.07MD02](https://dx.doi.org/10.7567/JJAP.55.07MD02). URL : <https://dx.doi.org/10.7567/JJAP.55.07MD02>.

-
- [41] G. GALLOT et al. « Measurements of the THz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation ». In : *Applied Physics Letters* 74.23 (1999), p. 3450-3452. DOI : 10.1063/1.124124. eprint : <https://doi.org/10.1063/1.124124>. URL : <https://doi.org/10.1063/1.124124>.
- [42] Steven Shichang GAO, Qi LUO et Fuguo ZHU. *Circularly polarized antennas*. John Wiley & Sons, 2014.
- [43] Amal EL-GHAZALY et al. « Progress towards ultrafast spintronics applications ». In : *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 502 (2020), p. 166478.
- [44] C. E. GRAVES et al. « Nanoscale spin reversal by non-local angular momentum transfer following ultrafast laser excitation in ferrimagnetic GdFeCo ». In : *Nature Materials* 12.4 (avr. 2013), p. 293-298. ISSN : 1476-4660. DOI : 10.1038/nmat3597. URL : <https://doi.org/10.1038/nmat3597>.
- [45] G. Y. GUO et al. « First-principles calculation of magnetic x-ray dichroism in Fe and Co multilayers ». In : *Phys. Rev. B* 50 (6 août 1994), p. 3861-3868. DOI : 10.1103/PhysRevB.50.3861. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.50.3861>.
- [46] Choi GYUNG-MIN et al. « Spin current generated by thermally driven ultrafast demagnetization ». In : *Nature Communications* 5.1 (2014), p. 4334. DOI : 10.1038/ncomms5334. URL : <https://doi.org/10.1038/ncomms5334>.
- [47] P HANSEN et al. « Magnetic and magneto-optical properties of rare-earth transition-metal alloys containing Gd, Tb, Fe, Co ». In : *Journal of applied physics* 66.2 (1989), p. 756-767.
- [48] Daniel J. HIGLEY et al. « Femtosecond X-ray magnetic circular dichroism absorption spectroscopy at an X-ray free electron laser ». In : *Review of Scientific Instruments* 87.3 (2016), p. 033110. DOI : 10.1063/1.4944410. eprint : <https://aip.scitation.org/doi/pdf/10.1063/1.4944410>. URL : <https://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.4944410>.
- [49] J HOHLFELD, CD STANCIU et A REBEL. « Athermal all-optical femtosecond magnetization reversal in GdFeCo ». In : *Applied Physics Letters* 94.15 (2009), p. 152504.
- [50] J HOHLFELD et al. « Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals ». In : *Chemical physics* 251.1-3 (2000), p. 237-258.

-
- [51] J. HOHLFELD et al. « Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals ». In : *Chemical Physics* 251.1 (2000), p. 237-258. ISSN : 0301-0104. DOI : [https://doi.org/10.1016/S0301-0104\(99\)00330-4](https://doi.org/10.1016/S0301-0104(99)00330-4). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0301010499003304>.
- [52] Karsten HOLLDACK et al. « FemtoSpeX: a versatile optical pump-soft X-ray probe facility with 100 fs X-ray pulses of variable polarization ». In : *Journal of Synchrotron Radiation* 21 (août 2014). DOI : [10.1107/S1600577514012247](https://doi.org/10.1107/S1600577514012247).
- [53] Satoshi IIHAMA et al. « Single-Shot Multi-Level All-Optical Magnetization Switching Mediated by Spin Transport ». In : *Advanced Materials* 30.51 (2018), p. 1804004.
- [54] Emmanuelle JAL et al. « Structural dynamics during laser-induced ultrafast demagnetization ». In : *Physical Review B* 95.18 (2017), p. 184422.
- [55] C. JASTROW et al. « 300 GHz transmission system ». In : *Electronics Letters* 44.3 (jan. 2008), p. 2. DOI : [10.1049/el:20083359](https://doi.org/10.1049/el:20083359). URL : https://digital-library.theiet.org/content/journals/10.1049/el_20083359.
- [56] Ganping JU et al. « Ultrafast time resolved photoinduced magnetization rotation in a ferromagnetic/antiferromagnetic exchange coupled system ». In : *Physical review letters* 82.18 (1999), p. 3705.
- [57] Safa O. KASAP. *Principles of Electronic Materials and Devices 3rd Edition*. Mc Graw Hill, 2008.
- [58] S. KHAN et al. « Femtosecond Undulator Radiation from Sliced Electron Bunches ». In : *Phys. Rev. Lett.* 97 (7 août 2006), p. 074801. DOI : [10.1103/PhysRevLett.97.074801](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.074801). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.97.074801>.
- [59] A. R. KHORSAND et al. « Optical excitation of thin magnetic layers in multilayer structures ». In : *Nature Materials* 13.2 (fév. 2014), p. 101-102. ISSN : 1476-4660. DOI : [10.1038/nmat3850](https://doi.org/10.1038/nmat3850). URL : <https://doi.org/10.1038/nmat3850>.
- [60] Andrei KIRILYUK, Alexey V KIMEL et Theo RASING. « Laser-induced magnetization dynamics and reversal in ferrimagnetic alloys ». In : *Reports on progress in physics* 76.2 (2013), p. 026501.
- [61] Thomas KLEINE-OSTMANN et Tadao NAGATSUMA. « A Review on Terahertz Communications Research ». In : *J Infrared Milli Terahz Waves* 32:143-171 (jan. 2011), p. 29. DOI : [10.1007/s10762-010-9758-1](https://doi.org/10.1007/s10762-010-9758-1).
- [62] John D KRAUS. *Antennas*. 2. 1988.

-
- [63] Thomas KÜRNER. « Towards Future THz Communications Systems ». In : *Terahertz Science and Technology* 5.1941-7411 (mars 2012), p. 11. URL : <http://www.tstnetwork.org/March2012/tst-v5n1-11Towards%5C%20Future.pdf>.
- [64] M. L. M. LALIEU, P. L. J. HELGERS et B. KOOPMANS. « Absorption and generation of femtosecond laser-pulse excited spin currents in noncollinear magnetic bilayers ». In : *Phys. Rev. B* 96 (1 juill. 2017), p. 014417. DOI : 10.1103/PhysRevB.96.014417. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.96.014417>.
- [65] P. LEFUR et D. H. AUSTON. « A kilovolt picosecond optoelectronic switch and Pockel's cell ». In : *Applied Physics Letters* 28 (mai 1976), p. 21. DOI : 10.1063/1.88565. URL : <http://dx.doi.org/10.1063/1.88565>.
- [66] M. BASS et al. « Optical Rectification ». In : *Phys. Rev. Lett.* 9 (11 déc. 1962), p. 446-448. DOI : 10.1103/PhysRevLett.9.446. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.9.446>.
- [67] M. L. M. LALIEU et al. « Deterministic all-optical switching of synthetic ferrimagnets using single femtosecond laser pulses ». In : *Phys. Rev. B* 96 (22 déc. 2017), p. 220411. DOI : 10.1103/PhysRevB.96.220411. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.96.220411>.
- [68] Gregory MALINOWSKI et al. « Control of speed and efficiency of ultra-fast demagnetization by direct transfer of spin angular momentum ». In : *Nature Physics* 4.11 (2008), p. 855-858.
- [69] Helmholtz-Zentrum Berlin für MATERIALIEN UND ENERGIE ET AL. « The FemtoSpeX facility at BESSY II. » In : *Journal of large-scale research facilities* 2 (fév. 2016), p. 46. DOI : <http://dx.doi.org/10.17815/jlsrf-2-71>.
- [70] Kimmitt MF. « Reststrahlen to T-rays - 100 years of terahertz radiation. » In : *Journal of biological physics* (juin 2003), p. 10. DOI : 10.1023/A:1024498003492. URL : <urn:doi:10.1098/rstl.1800.0015>.
- [71] D. L. MILLS. *Nonlinear Optics: Basic Concepts*. Springer, 1998.
- [72] *Mode Low Alpha*. URL : <https://www.synchrotron-soleil.fr/en/research/sources-and-accelerators/electron-beam-parameters/low-alpha-operation>.
- [73] N MOISAN et al. « Investigating the role of superdiffusive currents in laser induced demagnetization of ferromagnets with nanoscale magnetic domains ». In : *Scientific reports* 4.1 (2014), p. 1-6.

-
- [74] N.BERGEARD et al. « Correlation between structure, electronic properties, and magnetism in $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ thin amorphous films ». In : *Phys. Rev. B* 96 (6 août 2017), p. 064418. DOI : 10.1103/PhysRevB.96.064418. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.96.064418>.
 - [75] N.BERGEARD et al. « Hot-Electron-Induced Ultrafast Demagnetization in Co/Pt Multilayers ». In : *Phys. Rev. Lett.* 117 (14 sept. 2016), p. 147203. DOI : 10.1103/PhysRevLett.117.147203. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.117.147203>.
 - [76] U. NANDI et al. « Antenna-coupled spintronic terahertz emitters driven by a 1550nm femtosecond laser oscillator ». In : *Appl. Phys. Lett.* 115.022405 (2019).
 - [77] *NIST Standard Reference Database*. URL : <https://www.nist.gov/srd/nist-standard-reference-database-71>.
 - [78] M. PACÉ et al. « Laser induced ultrafast Gd 4f spin dynamics at the surface of amorphous $\text{Co}_x\text{Gd}_{100-x}$ ferrimagnetic alloys ». In : (), en préparation.
 - [79] Matthias PACÉ et al. « Adaptation de géométries d'antenne à des émetteurs spintroniques THz ». In : *Colloque Louis Neel, Présentation d'un poster*. Obernai. 28 juin - 1 juillet 28 juin - 1 juillet, 2022.
 - [80] Matthias PACÉ et al. « Adaptation of usual antenna geometry to spintronic emitters ». In : (), en préparation.
 - [81] *Page du centre de recherche du Helmholtz Zentrum Berlin*. URL : https://www.helmholtz-berlin.de/pubbin/igama_output?modus=einzel%5C&sprache=en%5C&gid=1616%5C&typoid=50740.
 - [82] *Page présentant l'absorption de photons par différents matériaux*. URL : https://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html.
 - [83] *Page présentant la vibration de différentes molécules en fonction d'énergies portées par des photons de fréquences de l'ordre des THz*. URL : <https://marchenry.org/2014/03/18/vibrations-moleculaires/>.
 - [84] *Page wikipédia sur la forme géométrique de spirale*. URL : <https://fr.wikipedia.org/wiki/Spirale>.
 - [85] Zhisheng PIAO, Masahiko TANI et Kiyomi SAKAI. « Carrier Dynamics and Terahertz Radiation in Photoconductive Antennas ». In : *Japanese Journal of Applied Physics* 39.Part 1, No. 1 (jan. 2000), p. 96-100. DOI : 10.1143/jjap.39.96. URL : <https://doi.org/10.1143/jjap.39.96>.
 - [86] J POULIQUEN et V WINTGENS. « Mise au point-Transferts d'électrons photo induits. Complexes donneur-accepteur d'électrons.—I ». In : *Journal de chimie physique* 85 (1988), p. 455-472.

-
- [87] *Présentation de la ligne Tempo*. URL : <https://www.synchrotron-soleil.fr/fr/lignes-de-lumiere/tempo>.
- [88] *Principles of Lock-in Detection*. URL : <https://www.zhinst.com/europe/en/resources/principles-of-lock-in-detection>.
- [89] I RADU et al. « Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins ». In : *Nature* 472.7342 (2011), p. 205-208.
- [90] I. RADU et AL. « Ultrafast and Distinct Spin Dynamics in Magnetic Alloys ». In : *World Scientific* 05 (03 2015), p. 1530004. DOI : 10.1142/S2010324715500046. URL : <https://www.worldscientific.com/doi/abs/10.1142/S2010324715500046>.
- [91] *Remplissage de l'anneau de stockage*. URL : <https://www.synchrotron-soleil.fr/fr/faisceau/explications-etat-du-faisceau>.
- [92] T ROTH et al. « Temperature dependence of laser-induced demagnetization in Ni: A key for identifying the underlying mechanism ». In : *Physical Review X* 2.2 (2012), p. 021006.
- [93] Heinrich RUBENS et Benj. W. SNOW. « II. On the refraction of rays of great wave-length in rock-salt, sylvite, and fluorite ». In : *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 35.212 (1893), p. 35-45. DOI : 10.1080/14786449308620376. eprint : <https://doi.org/10.1080/14786449308620376>. URL : <https://doi.org/10.1080/14786449308620376>.
- [94] S.WOLFGANG et al. « Optical Constants and Inelastic Electron-Scattering Data for 17 Elemental Metals ». In : *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 38.4 (2009). DOI : 10.1063/1.3243762. eprint : <https://doi.org/10.1063/1.3243762>. URL : <https://doi.org/10.1063/1.3243762>.
- [95] G. SALVATELLA et AL. « Ultrafast demagnetization by hot electrons: Diffusion or super-diffusion? » In : *Structural Dynamics* 3 (5 oct. 2016), p. 055101. DOI : 10.1063/1.4964892. URL : <https://aca.scitation.org/doi/full/10.1063/1.4964892>.
- [96] A. B. SCHMIDT et al. « Ultrafast Magnon Generation in an Fe Film on Cu(100) ». In : *Phys. Rev. Lett.* 105 (19 nov. 2010), p. 197401. DOI : 10.1103/PhysRevLett.105.197401. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.105.197401>.
- [97] G. SCHÜTZ et al. « Absorption of circularly polarized x rays in iron ». In : *Phys. Rev. Lett.* 58 (7 fév. 1987), p. 737-740. DOI : 10.1103/PhysRevLett.58.737. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.58.737>.
- [98] T. SEIFERT et al. « Efficient metallic spintronic emitters of ultra-broadband terahertz radiation ». In : *Nature Photonics* 10.1038.2016.91 (2016).

-
- [99] Tom S. SEIFERT et al. « Spintronic sources of ultrashort terahertz electromagnetic pulses ». In : *Applied Physics Letters* 120.18 (2022), p. 180401. DOI : 10.1063/5.0080357. eprint : <https://doi.org/10.1063/5.0080357>. URL : <https://doi.org/10.1063/5.0080357>.
- [100] *Séries de Fourier*. URL : https://fr.wikipedia.org/wiki/S%C3%A9rie_de_Fourier.
- [101] V. SHOKEEN et al. « Spin Flips versus Spin Transport in Nonthermal Electrons Excited by Ultrashort Optical Pulses in Transition Metals ». In : *Phys. Rev. Lett.* 119 (10 sept. 2017), p. 107203. DOI : 10.1103/PhysRevLett.119.107203. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.119.107203>.
- [102] Mathieu G SILLY et al. « Pump- probe experiments at the TEMPO beamline using the low- α operation mode of Synchrotron SOLEIL ». In : *Journal of Synchrotron Radiation* 24.4 (2017), p. 886-897.
- [103] Jairo SINOVA et al. « Spin Hall effects ». In : *Rev. Mod. Phys.* 87 (4 oct. 2015), p. 1213-1260. DOI : 10.1103/RevModPhys.87.1213. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.87.1213>.
- [104] Jairo SINOVA et al. « Spin Hall effects ». In : *Rev. Mod. Phys.* 87 (4 oct. 2015), p. 1213-1260. DOI : 10.1103/RevModPhys.87.1213. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.87.1213>.
- [105] *Site CST*. URL : <https://www.3ds.com/fr/produits-et-services/simulia/produits/cst-studio-suite/>.
- [106] F SIZOV. « Brief history of THz and IR technologies ». In : *Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics* (2019).
- [107] A. SOMMERFELD. « Über die Ausbreitung der Wellen in der drahtlosen Telegraphie ». In : *Annalen der Physik* 333.4 (1909), p. 665-736. DOI : <https://doi.org/10.1002/andp.19093330402>. eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/andp.19093330402>. URL : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/andp.19093330402>.
- [108] Ho-Jin SONG et al. « Broadband-Frequency-Tunable Sub-Terahertz Wave Generation Using an Optical Comb, AWGs, Optical Switches, and a Uni-Traveling Carrier Photodiode for Spectroscopic Applications ». In : *J. Lightwave Technol.* 26.15 (août 2008), p. 2521-2530. URL : <http://opg.optica.org/jlt/abstract.cfm?URI=jlt-26-15-2521>.
- [109] C STAMM et al. « X-ray detection of ultrashort spin current pulses in synthetic antiferromagnets ». In : *Journal of Applied Physics* 127.22 (2020).

-
- [110] CD STANCIU et al. « Ultrafast interaction of the angular momentum of photons with spins in the metallic amorphous alloy GdFeCo ». In : *Physical review letters* 98.20 (2007), p. 207401.
 - [111] Claudiu D STANCIU et al. « All-optical magnetic recording with circularly polarized light ». In : *Physical review letters* 99.4 (2007), p. 047601.
 - [112] Joachim STÖHR et Hans Christoph SIEGMANN. « Magnetism: from fundamentals to nanoscale dynamics ». In : *Solid-State Sciences. Springer, Berlin, Heidelberg* 5 (2006), p. 236.
 - [113] T.FERTE et al. « Ultrafast hot-electron induced quenching of Tb 4f magnetic order ». In : *Phys. Rev. B* 96 (14 oct. 2017), p. 144427. DOI : 10.1103/PhysRevB.96.144427. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.96.144427>.
 - [114] T.KAMPRATH et al. « Terahertz spin current pulses controlled by magnetic heterostructures ». In : *Nature Nanotechnology* 8.260 (avr. 2013), p. 256. DOI : 10.1038/nnano.2013.43. URL : <https://doi.org/10.1038/nnano.2013.43>.
 - [115] LJ TAO et al. « Magnetic properties of amorphous GdCo films ». In : *AIP Conference Proceedings*. T. 18. 1. American Institute of Physics. 1974, p. 641-645.
 - [116] Yoshiki TERAMURA et al. « Effect of Coulomb Interaction on the X-Ray Magnetic Circular Dichroism Spin Sum Rule in Rare Earths ». In : *Journal of the Physical Society of Japan* 65.9 (sept. 1996), p. 3056. DOI : 10.1143/JPSJ.65.3056.
 - [117] B. T. THOLE et al. « X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization ». In : *Phys. Rev. Lett.* 68 (12 mars 1992), p. 1943-1946. DOI : 10.1103/PhysRevLett.68.1943. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.68.1943>.
 - [118] *Understanding Time Domain Meshing in CST MICROWAVE STUDIO*. URL : <https://www.researchgate.net/file.PostFileLoader.html?id=578c450ceeae3937441b63a1assetKey=AS%5C%3A385033333428224%5C%401468810508239>.
 - [119] V.LOPEZ-FLORES et al. « Role of critical spin fluctuations in ultrafast demagnetization of transition-metal rare-earth alloys ». In : *Phys. Rev. B* 87 (21 juin 2013), p. 214412. DOI : 10.1103/PhysRevB.87.214412. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.87.214412>.
 - [120] K VAHAPLAR et al. « Ultrafast path for optical magnetization reversal via a strongly nonequilibrium state ». In : *Physical review letters* 103.11 (2009), p. 117201.

-
- [121] B. VODUNGBO et AL. « Indirect excitation of ultrafast demagnetization ». In : *Scientific Reports* 6 (1 jan. 2016), p. 18970. DOI : 10.1038/nmat3851. URL : <https://doi.org/10.1038/nmat3851>.
 - [122] S. WAKOH, D. EDWARDS et E. WOHLFARTH. « CALCULATION OF THE SPIN WAVE ENERGY OF IRON, COBALT AND NICKEL ». In : *Journal de Physique Colloques* 32.C1 (1971), p. C1-1073-C1-1075. DOI : 10.1051/jphyscol:19711386. URL : <https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00214425>.
 - [123] *What is the relationship between frequency and bit rates?* 2015. URL : <https://www.researchgate.net/post/What-is-the-relationship-between-frequency-and-bit-rates/568328397dfbf92bd38b4579/citation/download..>
 - [124] H.p.j. WIJN et W. MARTIENSSEN. *Magnetic Properties of Metals 3d, 4d and 5d Elements, Alloys and Compounds*. Springer, 1991.
 - [125] RB WILSON et al. « Ultrafast magnetic switching of GdFeCo with electronic heat currents ». In : *Physical Review B* 95.18 (2017), p. 180409.
 - [126] C. WINNEWISSE et al. « Electro-optic detection of THz radiation in LiTaO₃, LiNbO₃ and ZnTe ». In : *Applied Physics Letters* 70 (avr. 1997), p. 3069. DOI : 10.1063/1.119093. URL : <http://dx.doi.org/10.1063/1.119093>.
 - [127] Ruqian WU et A. J. FREEMAN. « Limitation of the Magnetic-Circular-Dichroism Spin Sum Rule for Transition Metals and Importance of the Magnetic Dipole Term ». In : *Phys. Rev. Lett.* 73 (14 oct. 1994), p. 1994-1997. DOI : 10.1103/PhysRevLett.73.1994. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.73.1994>.
 - [128] Tatsuo YAJIMA et Nobuo TAKEUCHI. « Far-Infrared Difference-Frequency Generation by Picosecond Laser Pulses ». In : *Japanese Journal of Applied Physics* 9 (1970), p. 1361-1371.
 - [129] Yang YANG et al. « Ultrafast magnetization reversal by picosecond electrical pulses ». In : *Science Advances* 3.11 (nov. 2017). DOI : 10.1126/sciadv.1603117. URL : <https://www.science.org/doi/10.1126/sciadv.1603117>.
 - [130] J.J. YEH et I. LINDAU. « Atomic subshell photoionization cross sections and asymmetry parameters: $1 < Z < 103$ ». In : *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 32.1 (1985), p. 1-155. ISSN : 0092-640X. DOI : [https://doi.org/10.1016/0092-640X\(85\)90016-6](https://doi.org/10.1016/0092-640X(85)90016-6). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0092640X85900166>.

Troisième partie

appendices

DSI

.1 Appendice 0 : Historique et description des synchrotrons.

Ces équipements sont des accélérateurs à particules polygonaux accélérant des électrons. A intervalle régulier, l'électron subit une accélération. Ceci produit alors des ondes électromagnétiques dont la gamme s'étend des infrarouges lointains aux rayons X durs qui sont émis le long des lignes de lumière, équipés de monochromateurs. La génération du faisceau d'électrons parcourant le polygone se fait en trois étapes. Dans un premier temps, une différence de potentiel entre deux électrodes libère des électrons dans l'espace. L'une des électrodes est une grille laissant passer une partie du courant. A la sortie de cet accélérateur linéaire, les électrons sont accélérés dans un anneau appelé le Booster. Dans cette partie du synchrotron, l'énergie des particules va monter jusqu'à plusieurs GeV. Leur vitesse est alors proche de celle de la lumière. Ce dernier point est important, car il explique la faible différence de vitesse entre les électrons. Les électrons sont ensuite injectés dans l'anneau de stockage : ils y restent plusieurs heures. C'est autour de celui-ci que sont installées les différentes lignes utilisant le rayonnement synchrotron émis par les paquets d'électrons. Pour générer le faisceau de lumière, en plus des éléments placés aux aimants de courbure, des systèmes sur l'arrête du polygone (ondulateurs ou wigglers), présents dans les synchrotrons dit de troisième génération, font subir à l'électron une ou plusieurs accélérations. Ceci permet de générer une onde de plus forte intensité qu'en utilisant la rotation seule de l'électron. Ceci implique une perte d'énergie de l'électron : sa quantité de mouvement diminue et il est donc nécessaire de ré-accélerer la particule dans une direction tangente à sa vitesse. Pour cela, un autre élément présent sur les arrêtes de la structure sont des cavités radio-fréquences. Celles-ci augmentent l'énergie cinétique des électrons, et compensent l'énergie perdue lors de l'émission d'ondes lumineuses.

Les ondes lumineuses sont ensuite récupérées dans une ligne dédiée qui les guide vers une station expérimentale. Sur la ligne, plusieurs organes permettent de traiter l'onde électro-magnétique. On peut ainsi contrôler la taille et la position du faisceau grâce à des miroirs et des fentes, mais aussi la longueur d'onde de la lumière grâce à des monochromateurs.

Ces équipements imposants sont assez peu nombreux : il en existe deux en France. Leurs caractéristiques, notamment l'énergie des électrons, influant sur la gamme spectrale accessible, mais aussi l'équipement présent sur les lignes, sont différentes. Ainsi, les rayons X disponibles au synchrotron de SOLEIL sont qualifiés de mous (20 - 5000 eV), et utiles, par exemple, pour des expériences de photoémission. Le synchrotron de Grenoble propose lui, des rayons X plus durs (5000 - 40 000 eV). L'équipement de la ligne est aussi important, c'est pour cette raison que les expérimentations résolues en temps ont été réalisées en Allemagne plutôt qu'en France. Ces différentes caractéristiques d'ondes lumineuses trouvent leurs applications en chimie,

physique, en biologie, en archéologie, mais aussi en art, pour l'expertise de tableaux. Les deux synchrotrons sur lesquels j'ai travaillé sont ceux de SOLEIL à Paris-Saclay et celui de BESSY II à Berlin.

.2 Appendice 1 :Liens entres spectres XMCD et moments M_s et M_L .

Une fois les spectres d'absorption de rayon X, aux seuils L2,3 des métaux de transition(MT) et M4,5 des terres rares (TR) obtenus, il est possible d'extraire les moments magnétiques de spin (M_s) et orbitale (M_L) pour chaque atome. Pour ce faire, il est possible d'utiliser les règles de sommes proposées par Thole et al. [117] et Carra et al.[20] en 1992 et 1993 respectivement. Les équations pour les MT et le TR sont les suivantes :

Pour les MT :

$$M_L = -\frac{2Q}{3R_{iso}} \cdot n_h^{3d} \quad (1)$$

$$M_L = -\frac{3P - 2Q}{R_{iso}} \cdot n_h^{3d} \cdot \left(1 + \frac{7 \langle T_z \rangle}{2 \langle S_z \rangle}\right)^{-1} \quad (2)$$

n_h^{3d} : nombre de trous de la bande 3d

P : intégrale du signal XMCD du seuil L3,

Q : intégrale du signal XMCD du seuil L3 et L2,

R_{iso} ! intégrale du signal isotrope moins le fond du seuil L3 et L2

$\langle T_z \rangle$: opérateur magnétique dipolaire

L'opérateur magnétique dipolaire $\langle T_z \rangle$ a pour origine l'interaction spin-orbite. Pour le Fe, le Ni et dans le cas qui nous occupe, le Co, ainsi que certains autres MT, ce terme est négligeable, selon l'étude réalisée par Teramura et al. [116] en 1996. On peut donc simplifier 2 et obtenir :

$$M_L = -\frac{3P - 2Q}{R_{iso}} \cdot n_h^{3d} \quad (3)$$

Pour les TR :

$$M_L = \frac{Q}{R_{iso}} \cdot n_h^{4f} \quad (4)$$

$$M_L = \frac{5P - 3Q}{2R_{iso}} \cdot n_h^{4f} \cdot \left(1 + 3 \frac{\langle T_z \rangle}{\langle S_z \rangle}\right)^{-1} \quad (5)$$

On définit ici les quantités suivantes :

n_h^{4f} : nombre de trous de la bande 4f

P : intégrale du signal XMCD du seuil M5,

Q : intégrale du signal XMCD du seuil M5 et M4,

R_{iso} ! intégrale du signal isotrope moins le fond du seuil M5 et M4

$\langle T_z \rangle$: opérateur magnétique dipolaire

Il n'est pas possible de négliger $\langle T_z \rangle$ pour la plupart des TR, à l'exception notable du Gd, comme on peut le constater dans le tableau 5.

Nous avons donc utilisé la formule

$$M_L = \frac{5P - 3Q}{2R_{iso}} \cdot n_h^{4f} \cdot \left(1 + 3 \frac{\langle T_z \rangle}{\langle S_z \rangle}\right)^{-1} \quad (6)$$

	Gd	Tb	Dy
$\frac{\langle T_z \rangle}{\langle S_z \rangle}$	-0,003	-0,083	-0,0053
$(1 + 3\frac{\langle T_z \rangle}{\langle S_z \rangle})^{-1}$	1,009	1,332	1,189

TABLE 5 – Valeurs des rapports $\frac{\langle T_z \rangle}{\langle S_z \rangle}$ et des termes $(1 + 3\frac{\langle T_z \rangle}{\langle S_z \rangle})^{-1}$ pour trois TR différentes, dont le Gd.

pour les calculs de valeurs M_s et M_L pour le Gd. Ce travail est décrit dans le paragraphe suivant.

Exemple de traitement pour les MT.

La figure 27 présente la procédure appliquée pour obtenir les valeurs P, Q et R_{iso} des données obtenues sur les TGIR. Les données obtenues sur ces structures sont celles de l'absorption d'un faisceau de photons X par un échantillon soumis à un champ magnétique extérieur d'amplitude H. Deux mesures sont réalisées, une telle que $H^+ = H \cdot \vec{u}_x$ et une telle que $H^- = -H \cdot \vec{u}_x$, avec $\vec{u}_x$ un vecteur choisi dans, ou hors du plan, en fonction de l'échantillon observé. Ceci est en effet plus simple d'un point de vue applicatif que de changer la polarisation circulaire du faisceau de photons et permet d'obtenir le signal recherché, comme expliqué dans le chapitre 1. Par abus de langage, on appelle généralement les absorptions obtenues par le nom du champ magnétique appliqué. Le choix du sens est arbitraire. Le signal XMCD est alors défini comme $XMCD = H^+ - H^-$. De la même façon, on définit le signal isotrope tel que $SigIso = (H^+ + H^-)/2$. Il s'agit en effet de la moyenne d'absorption du faisceau X par l'échantillon entre la polarisation gauche et droite. Le fond est défini par l'équation suivante :

$$Fond = I_{760eV} + (1 + \frac{2}{3} \tanh(0,8 \cdot E_{pic}^{L_3}) + \frac{1}{3} \tanh(0,8 \cdot E_{pic}^{L_2})) \cdot (I_{830eV} - I_{760eV}) \quad (7)$$

On définit ici les quantités suivantes :

I_{760eV} : intensité avant le pic L_3 .

$E_{pic}^{L_3}$ et $E_{pic}^{L_2}$: énergie correspondant au maximum des pics L_3 et L_2

I_{830eV} : intensité après le pic L_3 .

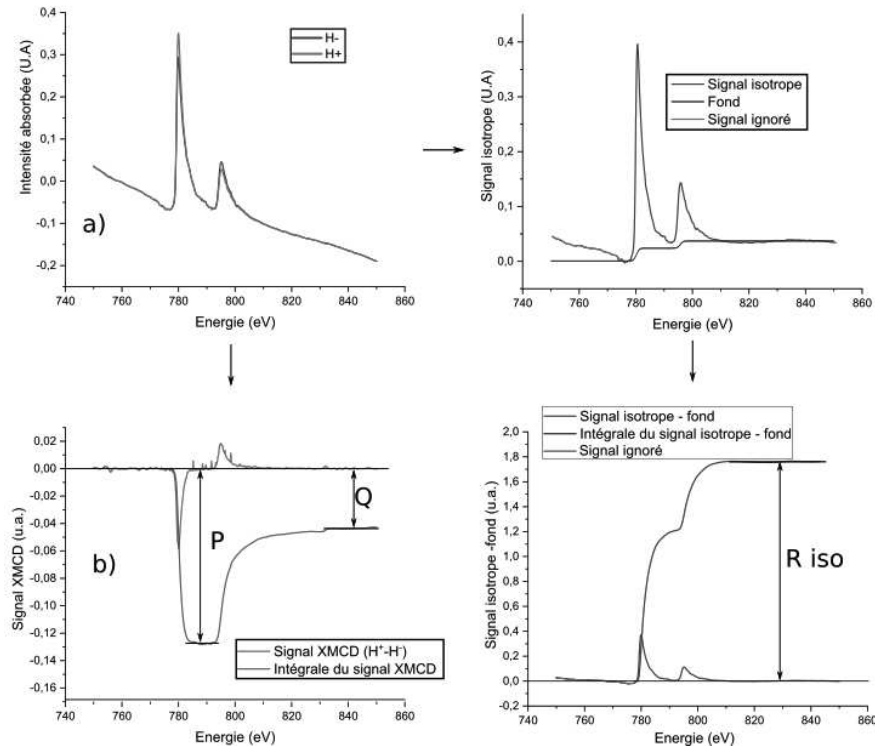


FIGURE 27 – a) Spectre XAS représentant l'intensité absorbée au seuil du Co. b) Signal XMCD et de l'intégrale du signal XMCD. c) Signal isotrope et du fond. d) Signal isotrope moins le fond et l'intégrale du signal isotrope moins le fond.

Notons que la procédure appliquée aux TR est similaire. Nous considérons les seuils M5 et M4 au lieu des seuils L2,3.

Nombre de trou : Il est à présent nécessaire de définir les termes n_h^{3d} et n_h^{4f} . Le nombre de trous dans la bande 4f ne change pas lorsque l'atome est inclus dans un alliage. En effet, cette bande ne participe pas aux liaisons chimiques, et cette valeur est égale à 5n6 et 7 pour le Dy, le Tb et le Gd respectivement. J'ai travaillé sur des alliages composés de cette dernière espèce chimique, $n_h^{4f} = 7$ dans tous les calculs réalisés. En revanche, le nombre de trous dans la bande 3d change entre le cas où l'atome est isolé et le cas où l'atome est inclus dans un matériau. Ceci est encore plus vrai dans le cas où le matériau est un alliage de différents composants. Nous n'avons pas, à notre connaissance, de littérature proposant la valeur du nombre de trous de la couche 3d du Co dans le cas d'alliage CoGd. En nous référant à la littérature proposant le nombre de trous du Cobalt dans un matériau mono et poli atomique, la valeur varie entre 2,43 et 2,8. [112, 22, 127, 45] Nous avons choisi la valeur 2,8 pour tous les calculs.

.3 Appendice 2 : Tableaux de résultat du chapitre 4

Echantillon	Sens	Température	P	Q	Riso
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(4nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	AP	300	-0,12	-0,05	1,76
		160	-0,14	-0,05	1,76
		80	-0,15	-0,05	1,76
	P	80	-0,04	-0,03	1,66
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(3nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	AP	300	-0,12	-0,05	1,75
		160	-0,14	-0,05	1,76
		80	-0,15	-0,05	1,76
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(2nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	AP	300	-0,06	-0,03	1,56
		160	-0,10	-0,03	1,49
	P	80	-0,12	-0,04	1,52
		300	-0,07	-0,04	1,51
		160	-0,09	-0,05	1,46
		80	-0,09	-0,03	1,31

TABLE 6 – P, Q et R_{iso} extraits des mesures XMCD obtenues lors du traitement des signaux obtenus aux seuils du $Co_{L2,3}$.

Echantillon	Température	P	Q	Riso
$Co_{61}Gd_{39}(15nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)$	300	-0,13	-0,06	1,41
	80	-0,15	-0,07	1,44
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)$	300	-0,08	-0,05	1,07
	80	-0,10	-0,05	1,05

TABLE 7 – P, Q et R_{iso} extraits des mesures XMCD obtenues lors du traitement des signaux obtenus aux seuils du $Co_{L2,3}$.

Finalement, nous pouvons extraire m_l et m_s pour le Co et le Gd en fonction de T °.

Données obtenues pour le Co

Echantillon	Sens	Température	Co M_l	Co M_s
Co68,3Gd31,7(15nm)/Cu(4nm) /Co75pt25(4nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)	AP	300	0,12	0,99
		160	0,13	1,20
		80	0,11	0,77
Co68,3Gd31,7(15nm)/Cu(4nm) /Co75pt25(3nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)	AP	300	0,11	0,67
		80	0,12	1,25
	P	300	0,09	0,34
		80	0,10	0,62
Co68,3Gd31,7(15nm)/Cu(4nm) /Co75pt25(2nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)	AP	300	0,10	0,78
		160	0,09	1,03
		80	0,11	1,22
	P	300	0,13	0,54
		160	0,16	0,69
		80	0,09	1,04
Co68,3Gd31,7(15nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)		300	0,17	1,37
		250	0,23	1,40
		170	0,25	2,20
		80	0,22	1,38
Co61Gd39(15nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)		300	0,19	0,92
		80	0,22	1,31

TABLE 8 – Valeur de M_l et de M_s du Co des échantillons. Les valeurs proposées sont la somme des contributions de toutes les couches de Co pour les deux premiers échantillons.

Données obtenues pour le Gd

Echantillon	Température	Gd P	Gd Q	Riso
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(4nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	300	-0,30	-0,03	2,85
	160	-0,35	-0,01	3,03
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(3nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	300	-0,25	-0,00	2,86
	160	-0,36	-0,01	2,98
	80	-0,39	-0,02	2,97
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(2nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	300	-0,23	-0,00	5,15
	160	-0,37	-0,01	2,81
$Co_{61}Gd_{39}(15nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)$	300	-0,28	-0,00	2,72
	160	-0,33	-0,02	2,92
	80	-0,40	-0,01	3,06
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)$	300	-0,24	-0,01	3,28
	160	-0,37	-0,03	6,35
	80	-0,46	-0,04	3,99
	80	-0,47	-0,00	4,15

TABLE 9 – P, Q et R_{iso} extraits des mesures XMCD obtenues lors du traitement des signaux obtenus aux seuils du Gd M4,5.

Echantillon	T (°K)	Gd M_l	Gd M_s
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(4nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	300	-0,10	-2,12
	160	-0,04	-2,44
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(3nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	300	-0,01	-1,84
	160	-0,02	-2,52
	80	-0,05	-2,77
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Co_{75}Pt_{25}(2nm)/Cu(3nm)/Pt(6nm)$	300	0,00	-0,95
	160	-0,02	-2,80
$Co_{61}Gd_{39}(15nm)/Cu(4nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)$	300	-0,01	-1,58
	160	-0,04	-1,18
	80	-0,048	-2,36
$Co_{68,3}Gd_{31,7}(15nm)/Cu(4nm)/Cu(60nm)/Pt(6nm)$	300	-0,01	-2,16
	160	-0,06	-2,30
	80	-0,03	-2,72

TABLE 10 – Valeur de M_l et de M_s du Gd dans les différents alliages étudiés des échantillons.

Valeurs M_s et M_l des différents alliages

Alliage	Espèce	Température	M_l	M_s
Co _{68,3} Gd _{31,7} (15nm)	Co	300	0,15	1,18
		170	0,25	2,20
		160	0,15	0,99
		80	0,16	1,34
	Gd	300	0,04	1,77
		80	0,04	2,74
Co ₆₁ Gd ₃₉ (15nm)	Co	300	0,19	0,92
		80	0,22	1,31
	Gd	300	0,01	1,58
		160	0,04	1,18
		80	0,05	2,36
CoPt		300	0,06	0,91
		160	0,01	1,31
		80	0,12	1,58

TABLE 11 – Valeurs de M_l et de M_s du Co dans les différents alliages $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ étudiés et dans le CoPt (en bas). Notons que les valeurs extraites issues de spectres XAS bruités ont été éliminées.

.4 Appendice 3 : Code ayant permis la modélisation de l'absorption des électrons

```
# -*- coding: utf-8 -*-
"""
Created on Tue Jun  7 09:35:04 2022

@author: Matthias
"""
import numpy as np
import math as m
import matplotlib.pyplot as plt

#LPM photon ds Pt,Cu,CoPt
LPM=[5,150,4]
pas=10
tailleEchant=81
att = np.ones(tailleEchant*pas)
coltab=['blue','orange','green','red']
#Profile = np.ones(81*pas)*100
Profile = [[],[],[],[ ]]
Xaxe=[[],[],[],[ ]] #Axe des abscisses
YMAX=[[],[],[],[ ]]
Ymin=[[],[],[],[ ]]

def LPMfunc(x):
    if x<5*pas:
        return([LPM[0],0])
    elif x<65*pas:
        return([LPM[1],1])#LPM photon ds Cu
    elif x<71*pas:
        return([LPM[2],2])#LPM photon ds CoPt
    elif x<81*pas:
        return([LPM[1],3])#LPM photon ds Cu

attenuation = 0
for i in range(5*pas,tailleEchant*pas):
    t=LPMfunc(i)
    temp=m.exp(-attenuation)
    Xaxe[t[1]].append(i/pas)
    Profile[t[1]].append(100*temp)
    YMAX[t[1]].append(100)
    Ymin[t[1]].append(0)
```

```
attenuation+=1/(t[0]*pas)

for j in range(len(Profile)):
    plt.plot(Xaxe[j],Profile[j],coltab[j])
    print(j)
    plt.fill_between(Xaxe[j],YMAX[j], Ymin[j],
                     where=YMAX[j] >= Ymin[j], facecolor=coltab[j],
                     alpha=0.5, interpolate=True)

plt.xticks(np.arange(0,tailleEchant+1,5))
plt.savefig("AbsElectrons.svg")

print(Profile[3][-1])
```

.5 Appendice 4 : Code de Nicolas Bergeard, ayant permis l'accélération du traitement des données de slicing.

```
# -*- coding: utf-8 -*-
"""
Created on Mon Apr  1 10:08:25 2019

@author: bergeard
"""

import sys
import io
import os
import linecache
import numpy as np
import scipy as sp
from scipy import *
from scipy.integrate import odeint
import matplotlib.pyplot as plt
from scipy.interpolate import interp1d
from math import *
from scipy import linalg

from pyspec_spec import SpecDataFile

##Select the file path towards the data
filePath = r""
os.chdir( filePath )
#list_dir = os.listdir('.')
#print(list_dir)
##Indicate the root of the file names:
fileName = "2021-05-Boeglin-01_" # spec filename

limiteBasse=978
limiteHaute=983

files=[164,165,166,169,170,171,174,175,176,179,180,181,184,185,186,189]
if len(files)==0:
    for i in range (limiteBasse,limiteHaute+1, 1):
        if ((i-limiteBasse)%5!=3 and (i-limiteBasse)%5!=4):
            if i<100:
                files.append('0'+str(i))
            else:
                files.append(str(i))
```

```

        #if ((i-limiteBasse)%5!=3 and (i-limiteBasse)%5!=4):
            #if ((i-limiteBasse)%4!=3):
                #files.append(i)

print(files)

nb_files=len(files) # number of scans.

NfileName = "{0}{1}".format(fileName,files[0])
fs = io.open(NfileName, "r")
lineOut = fs.readline()
print(lineOut)
list_Header = lineOut.split()
N_header = len(list_Header)

k = 0
while fs.readline():
    k+=1
N_delay = k
print("number of delay in the scan = ",N_delay)
fs.close()

sensors = ["Delay","AcqBcSP","AcqBcSU","AcqBcSPM","AcqBcSUM"]
# here are listed all the sensor need to extract the TR-XMCD signal
index_sensors = []
# contains the number of the column corresponding to the sensors in the files
s = 0
for s in sensors:
    #print(list_Header.index(s))
    index_sensors.append(list_Header.index(s))
print("The number of sensors is = ",len(index_sensors))

DATA=np.zeros((N_delay,len(sensors)))
i = 0
for i in files:
    print(i)
    S_fileName = "{0}{1}".format(fileName,i)
    f = io.open(S_fileName, "r")
    line = f.readline() # we skip the first line that contains the headers....
    z = 0
    while z < N_delay:
        line = f.readline() # we read the line i
        nData = line.split()
        # we transform "line" which is a string as a list of the constituents.

```

```

        o = 0
        u = 0
        for o in index_sensors:
            DATA[z][u]+=float(nData[o])
            u+=1
        z+=1

p=0
while p<N_delay:
    q = 0
    while q < len(index_sensors):
        DATA[p][q]/=nb_files
        q+=1
    p+=1

delay = DATA[:,0]
pumpP = DATA[:,1]
pumpM = DATA[:,3]
unpumpP = DATA[:,2]
unpumpM = DATA[:,4]

XMCD = (pumpP-pumpM)/(unpumpP-unpumpM)

plt.plot(delay,XMCD)
plt.ylabel('Normalized XMCD ')
plt.xlabel("Delay (ps)")
#plt.xlim(650,680)
plt.show()

plt.plot(delay,pumpP)
plt.plot(delay,pumpM)
plt.plot(delay,unpumpP)
plt.plot(delay,unpumpM)
plt.ylabel('transmission ')
plt.xlabel("Delay (ps)")
#plt.xlim(650,680)
plt.show()

## We save the data:
new_fileName = "{0}{1}{2}{3}".format("Femtosing-",files[0],"_",len(files))
fout = io.open(new_fileName, "w") #le fichier de sauvegarde est ouvert...
p=0
while p<N_delay:

```

```
q = 0
while q < len(index_sensors):
    fout.write(str(DATA[p][q]))
    fout.write(" ")
    q+=1
fout.write(str(XMCD[p]))
fout.write("\n")
p+=1
fout.close()
```

.6 Appendice 5 : Algorithme génétique

.6.1 Algorithme de résolution.

Deux méthodes de résolution ont été utilisées en parallèle. Un algorithme génétique et un affinage manuel.

Algorithme génétique

Un algorithme génétique [30] est une méthode de résolution approchée d'un problème. Ce type de résolution appartient à la famille des algorithmes évolutionnistes, eux-mêmes appartenant à la famille plus large des résolutions stochastiques. Un algorithme génétique cherche à donner une solution à un problème d'optimisation en un temps raisonnable. En effet, en divisant le vecteur initial en 15 zones de 10 couches, et en supposant que la concentration ne varie qu'en dixième d'unité, il existe tout de même 10^{15} solution. De plus, un nombre important de solutions existantes ne sont pas pertinentes pour le problème, ni même réalistes étant donné les conditions initiales expérimentales, à savoir une concentration moyenne de gadolinium de 20 ou 35% en fonction de l'échantillon.

Le fonctionnement d'un algorithme génétique est présenté dans la figure 28. Le point de départ est un set de solutions initialisé de façon aléatoire. Une solution est appelée un individu, le groupe, la population. Un individu est composé de gènes, et les variations de ces derniers est nommé un allèle. Ces solutions sont ensuite évaluées grâce à une fonction d'évaluation qui attribue une note à la solution. Cette fonction doit être définie avec soin. Il s'agit en effet du seul lien entre la résolution et le problème physique. Les solutions sont ensuite triées en fonction de la note reçue. La moitié des solutions les moins bien notées sont écartées et remplacées par des combinaisons linéaires des meilleures solutions. Cette étape est appelée le croisement. Enfin, les individus de la nouvelle génération de solutions peuvent subir des mutations, c'est-à-dire des modifications aléatoires d'un ou plusieurs éléments de la solution proposée. Ceci permet d'éviter la stagnation éventuelle dans un minima local en traversant d'éventuelles "barrières évolutives". Le nombre d'itérations peut être fixé par une condition d'arrêt quelconque.

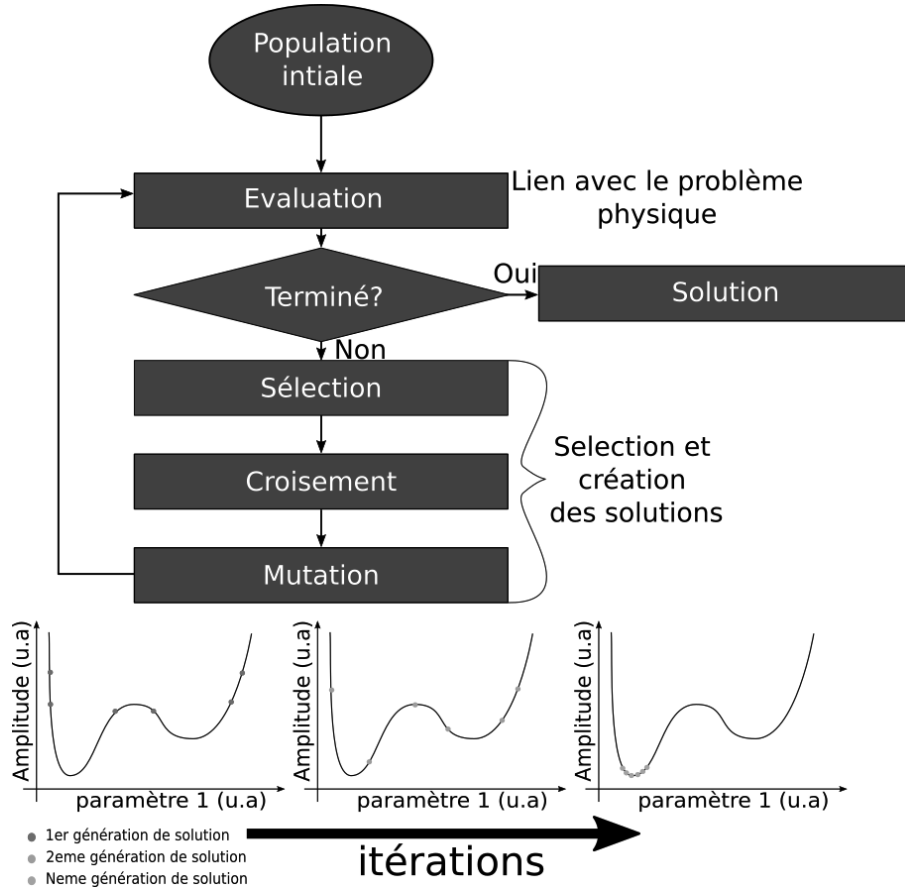


FIGURE 28 – Logique d’un algorithme génétique

Population initiale : Dans mon algorithme génétique, une solution est un vecteur de six scalaires. Trois représentaient la concentration de zones, et trois autres, les limites de ces zones. Cela permet de réduire le nombre de paramètres à faire évoluer et d’éviter de mauvaises solutions. En effet, un autre algorithme, cherchant à optimiser chacune des couches individuellement n’a pas donné de résultats probants, des concentrations d’extrêmes opposés pouvant se côtoyer pour obtenir la meilleur note possible, en faisant fi de toute réalité physique. La population initiale est composée de cinquante de ces vecteurs.

Evaluation et sélection : La fonction d’évaluation calcule les ratio R , grâce à l’équation 10 pour les trois énergies en fonction des concentrations proposées par la solution. Ces R sont comparés à leurs équivalents expérimentaux et j’obtiens ainsi trois valeurs d’erreur par l’équation 8.

$$E_{Nrj} = \frac{R_{simulation} - R_{Experimentale}}{R_{Experimentale}} \quad (8)$$

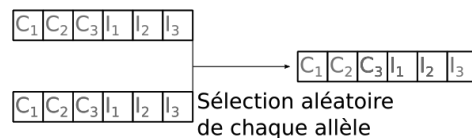
J’en déduis une erreur totale, tel que :

$$E_{totale} = \sqrt{E_{400}^2 + E_{700}^2 + E_{1000}^2} \quad (9)$$

Bien sûr, dans ce cas, une bonne note correspond à une erreur basse, et les solutions sont triées par ordre croissant d'erreurs. La condition de fin a été de vérifier si la solution ne changeait pas, ou peu, après 10 000 générations. La fonction de sélection supprime la moitié des solutions les plus mauvaises.

Croisement : Durant l'étape de croisement de mon algorithme, une nouvelle solution est fabriquée à partir de deux solutions conservées à la suite de l'étape de sélection. Celle-ci reçoit, de façon aléatoire, un allèle d'un des deux parents pour chaque gène. Les deux parents sont choisis de façon déterminée : la meilleure solution et la deuxième sont sélectionnées, puis la deuxième et la troisième, jusqu'à parvenir à la pire solution retenue, qui est croisée avec la meilleure. Ce choix de sélection amplifie le risque de convergence vers un minima local pour deux raisons. La première est que les meilleurs individus sont à priori conservés, ne permettant pas la divergence d'un minima local. La seconde est que cette méthode de croisement va avoir tendance à rapprocher les solutions du minima local, quitte à rendre des solutions non adaptées si elles sont de l'autre côté d'une barrière d'adaptabilité.

Croisement



Effet du croisement

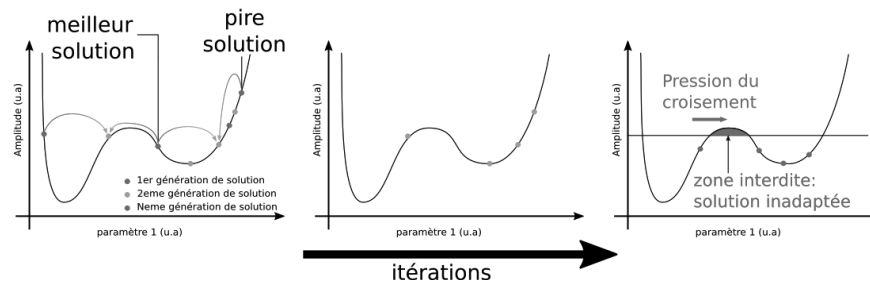


FIGURE 29 – Principe et effet du croisement

Mutation : Afin de contrer la problématique évoquée au paragraphe précédent, les gènes de la solution peuvent être modifiés de façon aléatoire. La fréquence de modification et son amplitude maximum sont fixées dans mon algorithme. L'amplitude de mutation d'un gène varie entre l'amplitude max et 0. Ceci permet de générer des solutions de façon aléatoire. L'avantage est que, si l'on trouve un nouveau minima, il est possible à terme, de s'extraire du premier minima local.

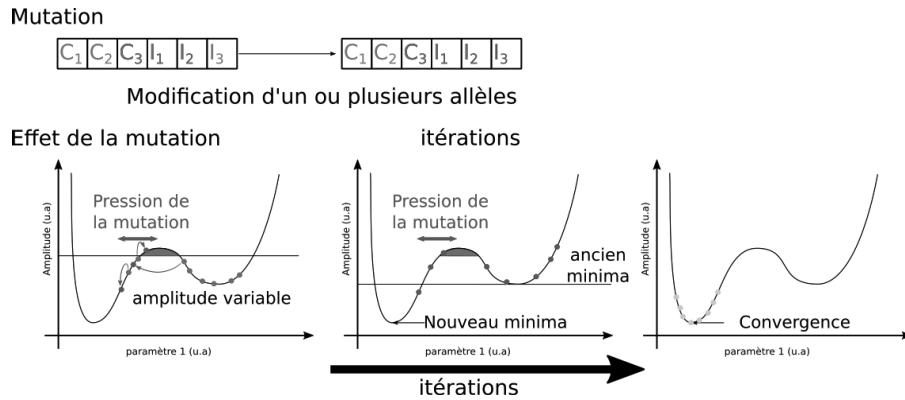


FIGURE 30 – Principe et effet de la mutation

.6.2 Présentation de la modélisation

Afin d'obtenir le profil de concentration en fonction de la profondeur de la couche, nous avons réalisé une modélisation sous python. La couche d'alliage de CoGd de 15 nm est divisé en 150 tranches d'une épaisseur d'un angstrom. On obtient ainsi un vecteur composé de la concentration de chacune des couches. La figure 31 présente ainsi un schéma du modèle employé dans les calculs suivants.

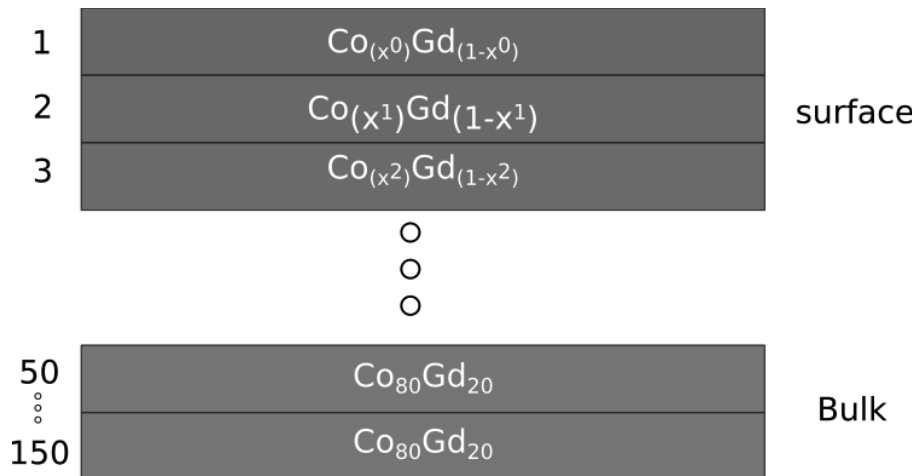


FIGURE 31 – Schéma du modèle ayant permis de calculer le profil de concentration de gadolinium dans la couche d'intérêt.

La modélisation suppose que chaque couche est excitée de la même façon. Bien sûr un modèle plus précis aurait pu ajouter une loi d'absorption des rayons X, et moduler l'excitation de chaque couche par cette exponentielle. Cette approximation se justifie par la transmission élevée des rayons X au travers de l'échantillon. En effet, pour un échantillon de 20 nm, la transmission est supérieure à 80% pour les trois énergies utilisées, 400, 700 et 1000 eV, pour les trois matériaux composant l'échantillon, comme présenté dans la figure 32. Ces données sont issues de [82].

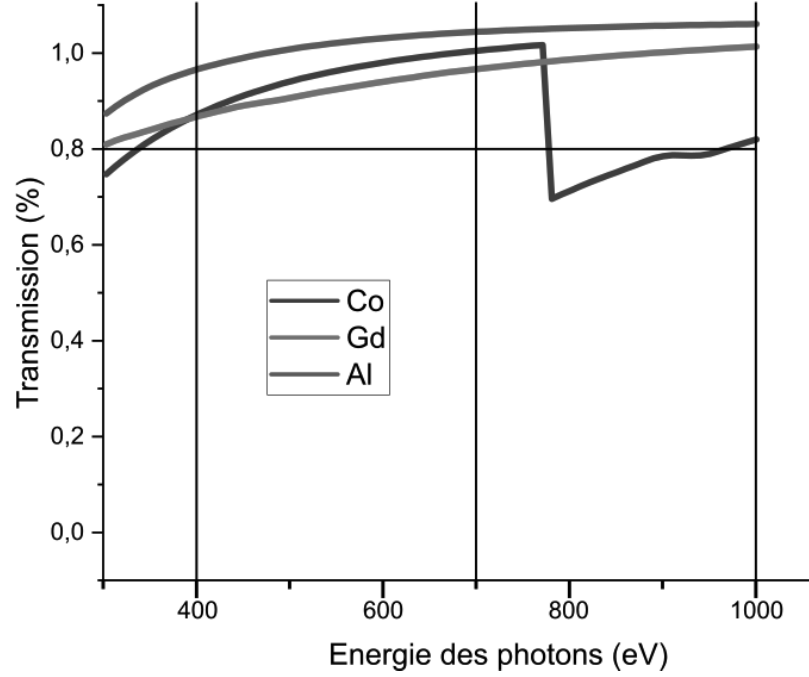


FIGURE 32 – Transmission des rayons X en fonction de son énergie pour les matériaux Al, Co et Gd composant l'échantillon. On constate que la transmission est supérieure à 80% pour chaque matériau.

[82] La détection des électrons émis est cependant à moduler par la loi d'atténuation, exponentielle, décrivant la réabsorption des électrons par le matériau. Le libre parcours moyen des électrons, dépendant de l'énergie des photons et de l'espèce chimique, a une longueur comprise entre 7 et 17 angstrom. Ainsi les valeurs d'intérêts sont calculées par la formule suivante dans la modélisation :

$$R = \frac{\sum_{i=1}^{150} C_{Gd} \times \exp\left(\sum_{k=1}^i \frac{-1}{\cos(\theta)} \frac{1}{C_{Gd} \cdot \lambda_{Gd} + C_{Co} \cdot \lambda_{Co}}\right)}{\sum_{i=1}^{150} C_{Co} \times \exp\left(\sum_{k=1}^i \frac{-1}{\cos(\theta)} \frac{1}{C_{Gd} \cdot \lambda_{Gd} + C_{Co} \cdot \lambda_{Co}}\right)} \quad (10)$$

On a $C_{Gd/Co}$ la concentration en gadolinium ou en cobalt pour la couche sélectionnée, $\lambda_{Gd/Co}$ le libre parcours moyen d'un électron à l'énergie d'émission pour l'espèce chimique traversée et $\cos(\theta)$ l'angle permettant d'inclure les données obtenues par traitement angulaire. Les valeurs λ des espèces chimiques pour les trois énergies utilisées sont les suivantes :

Energies (eV)	λ_{Co} (Å)	λ_{Gd} (Å)
400	6,19	7,33
700	8,18	12,52
1000	9,68	17,26

TABLE 12 – Valeurs de libre parcours moyen des photons électrons dans les matériaux.

Résultats : Mon traitement, présenté dans l'annexe .6, a permis d'obtenir une première série de profils. Ceux-ci sont divisés en quatre parties présentant différentes concentrations. Il est important de noter que les résultats sont pertinents jusqu'à environ 54 Å. Ce chiffre est le triple du plus long parcours moyen. A priori, la photoémission des niveaux de cœur est négligeable au-delà de cette limite et nous n'avons donc pas d'information pertinente grâce à cette méthode entre 5 et 15 nm. Les concentrations proposées à partir de la couche 60 ont, de toute façon, assez peu d'impact sur l'erreur. Cet impact est néanmoins non nul et l'optimisation a été réalisée par l'algorithme en dépit de l'absence de réalité physique de certaines solutions proposées. La modification manuelle des valeurs a été réalisée, afin de limiter les propositions de résultats aberrants. Cette méthode est plus longuement discutée dans la partie .6.2.

Cette focalisation sur les cinquantes premières couches explique le nombre relativement faible de zones proposées dans ce travail préliminaire, et leurs positions : les trois zones débutent respectivement à 0, 5 et 15 Å(33).

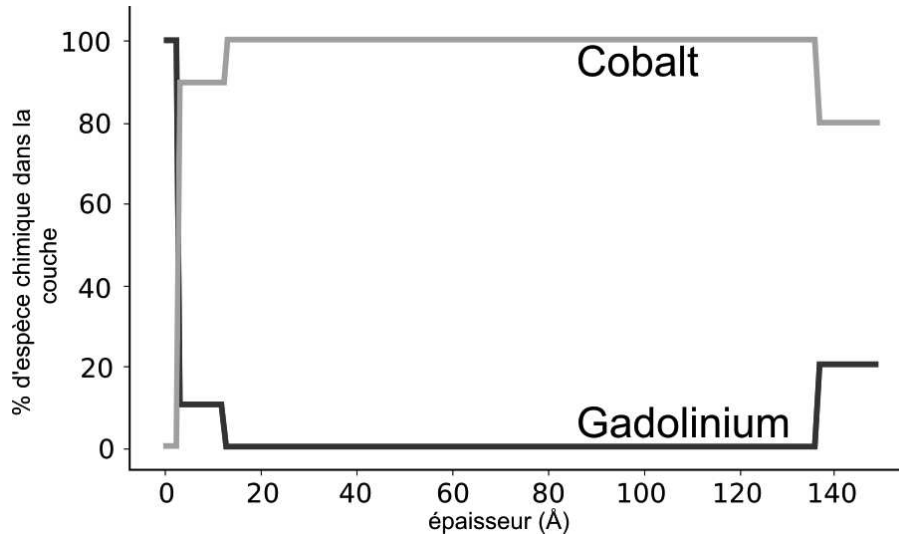


FIGURE 33 – Résultat de l'algorithme génétique pour les valeurs issues de l'échantillon de $Gd_{20}Co_{80}$ après un BI de 250 min.

Les profils présentés en figures 34 et 35, sont issus d'une optimisation manuelle ayant comme point de départ la solution issue de l'algorithme génétique et ont été obtenus pour chaque échantillon : $Gd_{35}Co_{65}$ et $Gd_{20}Co_{80}$. Dans les deux cas, le travail a été réalisé pour deux valeurs de sputtering, 250 et 310 min, en utilisant deux ratios R : Gd_{4d}/Co_{3p} et Gd_{4f}/Co_{3d} . Enfin,

pour s'assurer des résultats, chaque traitement a été réalisé deux fois, chaque expérimentateur ayant proposé une valeur de ratio différente. Il y a donc 8 profils par échantillon présentés dans les figures 34 et 35.

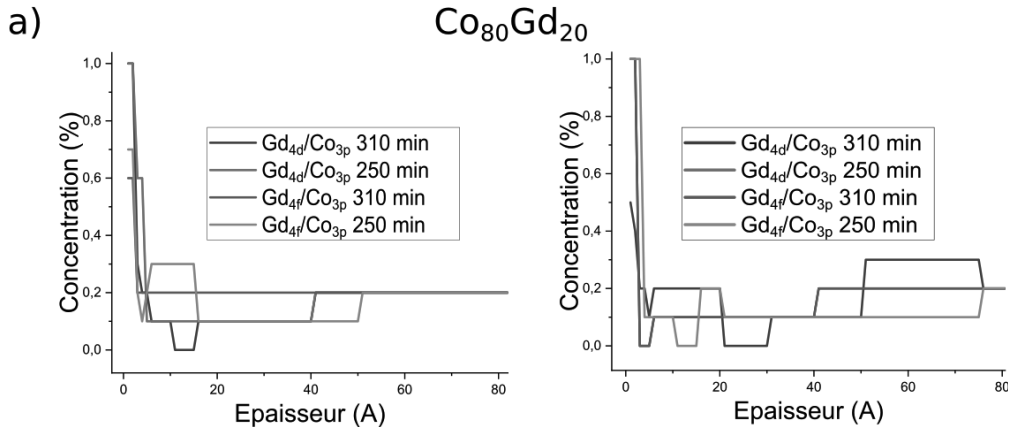


FIGURE 34 – Profils individuels obtenus à partir des valeurs énergétiques de R pour l'échantillon de $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$.

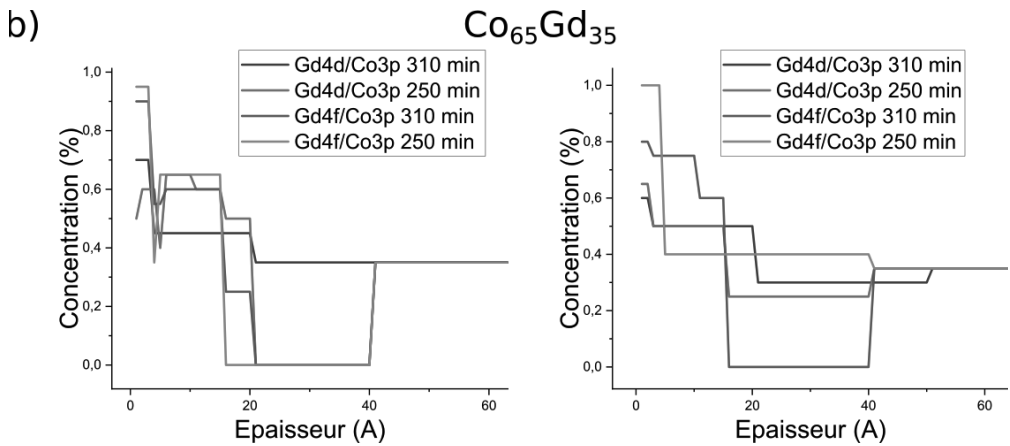


FIGURE 35 – Profils individuels obtenus à partir des valeurs énergétiques de R pour l'échantillon de $\text{Co}_{65}\text{Gd}_{35}$.

Les moyennes sont proposées ci-après dans la figure 36.

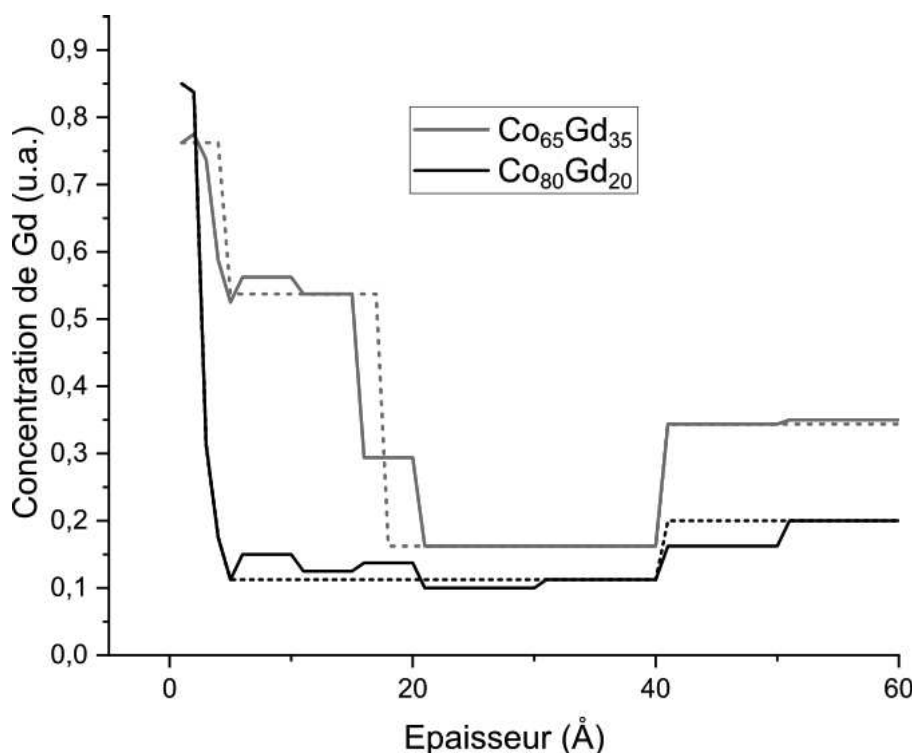


FIGURE 36 – Profils issus de la moyenne de 8 profils individuels pour les échantillons de $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ et de $\text{Co}_{65}\text{Gd}_{35}$. Les lignes pointillées sont les profils lissés.

Affinage manuel

Les valeurs proposées par l'algorithme génétique sont soumises aux conditions d'entrée et, comme expliqué dans la partie précédente, ceci se traduit ici par une optimisation de la valeur E_{totale} . Ainsi, l'algorithme va retourner des propositions de profil où cette valeur est la plus basse possible, sans prendre en compte la réalité de l'échantillon. On peut ainsi obtenir des résultats où la concentration moyenne en gadolinium est de 10% dans l'échantillon de $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$. Pour résoudre ce problème, deux méthodes sont possibles.

La première est de rajouter des conditions d'évaluation. Proposons par exemple, une concentration en Gd moyenne sur tout l'échantillon. Ainsi le profil proposé en exemple, retournant une concentration moyenne de 10% de gadolinium dans l'échantillon ne serait pas un résultat proposé par l'algorithme. Cependant, il est possible que ce résultat soit un intermédiaire évolutif permettant de trouver de meilleures solutions. Rendre un paramètre limitant trop fort revient à augmenter la barrière évaluative présentée dans la figure 29, ce qui mitige l'effet de la mutation, les solutions intermédiaires obtenant une note très basse et étant immédiatement supprimées. Nous sommes donc dans un cas où il n'y a pas de bonne solution et où un compromis est nécessaire. Il faut également rajouter à cela le temps nécessaire pour coder ces conditions, et évaluer leurs effets.

La deuxième est de réaliser une optimisation manuelle de la valeur E_{totale} , en interdisant directement les plages de valeurs sans réalité physique, c'est-à-dire en contradiction avec les mesures réalisées par SQUID, et la composition des échantillons à la suite de leur fabrication. Cette méthode a été privilégiée pour le contrôle direct qu'elle offre et le temp relativement court de mise en place.

Le premier souci de l'affinage manuel est d'augmenter la pertinence des résultats, c'est-à-dire diminuer la valeur de E_{totale} (8 et 9) tout en modifiant la concentration de Gd du modèle autant dans la zone proche de la surface que dans la zone éloignée. Afin de parvenir à ce résultat, le nombre de zones total passe de 4 à 15, comme présenté dans la figure 37. 11 de celle-ci sont comprises entre 0 et 50 couches. Seules 4 zones sont attribuées pour modifier les couches de 50 à 150, plus par souci d'éventuelles modifications ultérieures que par attentes d'interprétations physiques. Ces dernières sont d'ailleurs généralement réglées d'office à la concentration du bulk, en négligeant l'impact de celle-ci sur l'erreur totale. En effet, une variation de 10% de la concentration des zones au-delà de la couche 40 modifie la valeur de E_{totale} de moins de 0,05%.

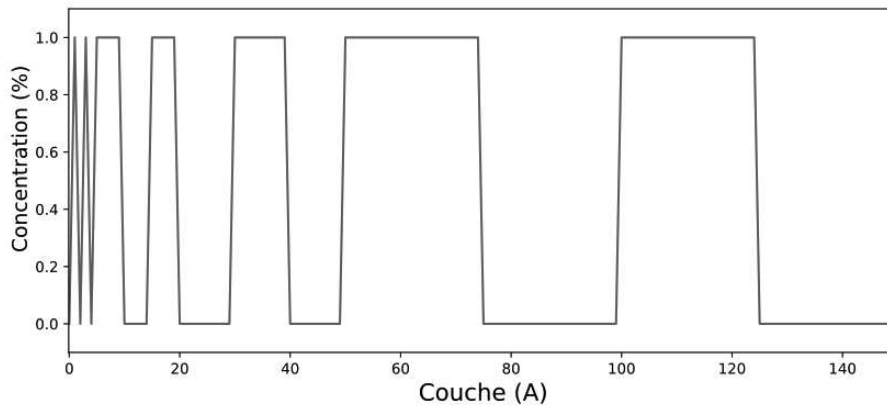


FIGURE 37 – Zones du réglage manuel

.7 Appendice 6 : Dernière version de l'algorithme génétique ayant permis d'obtenir les profils bruts

```
# -*- coding: utf-8 -*-
"""
Created on Tue Oct 19 16:25:58 2021

@author: Matthias
"""

import numpy as np
import matplotlib.pyplot as plt
from math import *
import random as rd
import operator
import os.path

#Var utiles
Xaxe=[]      #Axe des abscisses
Yaxe=[]      #Axes de ordonnées de teste
SommeCo=0    #Somme des contributions du Co
SommeGd=0    #Somme des contributions du Gd

dlCo = 2     #choix des valeurs de libre parcour moyen pour le Co
              #-3 a donnees les meilleurs resultats-
dlGd = 1     #choix des valeurs de libre parcour moyen pour le Gd
              #-1 a donnees les meilleurs resultats-

pas=1
MinSput=2
choixEchant='D_F_4339'

#Var Algorythme genetique
NombreGenerationMax = 10000
TaillePop=100
Vec1=[0,2,26,60,0.35,0.35,0.35,0,0,0]

Pop=[]
ProbMut=0.8
AmpMut=0.9

#Variables physiques
```

```

theta = radians(0)
Vbulk=35/100      #Valeur min,supposée égale à la concentration
                  #du bulk

#Stack
Profile = np.zeros((150*pas,3)) #Profile chimique
Emission = np.zeros((150*pas,3)) #Profile d'émission

#Valeur cible Test init:
tabPRIME=
    [[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
     [1.80554,  1.7084,   0.82251,  0.60704], #Gd4d/Co3p 400eV
     [1.59935,  0.48384,   0.4741,   0.30491], #Gd4d/Co3p 700eV
     [nan,      0.33895,   0.21502,   0.17374]] #Gd4d/Co3p 1000eV

tab1_5250=
    [[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
     [1.9498,   0.72328,   0.5354,   0.33672], #Gd4d/Co3p 400eV
     [1.59935,  0.4917,   0.4741,   0.30491], #Gd4d/Co3p 700eV
     [nan,      0.36787,   0.31192,   0.27716]] #Gd4d/Co3p 1000eV

#5250 Matthias
tab_5250_Matthias_4d=
    [[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
     [2.90611,  1.11951,   0.87416,   0.54559], #Gd4d/Co3p 400eV
     [1.18011,  0.57867,   0.48247,   0.32124], #Gd4d/Co3p 700eV
     [nan,      0.39999,   0.327,     0.24658]] #Gd4d/Co3p 1000eV

tab_5250_Matthias_4f=
    [[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
     [3.54737,  1.37399,   0.60136,   0.41106], #Gd4f/Co3p 400eV
     [2.52178,  0.97468,   0.4938,    0.36465], #Gd4f/Co3p 700eV
     [nan,      0.61649,   0.32097,   0.28802]] #Gd4f/Co3p 1000eV

#5250 Nicolas
tab_5250_Nicolas_4d=
    [[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
     [2.54606,  0.77466,   0.43052,   0.29313], #Gd4d/Co3p 400eV
     [0.75906,  0.47805,   0.35684,   0.27093], #Gd4d/Co3p 700eV
     [0.61176,  0.44449,   0.31799,   0.2566 ]] #Gd4d/Co3p 1000eV

tab_5250_Nicolas_4f=
    [[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
     [4.72996,  1.38552,   0.67651,   0.46803], #Gd4d/Co3p 400eV
     [1.91189,  0.80703,   0.47524,   0.32823], #Gd4d/Co3p 700eV

```

```

    [0.70381, 0.3391, 0.18188, 0.14199]] #Gd4d/Co3p 1000eV
angle_5250_Nicolas=[0.4188,0.36265,0.37601,
                    0.38712,0.42768,0.48607,0.70472] #Gd4f/Co3p Angle

```

```
#4339 Nicolas
```

```

tab_4339_Nicolas_4fd=
    [[50, 100, 250, 310 ], #Minutes de sputtering
     [8.4981, 2.47568, 2.20125, 2.20501], #Gd4f/Co3d 400eV
     [3.13902, 1.47968, 1.47603, 1.39891], #Gd4f/Co3d 700eV
     [1.07879, 0.62176, 0.72431, 0.68856]] #Gd4f/Co3d 1000eV

```

```

tab_4339_Nicolas_4dp=
    [[50, 100, 250, 310 ], #Minutes de sputtering
     [3.1992, 1.39113, 1.1883, 1.15497], #Gd4d/Co3p 400eV
     [1.36153, 0.92134, 1.05993, 0.96209], #Gd4d/Co3p 700eV
     [0.90888, 0.88846, 0.95293, 0.95428]] #Gd4d/Co3p 1000eV

```

```
#4339 Deeksha
```

```

tab_4339_Deeksha_4fd=
    [[50, 100, 250, 310 ], #Minutes de sputtering
     [6.49666, 2.20572, 2.09012, 2.08185], #Gd4f/Co3d 400eV
     [2.95507, 1.60547, 1.73367, 1.62711], #Gd4f/Co3d 700eV
     [1.0686, 0.75745, 0.77711, 0.78425]] #Gd4f/Co3d 1000eV

```

```

tab_4339_Deeksha_4dp=
    [[50, 100, 250, 310 ], #Minutes de sputtering
     [2.59574, 1.35428, 1.09281, 1.03744], #Gd4d/Co3p 400eV
     [0.99076, 0.89194, 1.05377, 0.90352], #Gd4d/Co3p 700eV
     [0.88445, 0.74658, 0.82692, 0.85167]] #Gd4d/Co3p 1000eV

```

```
#Sauvegarde et variables
```

```

if choixEchant == 'M0':
    tab=tab1_5250
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "PopSaved_V3_5250_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

```

```

elif choixEchant == 'M_D_5250':
    tab=tab_5250_Matthias_4d

```

```

xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
yAngleCible=angle_5250_Nicolas
fichierSauvegarde = "PopSavedV3_5250_2_4d_Sputt"+
                    str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'M_F_5250':
    tab=tab_5250_Matthias_4f
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "PopSavedV3_5250_2_4f_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'N_D_5250':
    tab=tab_5250_Nicolas_4d
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "PopSavedV3_5250_Nicolas_4d_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'N_F_5250':
    tab=tab_5250_Nicolas_4f
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "PopSavedV3_5250_Nicolas_4f_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'N_D_4339':
    tab=tab_4339_Nicolas_4dp
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "PopSavedV3_4339_Nicolas_4dp_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'N_F_4339':
    tab=tab_4339_Nicolas_4fd
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "PopSavedV3_4339_Nicolas_4fd_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'D_F_4339':
    tab=tab_4339_Deeksha_4fd
    xAngleCible=[0,30,50]
    yAngleCible=[1.21633,1.14049,1.34923]
    fichierSauvegarde = "PopSavedV3_4339_Deksha_4fd_Sputt"+

```

```

str(tab[0][MinSput]))+".dat"

elif choixEchant == 'D_D_4339':
    tab=tab_4339_Deeksha_4dp
    xAngleCible=[0,30,50]
    yAngleCible=[1.21633,1.14049,1.34923]
    fichierSauvegarde = "PopSavedV3_4339_Deksha_4dp_Sputt"+
        str(tab[0][MinSput]))+".dat"

#Constantes physiques
#336;636;936
if dlCo == 1:
    LambdaCO=[7.28,11.13,14.71]    #Tanuma,Powel & Penn
                                    #(optical data +
                                    #predictive formula)

elif dlCo == 2:
    LambdaCO=[6.98,10.78,14.27]    #Gries (predictive formula)

elif dlCo == 3:
    LambdaCO=[6.19,8.18,9.68]      #EPES & Monte Carlo
                                    #Calculations (experimental
                                    #data) Al reference

else:
    LambdaCO=[8.93,12.71,15.74]    #EPES & Monte Carlo
                                    #Calculations (experimental
                                    #data) Pd reference

#248;548;848
if dlGd == 1:
    LambdaGD=[7.33,12.52,17.26]    #Tanuma,Powel & Penn
                                    #(optical data +
                                    #predictive formula)

else:
    LambdaGD=[6.67,11.65,16.16]    #Gries (predictive formula)

Energie=[400,700,1000]#Energie des photons

#Préparation des deux axes.
for i in range (0,len(Profile)):
    Xaxe.append(i/pas)
    Yaxe.append(1)

```

```

#Fonctions mathématique utiles
def Step(x,valeur,OF=0):
    if OF==0:
        if x>valeur:
            return(1)
        else:
            return(0)
    elif OF==1:
        if x<valeur:
            return(1)
        else:
            return(0)

def Porte(MIN,MAX,x):
    if x>=MIN and x<MAX:
        return(1)
    else:
        return(0)

#Fonctions de calcul de la concentration du Gadolinium
def ConcentrationGd(NBcouche,Vector,tailleTab,Vfin):
    val=Porte(0,Vector[1],NBcouche/pas)*Vector[4]+
        Porte(Vector[1],Vector[2],NBcouche/pas)*Vector[5]+
        Porte(Vector[2],Vector[3],NBcouche/pas)*Vector[6]+
        Porte(Vector[3],tailleTab,NBcouche/pas)*Vfin
    return(val)

def creaProfil(ProfileLocal,Population,SolutionLocal,Vbulklocal):
    #Creation du profile chimique
    for i in range(len(ProfileLocal)):
        #ConcentrationGd(i,Pop[0],len(Profile),Vbulk
        Gd=ConcentrationGd(i,Population[SolutionLocal],
            len(ProfileLocal),Vbulklocal)
        ProfileLocal[i][0]=Gd
        #Suposition: pas de Co dans l'alu.
        if i/pas >=0:
            ProfileLocal[i][1]=(1-Gd)
            ProfileLocal[i][2]=0
        else:
            ProfileLocal[i][1]=0
            ProfileLocal[i][2]=(1-Gd)
    return(ProfileLocal)

def creaEmission(ProfileLocal,SolutionLocal,LambdaC0Local,
    LambdaGDLocal):

```

```

    #Control qualité de la solution
    variance=0
    #Emission de Co et Gd de chaque couche et somme
    #des participation pour chaque énergie
    for j in range(len(LambdaC0Local)):
        SommeGd=0
        SommeCo=0
        attenuation = 0
        for i in range(0,len(Profile)):
            temp=exp(-attenuation/cos(theta))
            SommeGd+=ProfileLocal[i][0]*temp
            SommeCo+=ProfileLocal[i][1]*temp
            attenuation +=
                1/((Profile[i][0]*LambdaGDLocal[j]+
                    (1-Profile[i][0])*LambdaC0Local[j])*pas)

        Pop[SolutionLocal][j+7]=(SommeGd/SommeCo)
        variance+=((SommeGd/SommeCo)-tab[j+1][MinSput])**2
    Pop[SolutionLocal][0]=variance

#Fonctions algo Gene
def mutation(individu,chance):
    copie=individu.copy()
    if (rd.randrange(0,10,1)/10)<chance:
        copie[rd.randrange(1,7,1)]*=(1+
            rd.randrange(-AmpMut*10,1+AmpMut*10,1)/10)
    for i in range(4,7,1):
        if copie[i]>1 or copie[i]<0:
            return(individu)
    if copie[1]<0 or copie[1]>copie[2] or
        copie[2]>copie[3] or copie[3]>150*pas:
        return(individu)
    return(copie)

def Enfant(Papa,Maman):
    copie=Papa.copy()
    for i in range(1,len(copie)):
        if (rd.randrange(0,10,1)/10)<0.5:
            copie[i]=Maman[i]
    return(copie)

#Début du programme
rd.seed()

```

```

#Init population et problème:
if os.path.isfile(fichierSauvegarde):
    Pop = np.loadtxt(fichierSauvegarde)

else:
    for i in range(TaillePop):
        Pop.append(mutation(Vec1, ProbMut))
    k=0

while k<NombreGenerationMax:

    if k!=0:
        #Supression des éléments les plus mauvais
        integ=int(TaillePop/2)
        for i in range(integ,TaillePop-1):
            Pop[i]=Enfant(Pop[integ],Pop[i-integ])
            Pop[TaillePop-1]=Enfant(Pop[integ],Pop[0])
        #Mutation des parents
        for i in range(1,integ):
            Pop[i]=mutation(Pop[i], ProbMut)

    #Partie Physique: Evaluation des solutions
    for Solution in range(TaillePop):
        Profile = np.ones((150*pas,3)) #Profile chimique
        Emission = np.ones((150*pas,3)) #Profile d'émission
        Profile=creaProfil(Profile,Pop,Solution,Vbulk)
        creaEmission(Profile,Solution,LambdaCO,LambdaGD)

    #Triage des éléments du plus petit au plus grand.
    Pop=sorted(Pop,key=operator.itemgetter(0))
    k+=1
    if (k*100/NombreGenerationMax)%1==0:
        print(k*100/NombreGenerationMax, " %")

#Verif solution
Somme = (tab[1][MinSput]**2+tab[2][MinSput]**2+tab[3][MinSput]**2)
SommeExp = (Pop[0][7]**2+Pop[0][8]**2+Pop[0][9]**2)
Erreur = Pop[0][0]*100/Somme
print(" Variance: ",Pop[0][0], "\n",
      "Erreur",Erreur, "\n",
      "Somme Experience",Somme, "\n",
      "Somme Simulation",SommeExp, "\n","\n",
      "Exp a 400 eV:",tab[1][MinSput],"\n",

```

```
    "Exp a 700 eV:",tab[2][MinSput] ,"\n",
    "Exp a 1000 eV:",tab[3][MinSput] ,"\n","\n",
    "Valeur a 400 eV:",Pop[0][7],"\n",
    "Valeur a 700 eV:",Pop[0][8] ,"\n",
    "Valeur a 1000 eV:",Pop[0][9] ,"\n")
Profile=creaProfil(Profile, Pop, 0, Vbulk)

plt.plot(Xaxe,Profile[:,0], label="Concentration de Gadolinium")
plt.plot(Xaxe,Profile[:,1], label="Concentration de Cobalt")

np.savetxt(fichierSauvegarde, Pop)
```

.8 Appendice 7 : Dernière version du code de correction manuel ayant permis de corriger les profils bruts

```
# -*- coding: utf-8 -*-
"""
Created on Fri Oct 29 11:42:43 2021

@author: Matthias
"""

from tkinter import *
from math import *
import numpy as np
import matplotlib.pyplot as plt
import matplotlib
matplotlib.use('TkAgg')
from matplotlib.backends.backend_tkagg import FigureCanvasTkAgg,
    NavigationToolbar2Tk
from matplotlib.figure import Figure

from pandas import DataFrame

#Var utiles
Xaxe=[]      #Axe des abscisses
Yaxe=[]      #Axes de ordonnées de teste
Xangle=[0,0,0,0,0,0,0]
Yangle=[0,0,0,0,0,0,0]
SommeCo=0    #Somme des contributions du Co
SommeGd=0    #Somme des contributions du Gd
dlCo = 3     #choix des valeurs de libre parcours moyen pour le Co
                #3 a donné les meilleurs resultats
dlGd = 1     #choix des valeurs de libre parcours moyen pour le Gd
                #1 a donné les meilleurs resultats

pas=1
MinSput=2
choixEchant='N_D_5250'

#Valeur cible Test init:
tabPRIME=
    [[50,          100,          250,          310      ], #Minutes de sputtering
     [1.80554,    1.7084,        0.82251,        0.60704], #Gd4d/Co3p 400eV
     [1.59935,    0.48384,        0.4741,         0.30491], #Gd4d/Co3p 700eV
     [nan,        0.33895,        0.21502,        0.17374]] #Gd4d/Co3p 1000eV
```

```

tab1_5250=
[[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
 [1.9498,   0.72328,  0.5354,   0.33672], #Gd4d/Co3p 400eV
 [1.59935,  0.4917,   0.4741,   0.30491], #Gd4d/Co3p 700eV
 [nan,      0.36787,  0.31192,  0.27716]] #Gd4d/Co3p 1000eV

#5250 Matthias
tab_5250_Matthias_4d=
[[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
 [2.90611,  1.11951,  0.87416,  0.54559], #Gd4d/Co3p 400eV
 [1.18011,  0.57867,  0.48247,  0.32124], #Gd4d/Co3p 700eV
 [nan,      0.39999,  0.327,    0.24658]] #Gd4d/Co3p 1000eV

tab_5250_Matthias_4f=
[[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
 [3.54737,  1.37399,  0.60136,  0.41106], #Gd4f/Co3p 400eV
 [2.52178,  0.97468,  0.4938,   0.36465], #Gd4f/Co3p 700eV
 [nan,      0.61649,  0.32097,  0.28802]] #Gd4f/Co3p 1000eV

#5250 Nicolas
tab_5250_Nicolas_4d=
[[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
 [2.54606,  0.77466,  0.43052,  0.29313], #Gd4d/Co3p 400eV
 [0.75906,  0.47805,  0.35684,  0.27093], #Gd4d/Co3p 700eV
 [0.61176,  0.44449,  0.31799,  0.2566  ]] #Gd4d/Co3p 1000eV

tab_5250_Nicolas_4f=
[[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
 [4.72996,  1.38552,  0.67651,  0.46803], #Gd4f/Co3p 400eV
 [1.91189,  0.80703,  0.47524,  0.32823], #Gd4f/Co3p 700eV
 [0.70381,  0.3391,   0.18188,  0.14199]] #Gd4f/Co3p 1000eV
angle_5250_Nicolas=[0.4188,0.36265,0.37601,0.38712,0.42768,
                    0.48607,0.70472] #Gd4f/Co3p Angle

#4339 Nicolas
tab_4339_Nicolas_4fd=
[[50,      100,      250,      310    ], #Minutes de sputtering
 [8.4981,   2.47568,  2.20125,  2.20501], #Gd4f/Co3d 400eV
 [3.13902,  1.47968,  1.47603,  1.39891], #Gd4f/Co3d 700eV
 [1.07879,  0.62176,  0.72431,  0.68856]] #Gd4f/Co3d 1000eV
angle_4339_fd_Nicolas=[2.2517,  1.68648,  1.571,  1.7284,
                       1.69593,  2.10084,  2.45016] #Gd4f/Co3d Angle

```

```

tab_4339_Nicolas_4dp=
    [[50,      100,      250,      310    ],      #Minutes de sputtering
     [3.1992,   1.39113,   1.1883,   1.15497],      #Gd4d/Co3p 400eV
     [1.36153,  0.92134,   1.05993,  0.96209],      #Gd4d/Co3p 700eV
     [0.90888,  0.88846,   0.95293,  0.95428]]      #Gd4d/Co3p 1000eV

angle_4339_fp_Nicolas=[1.75703,  1.33996,  1.33636, 1.41822,
                       1.42386,   1.73382,   1.93215] #Gd4f/Co3p Angle

#4339 Deeksha
tab_4339_Deeksha_4fd=
    [[50,      100,      250,      310    ],      #Minutes de sputtering
     [6.49666,  2.20572,   2.09012,  2.08185],      #Gd4f/Co3d 400eV
     [2.95507,  1.60547,   1.73367,  1.62711],      #Gd4f/Co3d 700eV
     [1.0686,   0.75745,   0.77711,  0.78425]]      #Gd4f/Co3d 1000eV

tab_4339_Deeksha_4dp=
    [[50,      100,      250,      310    ],      #Minutes de sputtering
     [2.59574,  1.35428,   1.09281,  1.03744],      #Gd4d/Co3p 400eV
     [0.99076,  0.89194,   1.05377,  0.90352],      #Gd4d/Co3p 700eV
     [0.88445,  0.74658,   0.82692,  0.85167]]      #Gd4d/Co3p 1000eV

#Sauvegarde et variables

if choixEchant == 'M0':
    tab=tab1_5250
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "MainV3_5250_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'M_D_5250':
    tab=tab_5250_Matthias_4d
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "MainV3_5250_2_4d_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'M_F_5250':
    tab=tab_5250_Matthias_4f
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "MainV3_5250_2_4f_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

```

```

elif choixEchant == 'N_D_5250':
    tab=tab_5250_Nicolas_4d
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "MainV3_5250_Nicolas_4d_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'N_F_5250':
    tab=tab_5250_Nicolas_4f
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_5250_Nicolas
    fichierSauvegarde = "MainV3_5250_Nicolas_4f_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'N_D_4339':
    tab=tab_4339_Nicolas_4dp
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_4339_fp_Nicolas
    fichierSauvegarde = "MainV3_4339_Nicolas_4dp_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'N_F_4339':
    tab=tab_4339_Nicolas_4fd
    xAngleCible=[0,10,20,30,40,50,60]
    yAngleCible=angle_4339_fd_Nicolas
    fichierSauvegarde = "MainV3_4339_Nicolas_4fd_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'D_F_4339':
    tab=tab_4339_Deeksha_4fd
    xAngleCible=[0,30,50]
    yAngleCible=[1.21633,1.14049,1.34923]
    fichierSauvegarde = "MainV3_4339_Deksha_4fd_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

elif choixEchant == 'D_D_4339':
    tab=tab_4339_Deeksha_4dp
    xAngleCible=[0,30,50]
    yAngleCible=[1.21633,1.14049,1.34923]
    fichierSauvegarde = "MainV3_4339_Deksha_4dp_Sputt"+
                        str(tab[0][MinSput])+".dat"

#Constantes physiques
#336;636;936

```

```

if dlCo == 1:
    LambdaCO=[7.28,11.13,14.71]      #Tanuma,Powel & Penn
                                      #(optical data +
                                      #predictive formula)

elif dlCo == 2:
    LambdaCO=[6.98,10.78,14.27]      #Gries (predictive formula)

elif dlCo == 3:
    LambdaCO=[6.19,8.18,9.68]        #EPES & Monte Carlo
                                     #Calculations (experimental
                                     #data) Al reference

elif dlCo == 4:
    LambdaCO=[8.93,12.71,15.74]      #EPES & Monte Carlo
                                     #Calculations (experimental
                                     #data) Pd reference

else:
    LambdaCO=[7.33,12.52,17.26]

#248;548;848
if dlGd == 1:
    LambdaGD=[7.33,12.52,17.26]      #Tanuma,Powel & Penn
                                      #(optical data +
                                      #predictive formula)

else:
    LambdaGD=[6.67,11.65,16.16]      #Gries (predictive formula)

Energie=[400,700,1000]              #Energie des photons

#Variables physiques
theta = radians(0)
ExpLCG = 1.1 #Longueur carac du gradient
VMGd=9/10    #Valeur max ségrégée en surface
VmGd =0/10
Vbulk=2/10    #Valeure min,supposée égale à la concentration
               #du bulk
Al=0          #Nombre couche d'aluminium (Angstrum)
Gd=(Al+2)     #Nombre de couche où il y seulement du Gd (Angstrum)
ZV=(VMGd+VmGd)/Vbulk + Gd

#Stack
Profile = np.ones((150*pas,3)) #Profile chimique
Emission = np.ones((150*pas,3)) #Profile d'émission

#Préparation des deux axes.
for i in range (0,len(Profile)):
    Xaxe.append(i/pas)

```

```

Yaxe.append(1)

window = Tk()
NbBouttons = 15
N=100
s=[Scale]*NbBouttons
b=[Label]*13
c0=StringVar()
c1=StringVar()
c2=StringVar()
c3=StringVar()
c4=StringVar()
B=0.5
Vec=[0]*15
Sol=[0]*4

FrameGroup = [None, None, None, None]
#FrameGroup.append()
for i in range(4):
    FrameGroup[i]=Frame(window, borderwidth=2, relief=GROOVE)
    FrameGroup[i].pack(side=LEFT, padx=30, pady=30)

plt.figure

def Porte(MIN,MAX,x):
    if x>=MIN and x<MAX:
        return(1)
    else:
        return(0)

def ConcentrationGd(NBcouche,Vector,tailleTab,Vfin):
    temp=[0,1,2,3,4,5,10,15,20,30,40,50,75,100,125,150]
    val=0
    for i in range(15):
        val+=Porte(temp[i],temp[i+1],NBcouche/pas)*Vector[i]
    return(val)

def creaProfil(ProfileLocal,SolutionLocal,Vbulklocal):
    #Creation du profile chimique
    for i in range(len(ProfileLocal)):
        #ConcentrationGd(i,Pop[0],len(Profile),Vbulk
        Gd=ConcentrationGd(i,SolutionLocal,len(ProfileLocal),

```

```

                                                                 Vbulklocal)

    ProfileLocal[i][0]=Gd
    #Suposition: pas de Co dans l'alu.
    if i/pas >=0:
        ProfileLocal[i][1]=(1-Gd)
        ProfileLocal[i][2]=0
    else:
        ProfileLocal[i][1]=0
        ProfileLocal[i][2]=(1-Gd)
    return(ProfileLocal)

def creaEmission(ProfileLocal,EmissionLocal,LambdaC0Local,
                  LambdaGDLocal,thetaLocal):
    #Contrôle qualité de la solution
    variance=0
    #Emission de Co et Gd de chaque couche et somme des
    #participations pour chaque énergie
    for j in range(len(LambdaC0Local)):
        SommeGd=0
        SommeCo=0
        attenuation = 0
        for i in range(0,len(ProfileLocal)):
            temp=exp(-attenuation/cos(thetaLocal))
            EmissionLocal[i][0]=ProfileLocal[i][0]*temp
            EmissionLocal[i][1]=ProfileLocal[i][1]*temp
            SommeGd+=ProfileLocal[i][0]*temp
            SommeCo+=ProfileLocal[i][1]*temp
            attenuation +=
                1/((ProfileLocal[i][0]*LambdaGDLocal[j]+
                    ProfileLocal[i][1]*LambdaC0Local[j])*pas)
        Sol[j]=(SommeGd/SommeCo)
        variance+=((SommeGd/SommeCo)-tab[j+1][MinSput])**2
    Sol[3]=variance

def ImpRendu():
    f=open('SolutionSavedMainV2.dat','ab')
    Pp = np.ones((150*pas,3))
    Pp = creaProfil(Pp, Vec, Vbulk)
    np.savetxt(f, Vec)
    np.savetxt('DenierVecteurSSMV2.dat',Pp[:,0], newline=' ')
    print("\n")
    print(str(Vec[0:15]))
    temp = Sol[0]**2+Sol[1]**2+Sol[2]**2
    print("Variance: ",Sol[3], "\n",
          "Valeur a 400 eV:",Sol[0],"\n",

```

```

        "Valeur a 700 eV:",Sol[1] ,"\n",
        "Valeur a 1000 eV:",Sol[2] ,"\n",
        "Somme: ", temp,"\n","Erreur: ",
        Sol[3]*100/temp  )
print(Yangle)

def edited(event):
    #Stack
    Profile = np.ones((150*pas,3)) #Profile chimique
    Emission = np.ones((150*pas,3)) #Profile emission
    for j in range(NbBouttons):
        Vec[j]=float(s[j].get())
    thetaCorrect=float(scaleAngle.get())
    Profile=creaProfil(Profile,Vec,Vbulk)

    for i in range(60,-10,-10):
        theta = radians(i)
        TC      = radians(thetaCorrect)
        creaEmission(Profile,Emission,LambdaCO,LambdaGD,theta-TC)
        Xangle[i//10]=i
        Yangle[i//10]=Sol[1]

    plt.clf()
    ax = plt.subplot(2,1,1)
    ax.plot(Xaxe,Profile[:,0])
    plt.xlabel("Couche (A)",size=16)
    plt.ylabel("      Contribution de la couche(A.U)
                Concentration (%)",size=14)

    cx = plt.subplot(2,1,2)
    cx.plot(Xangle,Yangle)
    cx.plot(xAngleCible,yAngleCible)
    ax.set(xlim=(-0.1,len(Profile)), ylim=(-0.1, 1.1))
    cx.set(xlim=(0,60), ylim=(min(yAngleCible)*0.8,
        max(yAngleCible)*1.2))

    plt.show(block=False)
    c0.set(str(Sol[3]))
    c1.set(str(Sol[0]))
    c2.set(str(Sol[1]))
    c3.set(str(Sol[2]))
    c4.set(str(Vec[0:15]))

    for i in range(len(s)):
        s[i]= Scale(FrameGroup[(i//5)+1], label='Concentration '+
            str(i+1), from_=0, to=1, orient=HORIZONTAL,length=200,

```

```

        showvalue=1, tickinterval=0.05, resolution=0.05, command=edited)
        s[i].pack()

#Rendu
Rendu=Button(FrameGroup[0],text="Rendu", command=ImpRendu)
Rendu.pack()
MAJ=Button(FrameGroup[0],text="Maj", command=edited)
MAJ.pack()
c4.set(str(Vec[0:6]))
b[0]=Label(FrameGroup[0], text="The variance is:")
b[1]=Label(FrameGroup[0], textvariable=c0)
b[2]=Label(FrameGroup[0], text="Ratio 400 eV: ")
b[3]=Label(FrameGroup[0], textvariable=c1)
b[4]=Label(FrameGroup[0], text="Cible: " + str(tab[1][MinSput]))
b[5]=Label(FrameGroup[0], text="Ratio 700 eV:")
b[6]=Label(FrameGroup[0], textvariable=c2)
b[7]=Label(FrameGroup[0], text="Cible: " + str(tab[2][MinSput]))
b[8]=Label(FrameGroup[0], text="Ratio 1000 eV:")
b[9]=Label(FrameGroup[0], textvariable=c3)
b[10]=Label(FrameGroup[0], text="Cible: " + str(tab[3][MinSput]))
b[11]=Label(FrameGroup[0], text="Vecteur")
b[12]=Label(FrameGroup[0], textvariable=c4)
for i in range(12):
    b[i].pack()
scaleAngle=Scale(FrameGroup[0], label="Angle de Correction",
    from_=-60, to=60, orient=HORIZONTAL,length=200, showvalue=10,
    tickinterval=5, resolution=5, command=edited)
scaleAngle.pack()

window.mainloop()

```

DMON

.9 Appendice 8 : Protocole utilisé en salle blanche pour réaliser les échantillons

Partie 1 : Pour graver la triple couche de Ta(3nm)/Co(4nm)/Pt(3nm) le procédé suivant est mis en place.

- 1) Lavage par trois rinçages successifs d'éthanol, d'isopropil et d'acétone.
 - 2) Séchage et application d'une couche de résine 5214. Le recouvrement est réalisé à 6000 tours par minutes (P5).
 - 3) Premier recuit pendant 5 minutes à 120degC.
 - 4) Insolation totale (flood)
 - 5) Second recuit pendant 5 minutes à 120degC.
 - 5) Exposition au motif et développement.
 - 6) Troisième recuit 5 minutes à 140degC.
 - 7) Utilisation du Plassys pour une gravure ionique de 12 minutes, afin de retirer la triple couche.
 - 8) Suppression des résidus de résine avec du PG-remover.
- L'échantillon est prêt pour la deuxième partie.

Partie 2 :

Lorsque l'on parle de substrats MgO dans cette recette, on considère qu'il y a soit une couche métallique ou un autre matériau comme SiO2 entre le substrat MgO réel et la réserve. Malheureusement, la surface nue de MgO n'est pas compatible avec cette recette en raison de problèmes d'adhérence et de filtration de l'eau. Pour plus d'informations, voir remarques. Processus :

- 1) Nettoyer avec de l'acétone et de l'isopropanol 3 min chacun. Si une certaine résistance est encore visible, utiliser le dissolvant PG pour un meilleur nettoyage.
- 2) Passer l'échantillon au plasma à oxygène pendant 2 min 20 s à $F = 100$ mW et $r = 10$ (spécialement pour les échantillons transparents).
- 3) Chauffer l'échantillon sur une plaque chauffante à 140 °C pendant 1 min. (Cela élimine l'eau de la surface de l'échantillon et améliore l'adhérence. L'étape suivante doit être effectuée immédiatement après que l'échantillon ait atteint la température ambiante.)
- 4) Laisser refroidir l'échantillon à température ambiante environ. (1 minute)
- 5) Déposer du HDMS et centrifuger à 6000 rpm (P5) (Ceci est utilisé pour améliorer l'adhérence. Le HMDS ne doit pas être enduit par centrifugation car la couche "épaisse" produit des fumées lors du séchage qui compromettent la réserve suivante en la liant au substrat. Utiliser uniquement si l'adhérence est un problème et en laissant l'échantillon sécher et évaporer la plupart des vapeurs.)
- 6) Plaque chauffante HDMS @ 120°C pendant 1 min
- 7) Laisser refroidir l'échantillon à peu près à température ambiante. (3 min. Il est important de respecter ce temps car cela permet également aux vapeurs d'ammoniaque de HMDS de s'évaporer sans endommager la couche suivante)

-
- 8) Déposer LOR3A tout en spin coating (si trop dur spin coat IMMÉDIATEMENT après dépôt complet) à bas rpm (500-1000) puis spin coat à 3000 rpm pendant 45 s. (P9)
 - 9) Plaque chauffante LOR3A @ 160°C pendant 4 min.
 - 10) Laisser refroidir l'échantillon à température ambiante environ. (5 minutes)
 - 11) Déposer AZ1505 puis essorer à 4000 rpm pendant 45s (P1)
 - 12) Plaque chauffante AZ1505 @ 105°C pendant 50 s pour Si et Al₂O₃.
 - 13) Exposer à 2 mW 85% pour le Si et Al₂O₃.
 - 14) Post-cuisson en plaque chauffante @ 115°C pendant 50 s pour Si et métaux, 1 min pour verre et MgO.
Cela supprime les motifs d'ondes stationnaires sur AZ1505 créés lors de l'utilisation d'une exposition à une seule longueur d'onde en rendant l'AZ1505 restant plus homogène et en permettant un meilleur développement et une forme finale.
 - 15) Développer dans AZ726MIF pendant 20 s si 2mW 85% a été utilisé en exposition et développer pendant 18 s si 3mW 60% a été utilisé à la place.
 - 16) Rincer à l'eau déminéralisée pendant 20 s maximum. (18 s pour MgO et probablement aussi pour le verre)
 - 17) Dépôt 18) Après le dépôt, l'échantillon doit être placé dans PG-Remover pour être enlevé si LOR3A a été utilisé dans le processus.

.10 Appendice 9 : Code ayant permis la réalisation des polygones nécessaires à la fabrication des antennes spirales.

```
# -*- coding: utf-8 -*-
"""
Spyder Editor

This is a temporary script file.
"""

import math
import pylab as plt

pas=10

a=2
b=3
d=4
angle = math.pi
k=0.5

nomFichier1 = "./ascii/Spirale2B1.txt"
nomFichier2 = "./ascii/Spirale2B2.txt"

nomFichierCalc1 = "./ascii/SpiraleCalcB1.txt"
nomFichierCalc2 = "./ascii/SpiraleCalcB2.txt"

def RAYON(n,c1,e,c2,ang):
    #return(c1*math.exp(n*k*ANGLE(n,c2,ang))+e*pas)
    return(c1*math.exp((k*n)/pas)+e)

def ANGLE(n,c2,ang):
    #return((c2*n+ang*pas)*2*math.pi/pas)
    return(c2*n/pas + ang)

def fx(n,c1,c2,e,ang):
    return(RAYON(i,c1,e,c2,ang)*math.sin(ANGLE(i,c2,ang)))
def fy(n,c1,c2,e,ang):
    return(RAYON(i,c1,e,c2,ang)*math.cos(ANGLE(i,c2,ang)))

def R(n):
    return((1+math.sqrt(n)*1)/pas)
```

```

fin = [[0 for i in range(int(2*d*pas))] for j in range(4)]
finStr = [[0 for i in range(int(2*d*pas))] for j in range(4)]
finCalc= [[0 for i in range(int(2*d*pas))] for j in range(4)]

f1 = open(nomFichier1, "w")
f2 = open(nomFichier2, "w")
calc1 = open(nomFichierCalc1, "w")
calc2 = open(nomFichierCalc2, "w")

for i in range(int(d*pas)):
    fin[0][i]=fx(i,a,b,R(i),0)
    fin[1][i]=fy(i,a,b,R(i),0)
    fin[0][2*int(d*pas)-1-i]=fx(i,a,b,-R(i),0)
    fin[1][2*int(d*pas)-1-i]=fy(i,a,b,-R(i),0)

    fin[2][i]=fx(i,a,b,R(i),angle)
    fin[3][i]=fy(i,a,b,R(i),angle)
    fin[2][2*int(d*pas)-1-i]=fx(i,a,b,-R(i),angle)
    fin[3][2*int(d*pas)-1-i]=fy(i,a,b,-R(i),angle)

    finStr[0][i]="(a*exp(k*"+str(i)+"/pas)+(1+("+str(i)+
        "^{(1/2)}/pas)))sin(b*"+str(i)+"/pas)"

    finStr[0][2*int(d*pas)-1-i]=
        "(a*exp(k*"+str(2*int(d*pas)-1-i)+"/pas)
        -(1+("+str(2*int(d*pas)-1-i)
        +"{(1/2)}/pas)))sin(b*"+str(2*int(d*pas)-1-i)+ "/pas)"

    finStr[1][i]="(a*exp(k*"+str(i)+"/pas)+(1+("+str(i)+
        "^{(1/2)}/pas)))cos(b*"+str(i)+"/pas)"

    finStr[1][2*int(d*pas)-1-i]=
        "(a*exp(k*"+str(2*int(d*pas)-1-i)+"/pas)
        -(1+("+str(2*int(d*pas)-1-i)+
        "{(1/2)}/pas)))cos(b*"+str(2*int(d*pas)-1-i)+ "/pas)"

    finStr[2][i]="(a*exp(k*"+str(i)+"/pas)+(1+("+str(i)+
        "^{(1/2)}/pas)))sin((b*"+str(i)+"/pas)+ang)"

    finStr[2][2*int(d*pas)-1-i]=
        "(a*exp(k*"+str(2*int(d*pas)-1-i)+"/pas)
        -(1+("+str(2*int(d*pas)-1-i)+
        "{(1/2)}/pas)))sin((b*"+str(2*int(d*pas)-1-i)+"/pas)+ang)"

```

```

finStr[3][i]="(a*exp(k*"+str(i)+"/pas)+(1+("+str(i)+
            "^{(1/2)/pas}))*cos((b*"+str(i)+"/pas)+ang)"

finStr[3][2*int(d*pas)-1-i]=
            "(a*exp(k*"+str(2*int(d*pas)-1-i)+"/pas)
            -(1+("+str(2*int(d*pas)-1-i)+
            "^{(1/2)/pas}))*cos((b*"+str(2*int(d*pas)-1-i)+"/pas)+ang)"

finCalc[0][i]= str(fin[0][i])
finCalc[0][2*int(d*pas)-1-i]= str(fin[0][2*int(d*pas)-1-i])
finCalc[1][i]= str(fin[1][i])
finCalc[1][2*int(d*pas)-1-i]= str(fin[1][2*int(d*pas)-1-i])

finCalc[2][i]=str(fin[2][i])
finCalc[2][2*int(d*pas)-1-i]=str(fin[2][2*int(d*pas)-1-i])
finCalc[3][i]=str(fin[3][i])
finCalc[3][2*int(d*pas)-1-i]=str(fin[3][2*int(d*pas)-1-i])

for i in range(len(finStr[0])):
    f1.write(finStr[0][i] +"          " + finStr[1][i]+"\\n")
    f2.write(finStr[2][i] +"          " + finStr[3][i]+"\\n")
    calc1.write(finCalc[0][i] +"          " + finCalc[1][i]+"\\n")
    calc2.write(finCalc[0][i] +"          " + finCalc[1][i]+"\\n")

f1.close()
f2.close()

plt.plot(fin[0],fin[1])
plt.plot(fin[2],fin[3])
plt.show()

```

.11 Appendice 10 : Résultats de simulations du champ lointain.

Bow-tie large

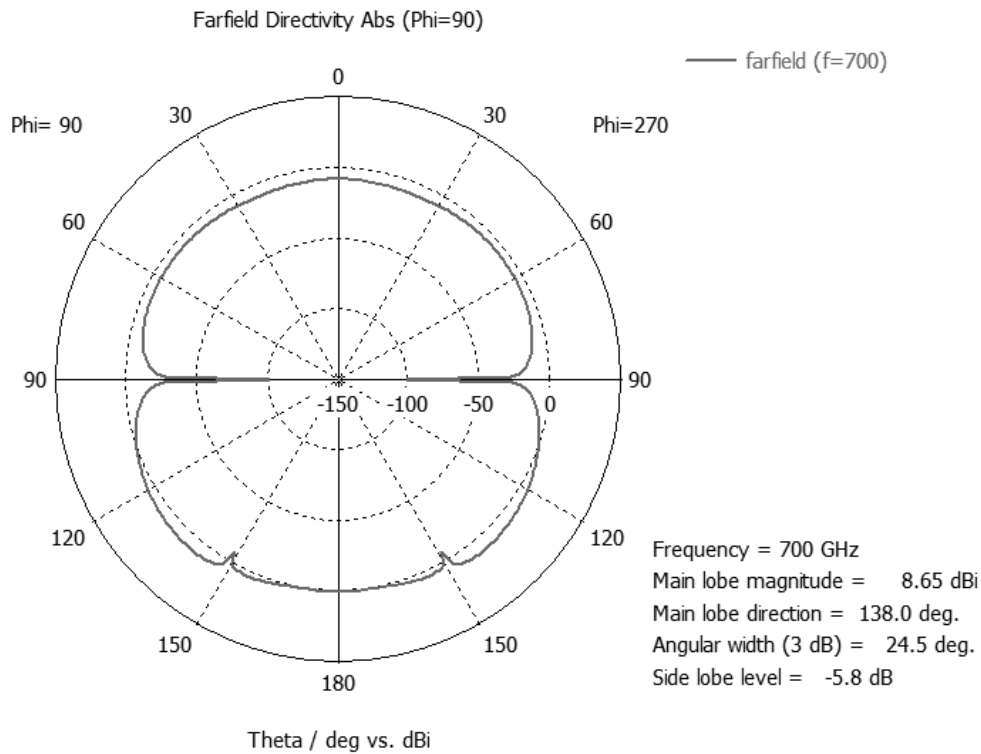


FIGURE 38 – Champ lointain dans le plan de vecteur normal $\vec{u}_x$ de l'antenne bow-tie large sur substrat de silice. On constate que le lobe principal est placé à 138°

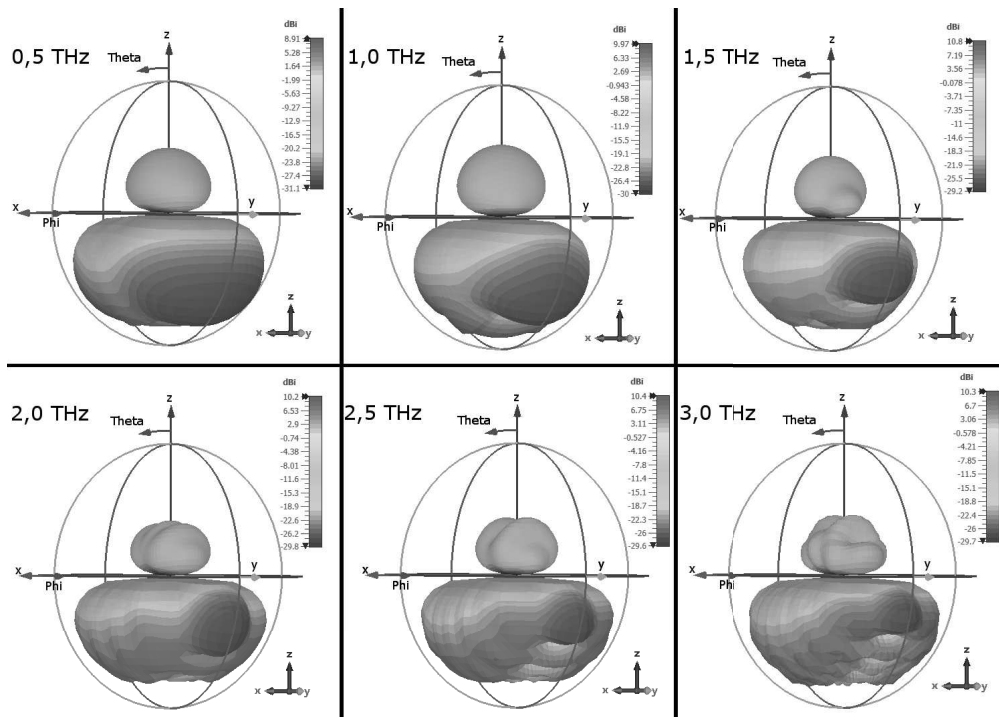


FIGURE 39 – Évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie large sur substrat de saphir en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz avec un échantillonnage de 500 GHz.

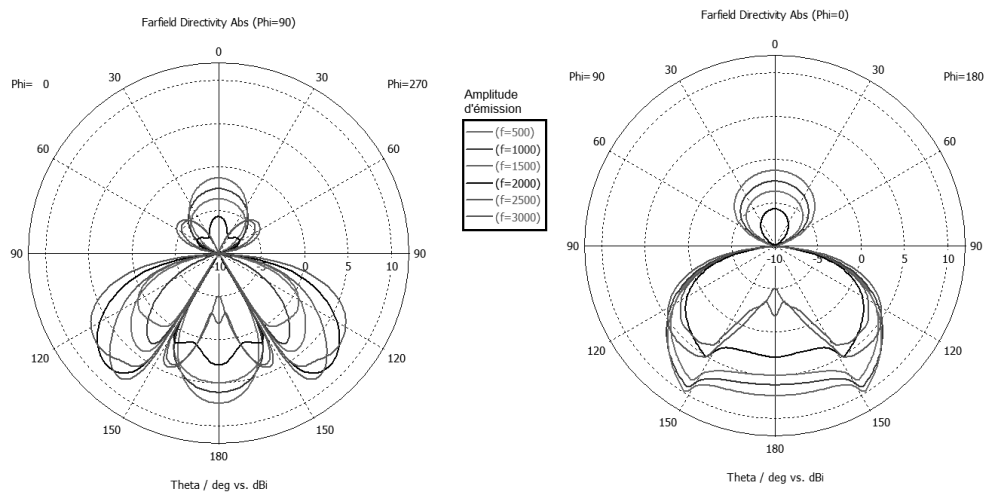


FIGURE 40 – Coupe selon les plans $\vec{u}_x$ à gauche et $\vec{u}_y$, à droite, de l'évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie large sur substrat de silice en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz, pour un pas de 0,5 THz

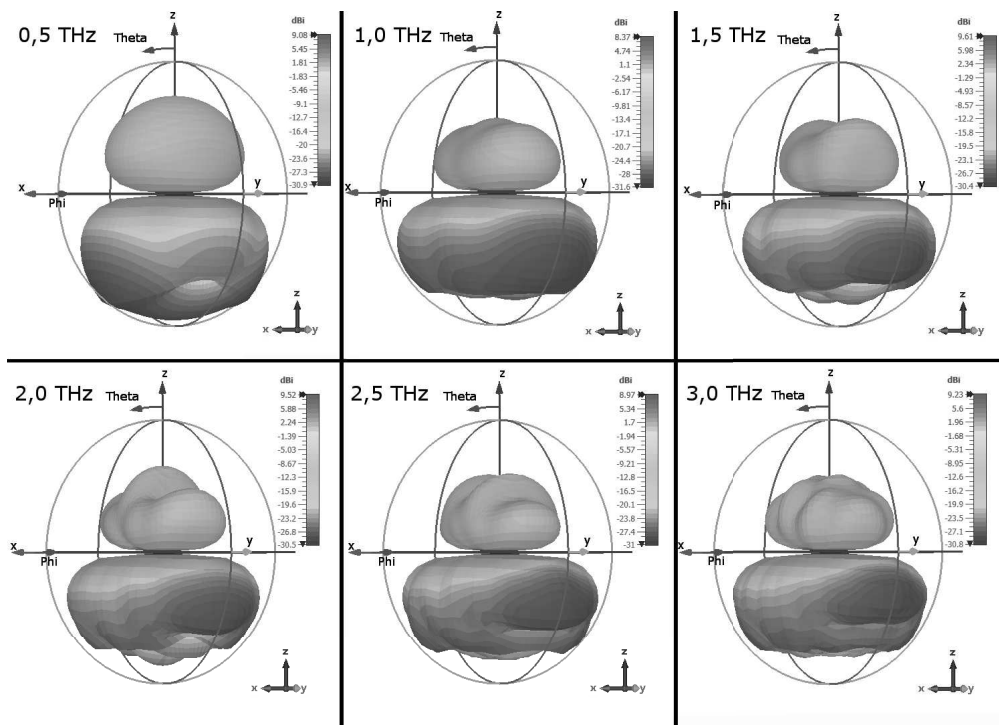


FIGURE 41 – Évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie compacte sur substrat de silice en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz avec un échantillonnage de 500 GHz.

Bow-tie compacte

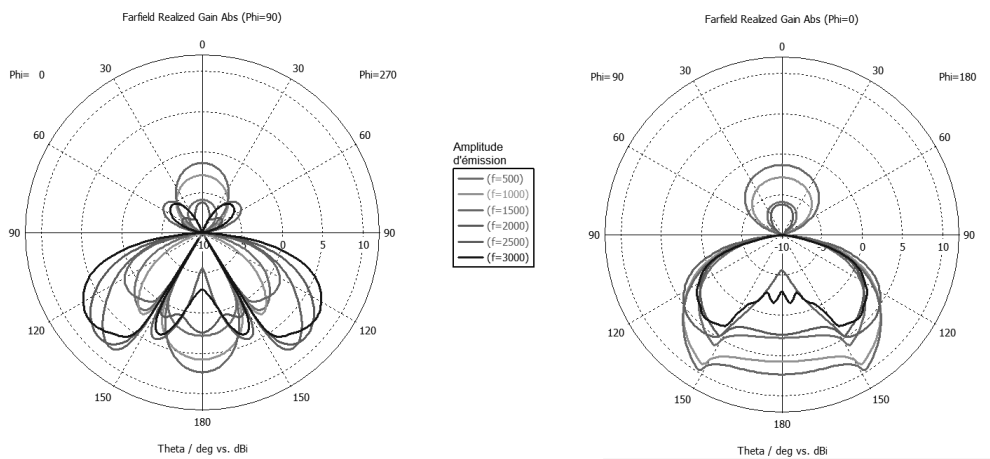


FIGURE 42 – Évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie compacte sur substrat de silice en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz avec un échantillonnage de 500 GHz.

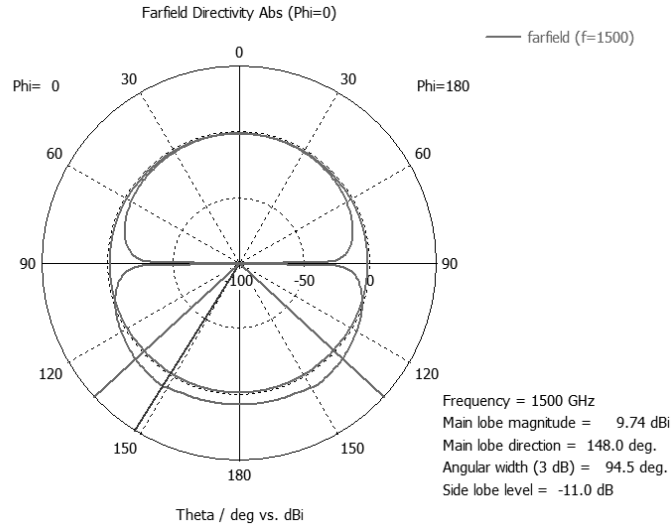


FIGURE 43 – Champ lointain dans le plan de vecteur normal $\vec{u}_y$ de l'antenne bow-tie compacte sur substrat de silice. On constate que le lobe principal est placé à 180°

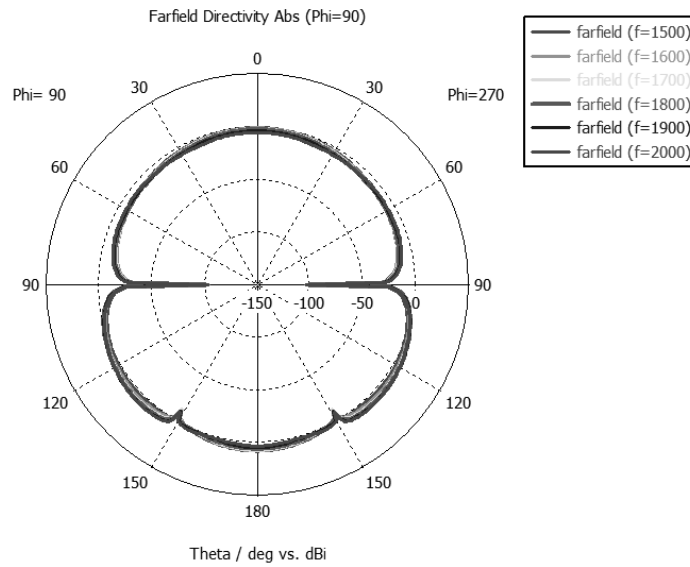


FIGURE 44 – Champ lointain dans le plan de vecteur normal $\vec{u}_x$ de l'antenne bow-tie compacte sur substrat de silice, pour des fréquences comprises entre 1,5 et 2 THz. On constate que le lobe principal se déplace de 180 à 135°

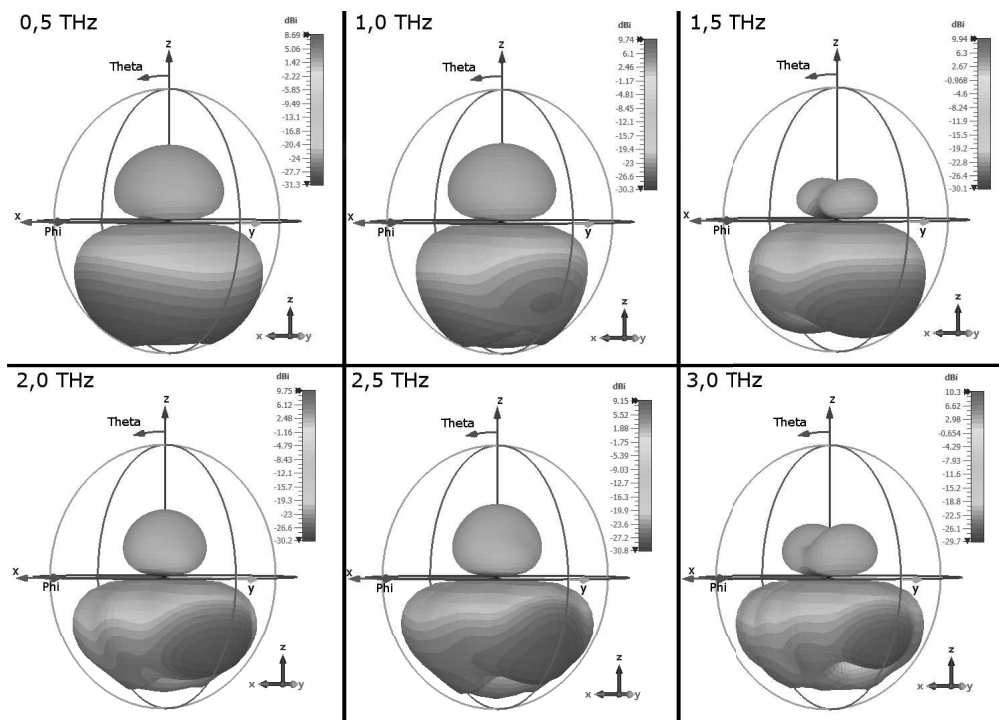


FIGURE 45 – Évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie compacte sur substrat de saphir en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz avec un échantillonnage de 500 GHz.

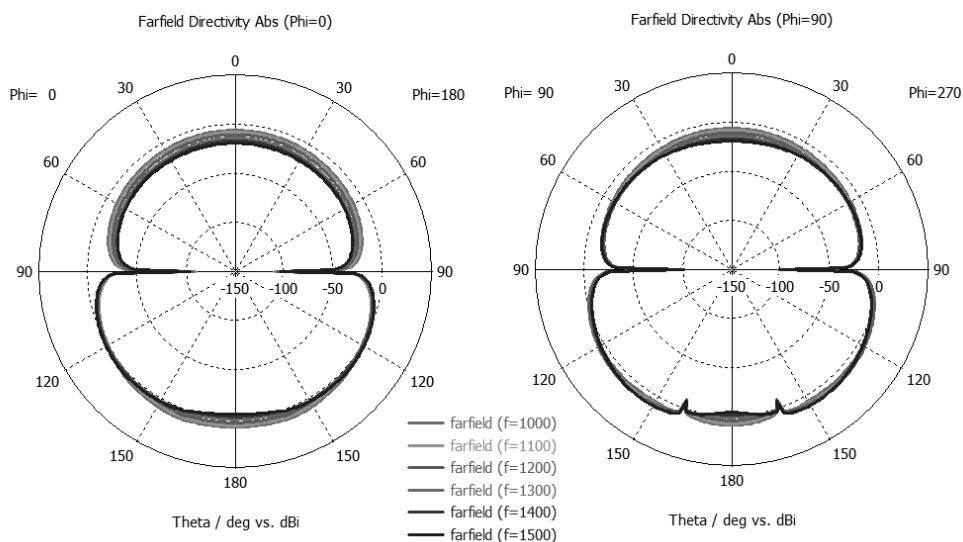


FIGURE 46 – Évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie compacte sur substrat de saphir en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz avec un échantillonnage de 500 GHz.

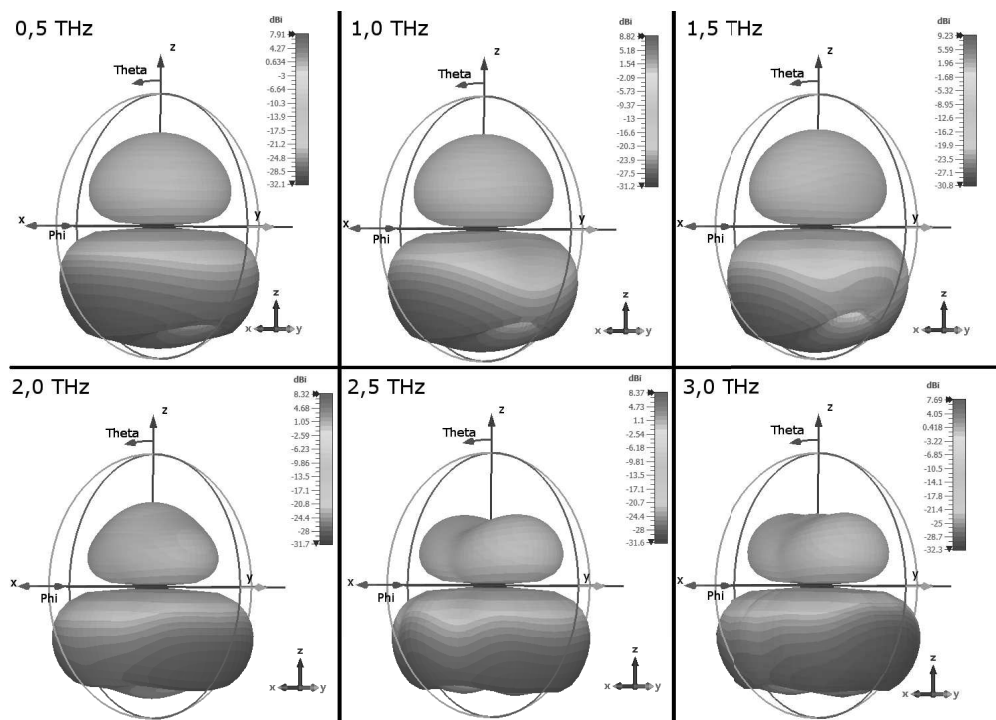


FIGURE 47 – Évolution du champ lointain émis par une antenne bow-tie large sur substrat de silice en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz avec un échantillonnage de 500 GHz.

Antenne Spirale

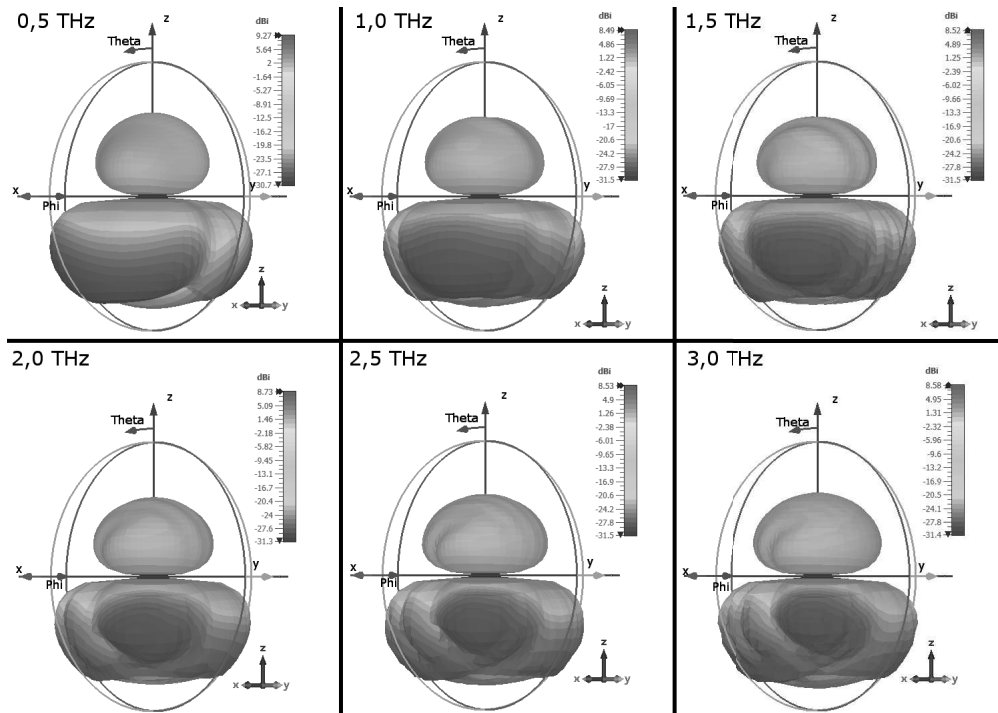


FIGURE 48 – Évolution du champ lointain émis par une antenne spirale sur substrat de silice en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz avec un échantillonnage de 500 GHz.

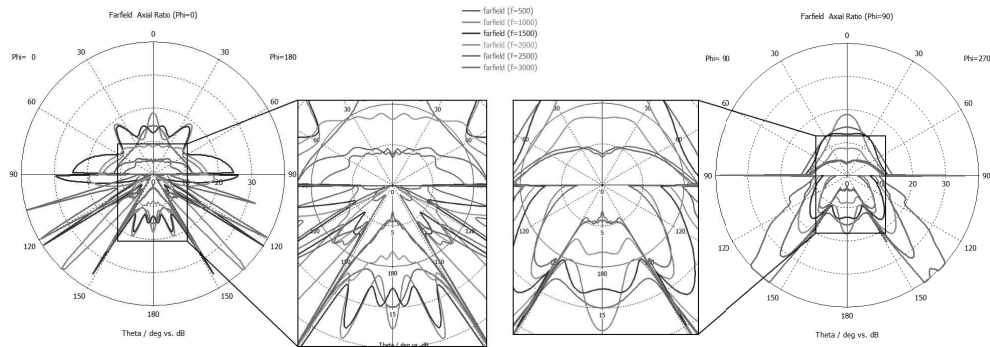


FIGURE 49 – Polarisation du champ lointain d'une antenne spirale sur substrat de silice en fonction de la fréquence de l'onde émise, aux fréquences comprises entre 0,5 et 3,0 THz avec un échantillonnage de 500 GHz.