



HAL
open science

Étude d'interfaces magnétiques par doublage de fréquence optique

G. Tessier

► **To cite this version:**

G. Tessier. Étude d'interfaces magnétiques par doublage de fréquence optique. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1999. Français. NNT: . pastel-00714249

HAL Id: pastel-00714249

<https://pastel.hal.science/pastel-00714249>

Submitted on 3 Jul 2012

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

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

ORSAY
N° D'ORDRE :

UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THÈSE

présentée pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ PARIS XI ORSAY
Spécialité: Optique

par

Gilles TESSIER

**Sujet: Étude d'interfaces magnétiques par doublage de fréquence
optique**

Soutenue le 16 Novembre 1999 devant la commission d'examen:

M.	Jean-Yves Bigot	(rapporteur)
M.	Michel Bouthinon	
M.	Alain Brun	(invité)
M.	Jean-Jacques Clair	
M.	Jacques Ferré	
M.	Patrice Gadenne	(rapporteur)
M.	Patrick Georges	(directeur de thèse)

Table des Matières

Chapitre I - Introduction	1
1. Motivations	3
2. Les techniques de caractérisation d'interfaces	4
Caractérisation non magnétique	5
Caractérisation magnétique.....	5
Les techniques optiques	6
3. Principe général et apports du doublage de fréquence	6
Applications du doublage de fréquence.....	8
Sensibilité à l'aimantation	8
L'approximation dipolaire électrique.....	9
Principe des mesures	10
Problématiques	11
Organisation du mémoire.....	12
Remarques préliminaires.....	13
Chapitre II - Origine et spécificités du doublage de fréquence	15
1. Phénoménologie : Considérations de symétrie	17
1.1 Tenseur $\chi^{(2)}$ associé à une interface	18
1.2 Éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ pour une surface non magnétique	19
1.3 Éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ pour une interface magnétique.....	20
1.3.1 Configuration longitudinale.....	21
1.3.2 Configuration transverse.....	23
1.3.3 Configuration polaire.....	23
1.4. Commentaires et approfondissements.....	24
1.4.1 Relations entre les tenseurs en configurations longitudinale et transverse	24
1.4.2 Implications de la symétrie d'inversion temporelle	25
1.4.3 Interfaces symétriques.....	26
2. Les configurations expérimentales particularités et ordres de grandeur	28
2.1. Les configurations expérimentales.....	29
2.1.1 Mesure en fonction du sens de l'aimantation	29
2.1.2 Études polarimétriques	30
2.2. Ordres de grandeur	36
2.2.1. Prédications théoriques.....	36
2.2.2. Ordres de grandeur expérimentaux	38
2.3. Étude des effets thermiques.....	40
2.3.1 Modélisation des effets thermiques rapides.....	41
Approche simple transmission instantanée de l'énergie au réseau cristallin.....	41
Approche plus complète modèle à deux températures	42
2.3.2 Les effets thermiques lents. Exemples expérimentaux.....	46
3. Doublage de fréquence dans les multicouches	48
3.1 Définition du problème.....	48
3.2 Formulation du problème pour quatre couches.....	50
3.2.1 Calcul des champs en tout point pour la fréquence fondamentale.....	50

Répartition des champs électriques : exemple d'une structure Au/Co/Au	52
3.2.2 calcul des termes sources à l'interface j	53
3.2.3 Calcul des champs à 2ω en tout point pour la polarisation p.....	54
Conditions de continuité.....	55
Expressions des champs en polarisation p	55
3.4.4 Calcul des champs à 2ω en tout point pour la polarisation s.....	56
Conditions de continuité.....	56
Expressions des champs en polarisation s	57
3.3 Le codage. Exemples de calculs.	57
3.3.1. Etude du doublage en fonction de l'épaisseur de l'une des couches.....	57
3.3.2. Etude du doublage de fréquence en fonction de l'angle d'incidence.....	59
Chapitre III - Montage et résultats expérimentaux	63
1. Configuration expérimentale en réflexion.....	65
1.1. Principes	65
1.1.1. L'oscillateur Ti:Saphir.....	66
1.1.2. Les filtrages.....	67
Filtrage du faisceau fondamental	67
Filtrage du faisceau doublé en fréquence.....	68
1.1.3. La caméra CCD	70
Caractéristiques de la caméra	70
Étalonnage expérimental de la caméra	71
1.2 Description du montage	75
1.2.1 Suivi des fluctuations du faisceau (I).....	75
1.2.2 Système de mesure à la fréquence double (II).....	77
La focalisation du faisceau sur l'échantillon	77
Les supports d'échantillons.....	79
1.2.3 Contrôle et mesure des champs magnétiques.....	80
1.3. Méthodes de mesure et automatisation du montage.....	82
1.3.1 Méthode de mesure	82
Utilisation des images pour des mesures quantitatives.	82
Analyse des images en temps réel.....	84
1.3.2. Instrumentation et automatisation des mesures.....	85
1.3.3. Principaux logiciels développés.....	86
1.4 Mesures fondamentales et validations.	90
1.4.1 Démonstration du caractère quadratique en éclairnement	90
1.4.2 Interfaces non magnétiques films d'or. Influence de la rugosité.	91
Introduction	91
Couche d'or d'épaisseur variable.	93
Mesures à la fréquence fondamentale.....	94
Mesures à la fréquence double.....	96
Mesures par Microscopie à Force Atomique (AFM).....	97
1.4.3 Interfaces magnétiques enterrées.....	100
2. Configuration Plasmons de surface.....	104
2.1 Introduction.....	104
2.2. Conditions d'existence d'un plasmon de surface	105
2.3 Caractérisation à la fréquence fondamentale.	107
2.3.1 Système et résultats expérimentaux.....	107

2.3.2 Modélisation du phénomène. Détermination des indices et des épaisseurs	110
2.4 Caractérisation à la fréquence double.....	112
2.4.1 Système et résultats expérimentaux.....	112
Mesures polarimétriques en configuration longitudinale	112
Mesures en fonction de l'angle d'incidence.....	114
2.4.2 Modélisation.....	116
Modèle basé sur la propagation dans les multicouches.....	116
Le modèle non local.....	118
2.5 Possibilités de la méthode.....	120
3. Imagerie par doublage de fréquence.....	123
3.1. Introduction.....	123
3.1.1 État de l'art.....	124
3.1.2 Comparaison des méthodes d'imagerie par balayage et parallèle.....	125
3.2 Imagerie par balayage	127
3.2.1 Imagerie non magnétique par balayage.....	127
3.2.2 Imagerie magnétique par balayage.....	129
3.3 Imagerie parallèle	131
3.3.1 Dispositif expérimental.....	131
3.3.2 Imagerie non magnétique	132
3.3.3 Imagerie magnétique.....	133
Échantillon Fe/Pd	133
Échantillon Co/Pt.....	136
3.4 Développements de la technique d'imagerie.....	138
3.4.1 Assemblage d'images	138
3.4.2 Amplificateur régénératif.....	140
3.4.3 Autres configurations envisageables.....	141
Chapitre IV - Physique et propriétés des couches magnétiques ultraminesces.....	143
1 Physique des couches magnétiques ultra minces.....	145
1.1 Ferromagnétisme des métaux de transition à l'état massif	146
Anisotropie magnétique à l'état massif.....	146
1.2 Magnétisme des couches ultra minces	148
1.2.1 Anisotropie magnétique pour une interface	148
Anisotropie magnétocristalline de surface	148
Modifications de la structure électronique à l'interface	148
1.2.2 Couches ultra minces.....	149
Anisotropie magnétocristalline.....	149
Anisotropie magnétoélastique.....	150
Anisotropie dipolaire.....	150
Anisotropie totale d'une couche mince parfaite	151
Directions de facile aimantation planaire / perpendiculaire	151
Cycles d'hystérésis associés aux axes de facile aimantation perpendiculaire et planaire	152
1.3 Structures en domaines.....	153
1.4 Mesures par doublage de fréquence en présence de domaines magnétiques.....	154
Exemple d'application.....	156
2 Une technique linéaire : l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE).....	157
2.1 Description microscopique classique	157

2.2 Description phénoménologique	158
2.3 Méthodes expérimentales et montage	160
La modulation d'azimut	161
3 Propriétés des structures à base de cobalt	163
3.1 Le système Au/Co	163
3.1.1 Introduction	163
3.1.2 Conditions d'élaboration des échantillons	164
3.1.3 Retournement de l'axe de facile aimantation mesuré en configuration longitudinale	165
Mesure du contraste magnétique en fonction de l'angle de l'analyseur	165
Mesure du contraste magnétique longitudinal en fonction de l'épaisseur de cobalt	166
Calcul des contributions d'origine non magnétique	167
Calcul de la contribution d'origine magnétique issue de l'interface supérieure. ...	169
Comparaison avec des mesures MOKE	170
3.1.4 Retournement de l'axe de facile aimantation mesuré en configuration polaire	171
3.1.5 Cycles d'hystérésis	174
Configuration polaire	174
Configuration longitudinale	175
3.2 Le système Co/Pt	177
3.2.1 Introduction	177
3.2.2 Conditions d'élaboration des échantillons	178
3.2.3 Retournement de l'axe de facile aimantation mesuré en configuration longitudinale	179
3.2.4 Hystérésis en configuration longitudinale pour 14 P.A. de cobalt	181
Modalités des mesures	181
Comparaison des résultats donnés par les deux méthodes	182
3.2.5 Études en configuration longitudinale pour 20 P.A. de cobalt	183
Géométrie de l'échantillon	183
Anisotropie magnétique dans le plan	184
Mesures suivant l'axe D1	186
Mesures suivant l'axe D2	189
Mesures suivant l'axe D3	191
3.2.6 Structure Pt/Co (20 P.A.)/Pt déposée à 400°C	194
3.3 Les doubles couches couplées par échange FeSi/DyFeCo	198
3.3.1 Introduction	198
Caractéristiques de l'échantillon	198
Mode de fonctionnement. Super-résolution magnétique	199
Répartition de l'aimantation dans les couches. Intérêt du système.	200
Mesures à la fréquence double	202
Mesures en MOKE longitudinal	204
 Conclusion	 207
 Références	 213
 Appendice A - Relations de passage pour une interface polarisée non linéairement	 221
 Publications associées à ce travail de thèse	 227

Remerciements

Je tiens tout d'abord à exprimer ma gratitude à Messieurs A. Brun, Professeur à l'Institut d'Optique et P. Georges, Directeur de recherches, pour m'avoir accueilli au sein du groupe d'optique non linéaire et pour avoir dirigé ces travaux de recherche. Ce travail de thèse doit beaucoup à la complémentarité de leurs compétences et de leurs activités. P. Georges, par ses connaissances scientifiques, son enthousiasme et son efficacité exceptionnels a insufflé un grand dynamisme à ce projet. A. Brun a toujours su orienter et mettre en perspective ces travaux, auxquels il a apporté avec générosité sa rigueur et son expérience.

Je suis particulièrement sensible à l'honneur que me font Messieurs les membres du jury en acceptant de lire et de juger ce mémoire: Monsieur M. Bouthinon, Professeur à l'Université J. Fourier de Grenoble, Monsieur J.-J. Clair, Professeur à l'UTBM à Belfort, et plus particulièrement Messieurs J.-Y. Bigot, Directeur de Recherches à l'IPCMS et P. Gadenne, Professeur à l'Université de Versailles St Quentin, qui ont accepté d'en être les rapporteurs.

J'ai eu le rare privilège de disposer au cours de ma thèse du soutien de deux directeurs de thèse supplémentaires, qui m'ont pour ainsi dire adopté comme leur propre doctorant. P. Beauvillain et J. Ferré ont guidé mon initiation à la physique du magnétisme avec patience et dévouement et ont fait preuve d'un intérêt et d'une imagination constants pour cette expérience. Leurs choix scientifiques (et les échantillons associés) se sont toujours révélés excellents et pertinents. Je tiens donc à remercier chaleureusement MM P. Beauvillain et J. Ferré pour leur aide et leurs conseils, tant scientifiques qu'extra-scientifiques.

Mes remerciements vont également à C. Malouin qui a démarré ces expériences quelques mois avant le début de ma thèse, et avec lequel j'ai étroitement collaboré pendant près d'une année. Sa rigueur scientifique, son dynamisme et son sens de l'humour en ont fait un compagnon de travail agréable et efficace, avec lequel j'ai eu grand plaisir à travailler.

V. Pavlov a également beaucoup travaillé sur ce sujet, au cours de deux séjours post-doctoraux dans notre laboratoire. Sa grande connaissance du doublage de fréquence et des matériaux magnétiques ainsi que son travail sont pour beaucoup dans les résultats que nous avons obtenus.

J.-M. Folletti, qui a effectué son stage de DEA dans notre laboratoire, a activement participé aux expériences lors de ma dernière année de thèse, au cours de laquelle j'ai beaucoup apprécié sa gentillesse, sa décontraction, et son aide.

Je tiens également à remercier P.Meyer, pour son travail sur les traitements d'images, son aide tout au long de cette thèse et pour d'intéressantes discussions, ainsi que J.-P. Jamet pour ses conseils et sa gentillesse. Je remercie également V.Mathet pour ses excellents échantillons et ses mesures AFM. D.Renard, de l'Institut d'Optique, A.Schuhl, du LCR Thomson, et J.Jupille, de St Gobain recherche, m'ont prêté ou ont fabriqué spécialement pour cette expérience de très bons échantillons. Je souhaite les en remercier.

Je ne saurais oublier tous ceux qui ont su me donner ces coups de main occasionnels qui épargnent plusieurs heures de travail (ou avec lesquels j'ai eu ces agréables discussions qui reportent à plus tard plusieurs heures de travail), au premier rang desquels figurent les doctorants C.Doulé, V.Garces-Chavez, B.Campagne, B.Darracq, F.Druon, S.Victori, E.Guiot, P.Guédon, A.Dubois et les enseignants-chercheurs F.Balembois, T.Lépine et G.Lucas-Leclin.

Je souhaite également remercier G.Roger pour son aide et ses dessins de pièces mécaniques, M.Allain pour sa promptitude à résoudre les problèmes informatiques, N.Bonavent, qui a effectué la mise en page de ce manuscrit, et les artistes de l'atelier d'optique pour leur diligence et la qualité de leurs réalisations.

Enfin, je remercie mes parents et Gaëlle pour leur soutien avant et pendant cette thèse.

Chapitre I
Introduction

Les propriétés magnétiques des films ultraminces à base de matériaux ferromagnétiques sont largement conditionnées par les caractéristiques de leurs interfaces. La mise au point de techniques permettant de caractériser ces interfaces enterrées paraît donc souhaitable. En particulier, le doublage de fréquence optique est spécifiquement sensible aux interfaces. Il est en effet interdit dans les matériaux centrosymétriques, mais est possible aux interfaces, où se produit une brisure de la symétrie.

Récemment, il a également été prouvé expérimentalement [REI91] que l'aimantation à l'interface influe également sur le doublage de fréquence.

Les objectifs du travail présenté dans ce mémoire sont de montrer pourquoi et comment ces phénomènes peuvent être utilisés afin d'obtenir des informations sur les caractéristiques morphologiques et magnétiques des interfaces, puis d'utiliser cet outil pour l'étude de couches métalliques ultra minces.

1. Motivations

Accompagnant l'essor de l'informatique, les capacités de stockage de l'information ont été multipliées par près d'un million en moins de vingt ans. L'unité usuelle en terme de capacité n'est plus le kilo octet, mais le giga octet. Les phénomènes magnétiques et l'effet mémoire qui leur est souvent associé jouent un rôle prédominant dans le stockage de l'information. Les matériaux magnétiques ont donc suivi cette évolution, en fournissant des supports de stockage permanent (disques magnétiques ou magnéto-optiques) ou temporaires (MRAM), mais aussi des composants permettant la lecture ou l'écriture de l'information. Les découvertes récentes laissent à penser que les matériaux magnétiques conserveront à moyen terme une importance de tout premier plan.

Ainsi, le phénomène de magnéto résistance géante dans les couches minces métalliques est à la base de têtes de lecture pour disques durs, qui remplaceront bientôt les têtes inductives actuelles, mais aussi de magnétodiodes et de magnéto-transistors, déjà opérationnels.

Par ailleurs, l'orientation vers des media de stockage amovibles a favorisé l'émergence de techniques de stockage optiques ou magnéto-optiques, relativement robustes et sans contact. L'écriture s'y effectue actuellement au moyen de diodes laser émettant dans l'infrarouge proche. L'accroissement des capacités passe alors, pour ces technologies, par l'utilisation de longueurs d'onde plus faibles, pour lesquelles le facteur de mérite des alliages actuels est fortement diminué. Parmi les matériaux susceptibles d'être utilisés en remplacement figurent les multicouches Co/Pt, (Co,Ni)/Pt ou Fe/Pt. Utilisés en couches ultraminces en alternance avec un matériau paramagnétique, ces matériaux permettent d'obtenir, grâce à l'anisotropie d'interface, de fortes anisotropies perpendiculaires (ce qui autorise de fortes densités d'enregistrement et d'importants effets magnéto-optiques).

Parallèlement à l'évolution vers des longueurs d'ondes faibles, un effort important se porte vers le confinement spatial de l'information magnétique, au moyen de plots ou de nanostructures réalisés à partir de ces mêmes matériaux. L'objectif essentiel reste le même: augmenter les capacités de stockage tout en diminuant l'encombrement et les coûts des systèmes.

Enfin, l'un des débouchés les plus prometteurs pour les dispositifs magnétiques est celui des mémoires informatiques. Ce marché colossal est actuellement dominé par les DRAM, mais les mémoires MRAM (Magnetoresistive Random Access Memory) sont en passe de devenir compétitives, et promettent des densités d'intégration largement supérieures aux densités actuelles pour des coûts relativement faibles.

Les applications technologiques des matériaux magnétiques sont essentiellement le fait d'entreprises asiatiques (notamment japonaises), mais la recherche dans ce domaine reste très active en Europe afin de comprendre les phénomènes fondamentaux mis en jeu.

La plupart des phénomènes magnétiques récemment découverts et très prometteurs en termes d'applications, comme la magnétorésistance géante, le couplage d'échange oscillant, ou le phénomène de vanne de spin semblent étroitement liées aux caractéristiques des interfaces entre les matériaux constituant ces systèmes (voir par exemple [JOH92, BRU92, GRO93], ou les articles généraux [FAL90, TOD95]). Les interfaces ont en effet une influence importante sur les caractéristiques magnétiques des multicouches, et le comportement des spins en surface est relativement différent de leur comportement en volume [JOH92, BRO91]. Pour ces raisons, une bonne connaissance des interfaces paraît indispensable, au plan fondamental, à la compréhension des phénomènes mis en jeu. Par ailleurs, au niveau des réalisations pratiques tant expérimentales qu'industrielles, un contrôle efficace des interfaces en cours de fabrication est nécessaire.

À travers le problème du stockage magnétique de l'information se profile une tendance beaucoup plus générale vers la réduction des dimensions des systèmes, comme en témoigne l'intérêt croissant suscité par les nanostructures.

Dans les nanostructures, dont l'une au moins des dimensions est de l'ordre de quelques angströms, les propriétés des interfaces prennent une importance comparable à celles du volume des matériaux: les atomes situés à proximité d'une interface ne sont plus minoritaires. La nécessité de connaître les propriétés des interfaces est donc capitale, et a donné naissance à un certain nombre de techniques de caractérisation.

2. Les techniques de caractérisation d'interfaces

La grande majorité de ces techniques permettent d'accéder à une information concernant la seule interface supérieure, ou les tous premiers plans atomiques.

Caractérisation non magnétique

Ainsi, la Diffraction d'Électrons de Haute Énergie en Réflexion (RHEED en anglais) la Diffraction d'Électrons de basse Énergie (LEED) ou encore la spectroscopie par électrons Auger (AES) apportent des informations très pertinentes sur la qualité des surfaces, mais ne peuvent être utilisées que sous ultravide, et ne sauraient être appliquées à l'étude d'interfaces enterrées. De plus, leur résolution spatiale est actuellement limitée.

D'autres techniques permettent d'accéder à de très bonnes résolutions spatiales. C'est notamment le cas de diverses formes de microscopie: optique, électronique, à effet tunnel ou à force atomique (AFM). Cette dernière technique, relativement récente, permet d'obtenir des résolutions de l'ordre de l'angström suivant trois axes, et donc une bonne image de la morphologie des surfaces. Cependant, aucune de ces techniques ne permet l'étude d'interfaces enterrées.

Une techniques apparue récemment permettent d'accéder à des informations sur les interfaces enterrées de multicouches en étudiant la propagation d'ondes acoustiques générées par une impulsion lumineuse [BER98].

Caractérisation magnétique

L'accès à l'aimantation d'interfaces implique l'utilisation de méthodes sensiblement plus lourdes. La réflexion de neutrons polarisés en incidence rasante permet d'accéder à certaines information sur l'organisation des moments magnétiques dans les couches minces (moyennant quelques calculs) [TRA96]. L'orientation de l'aimantation dans le plan de l'échantillon peut également être déterminée, mais la technique n'est pas sensible aux composantes perpendiculaires à ce plan. Cette technique performante n'a cependant aucune sensibilité intrinsèque aux interfaces, et sa résolution en profondeur semble actuellement limitée à 20 Å environ [MAA93]. Par ailleurs, l'utilisation de faisceaux relativement larges (1 mm) en incidence rasante nécessite des échantillons relativement grands et homogènes.

Certaines techniques utilisent des électrons polarisés en spin pour l'étude de surfaces, comme la diffraction d'électrons de faible énergie polarisés en spin (SPLEED en anglais), ou la spectroscopie des pertes d'énergie d'électrons polarisés en spin (SPEELS) (sur ces techniques, voir par exemple[FED85]). Cependant, la faible profondeur de pénétration des électrons rend leur utilisation délicate pour l'étude d'interfaces enterrées.

Enfin, la spectroscopie Mössbauer est un outil permettant l'étude des atomes magnétiques. Après absorption d'un photon γ , le noyau Mössbauer (il s'agit généralement de l'isotope 57 du fer) se désexcite en émettant des photons γ , X, ou des électrons Auger, dont l'étude permet d'accéder à certains paramètres de l'aimantation. La sensibilité à l'aimantation d'une interface peut éventuellement être obtenue en y plaçant les isotopes du fer[KOR85].

Les techniques optiques

Parmi les techniques de caractérisation des interfaces, les techniques optiques présentent un certain nombre d'avantages: elles ne contaminent les échantillons ni par des particules, ni par des charges, elles sont non destructives, utilisables sous ultraviolet aussi bien qu'à l'air libre, et permettent d'accéder à d'excellentes résolutions spatiales et temporelles. Enfin, les faisceaux optiques, dont la profondeur de pénétration dans la matière est de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle des électrons, permettent de sonder des interfaces *enterrées*.

Les techniques optiques de caractérisation des surfaces sont nombreuses, au point que le terme générique «epioptique» (du grec *epi*, sur) a été proposé pour les désigner [MCG95A] (on trouvera par ailleurs dans cet ouvrage une bonne synthèse sur le sujet). Elles sont largement utilisées par la recherche et l'industrie, notamment pour la caractérisation des surfaces en cours de croissance. Le débouché essentiel de ces méthodes concerne l'industrie des semi-conducteurs (ellipsométrie sur semi-conducteurs en particulier).

Les techniques optiques linéaires, telles que la spectroscopie Raman, l'ellipsométrie, la photoabsorption de surface ou la photoluminescence sont essentiellement sensibles au volume (à l'échelle d'une couche ultramine). Cependant, il est parfois possible d'extraire du signal qu'elles délivrent les contributions dues aux interfaces.

L'effet Kerr magnéto-optique (Magneto-Optical Kerr Effect, ou MOKE, en anglais) est assurément la principale technique optique de caractérisation des matériaux magnétiques. Elle consiste à détecter le (faible) changement de polarisation de la lumière qui se produit à la traversée d'un matériau magnétique (voir le chapitre IV.2), en raison de la modification de la susceptibilité linéaire due au champ magnétique. Il est possible d'obtenir des informations sur l'aimantation d'interfaces à l'aide de cette technique, et l'on parle alors de SMOKE (pour Surface MOKE) [BAD86, QIU98]. Cependant, cet effet n'a aucune sensibilité intrinsèque aux interfaces, et l'information sur leur état d'aimantation est obtenue de manière indirecte.

Les techniques non linéaires telles que la somme ou le doublage de fréquence aux interfaces ont l'avantage d'être exclusivement sensibles aux interfaces. Le signal qu'elles délivrent, quoique relativement faible, provient exclusivement des interfaces, et n'est donc pas noyé dans un signal de fond provenant du volume du matériau.

3. Principe général et apports du doublage de fréquence

Jusqu'en 1960, l'optique supposait la polarisation induite proportionnelle à l'amplitude du champ électromagnétique appliqué. À partir de l'invention du laser par Maiman, il a été possible d'obtenir à l'aide de faisceaux optiques des champs électriques dont l'ordre de

grandeur s'approchait de celui des champs électriques assurant la cohésion entre les électrons et le noyau des atomes. L'approximation linéaire n'est alors plus valable, et on a recours à un développement de la polarisation en série de puissances du champ électrique. une excitation par un champ électrique optique se traduit par une polarisation contenant des harmoniques: $P=P(0)+P(1)+P(2)+P(3)+\dots$

Les deux premiers termes décrivent l'optique dite linéaire. Les termes suivants correspondent à divers phénomènes optiques non linéaires, dont la génération d'harmoniques. En particulier, le doublage de fréquence fut le premier effet optique non linéaire jamais observé [FRA61]: le faisceau (rouge) d'un laser à rubis, focalisé dans un cristal de quartz, engendrait un faible faisceau bleu, observable après dispersion par un prisme sur une plaque photographique.

Dans un milieu à structure centrosymétrique ou amorphe, le doublage de fréquence est impossible. Par contre, dans un milieu à structure non centrosymétrique (tel que le quartz), les électrons peuvent, si l'excitation est suffisamment forte, osciller dans un potentiel anharmonique. La réponse non linéaire du matériau se traduit alors par une polarisation contenant des harmoniques, qui se comporte comme un terme source à la fréquence correspondante (voir le schéma de la figure 1.1).

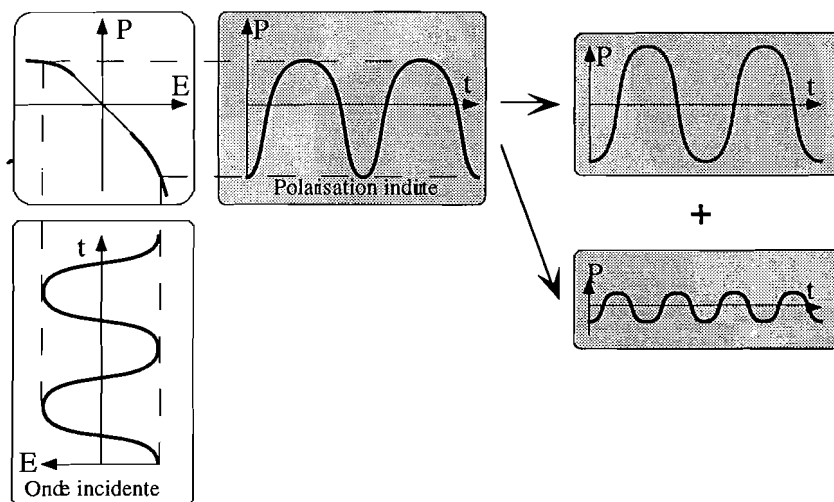


Figure 1.1: Illustration schématique du phénomène de doublage de fréquence dans un milieu dont la réponse est non linéaire.

Dans les années qui suivirent, les recherches se concentrèrent essentiellement sur la génération d'harmoniques dans le volume des matériaux non centrosymétriques. L'existence d'effets de surface donnant lieu à un (faible) doublage sur les matériaux centrosymétriques fut discutée dans une publication pionnière de Bloembergen [BLO62], puis prouvée expérimentalement sur une surface de GaAs par Bloembergen et Ducuing [DUC63,CHA66]

et sur une surface d'argent centrosymétrique par Brown et al. [BRO65]. Ces contributions furent alors attribuées à un effet de gradient dans le champ fondamental.

À partir de 1981 les travaux du groupe de Y.R Shen relancèrent l'intérêt pour le doublage de fréquence aux interfaces en montrant par des travaux expérimentaux que l'on pouvait aller plus loin. Une forte amplification du doublage de fréquence par la rugosité de l'argent fut prouvée [CHE81A], ainsi que la sensibilité de la technique à de simples monocouches [CHE81B]. Tom et al. prouvèrent la sensibilité du doublage de fréquence à la structure cristalline du silicium [TOM83]. Il fut établi à travers tous ces travaux que le doublage de fréquence dans les matériaux centrosymétriques ne pouvait être dû au seul gradient de champ. Son origine essentielle est une contribution de type dipolaire électrique suscitée par la rupture de symétrie aux interfaces.

Applications du doublage de fréquence

À la suite de ces résultats et au cours de la dernière décennie, l'usage du doublage de fréquence en tant que sonde de surfaces et d'interfaces s'est développé. La technique peut être appliquée dans de très nombreux domaines, pourvu que les matériaux ne donnent pas lieu à du doublage en volume (c'est à dire soient amorphes ou à structure non centrosymétrique, ce qui est le cas des gaz, des liquides, et de nombreux solides).

On peut notamment citer des études de la structure et de la symétrie d'interfaces de métaux et semi-conducteurs [HEI85, MCG95B, JAN92], de l'adsorption, de la désorption ou de la diffusion de molécules (in ou ex-situ) [ZHU89], ou des phénomènes interfaciaux sur les électrodes en électrochimie [RIC88] [AKT84]. De nombreuses études ont également été menées sur des molécules chirales [HIC99, HAC99], des cristaux liquides, des polymères composites [FIS95] ou, pour des applications biologiques, sur des membranes. Cette liste n'est évidemment pas exhaustive, et on pourra consulter les articles de synthèse [SHE86, SHE 89, JAN93, MCG96, BLO98].

Sensibilité à l'aimantation

Le doublage de fréquence est donc particulièrement adapté à l'étude d'interfaces enterrées, et on peut se demander si une sensibilité à l'aimantation est envisageable, ce qui fournirait un équivalent de l'effet MOKE sensible aux interfaces.

L'effet Kerr magnéto-optique trouve son origine dans le couplage spin-orbite, qui agit comme un champ magnétique sur le courant induit par le champ électrique de l'onde optique à la fréquence fondamentale [ARG55]. Le même effet permet a priori d'inférer une influence sur les courants induits qui sont à l'origine du doublage de fréquence optique [RAS98].

La première mention d'un possible effet de l'aimantation sur le doublage de fréquence est, à notre connaissance, un compte rendu d'une note de J.Lajzerowicz et M.Vallade présentée par

Louis Néel à l'académie des sciences en 1967 [LAJ67]. La première discussion théorique complète du problème est celle de Ru-Pin Pan et al. qui, grâce à des arguments de symétrie (voir le chapitre suivant) prévoit l'existence d'effets magnétiques non nuls [RUP89]. Presque simultanément, Hübner et Bennemann calculaient le spectre non-linéaire du nickel, et prévoyaient des effets observables [HUB89]. La première observation expérimentale d'une influence de l'aimantation sur le doublage de fréquence fut observée sur une surface de fer par Reif et al. en 1991 [REI91]. Peu après, Spierings et al. obtenaient les premiers résultats sur une interface enterrée Au/Co [SPI93].

La plupart des études menées par doublage de fréquence considèrent des changements dans l'éclairement à la fréquence double (particulièrement en configuration transverse, nous le verrons). Il est cependant possible, par analogie avec l'effet MOKE, d'envisager les effets magnétiques en terme de rotation de la polarisation. Ces rotations sont, en général, supérieures de plusieurs ordres de grandeurs à celles mesurées en MOKE (jusqu'à trois ordres de grandeur sur des monocristaux de fer, ou sur des couches minces Fe/Cr [KOO95A]). Pour autant, ceci ne doit pas faire oublier le fait que, si la rotation mesurée est très forte, le signal total mesuré à la fréquence double reste faible.

Il est aujourd'hui possible d'atteindre des rendements de doublages proches de l'unité dans les cristaux non centrosymétriques couramment utilisés pour modifier la longueur d'onde des lasers. Cependant, le doublage de fréquence est en général, et aux interfaces en particulier, un processus extrêmement inefficace.

L'approximation dipolaire électrique

Le formalisme moderne décrivant le doublage de fréquence aux interfaces des matériaux centrosymétriques a essentiellement été mis en place par P.Guyot-Sionnest et Y.R.Shen [GUY86, GUY88]. On peut noter ω la pulsation de l'onde fondamentale et 2ω celle de l'onde à la fréquence double. Tous les termes engendrant le doublage de fréquence peuvent alors être regroupés en une polarisation effective qui, en se limitant au premier ordre de la dérivée spatiale, prend la forme:

$$\mathbf{P}_{eff}^{(2)}(2\omega) = \mathbf{P}^{(2)}(2\omega) - \nabla \cdot \tilde{\mathbf{Q}}^{(2)}(2\omega) + \frac{c}{i2\omega} \nabla \wedge \mathbf{M}^{(2)}(2\omega), \quad (1.1)$$

où le premier terme décrit la contribution dipolaire électrique, le deuxième la contribution quadrupolaire électrique et le dernier terme la contribution dipolaire magnétique. Si l'on considère pour l'instant les matériaux non magnétiques, ce dernier terme est nul. Chacun des termes de (1.1) est quadratique par rapport au champ électrique et/ou sa dérivée. On peut écrire (1.1) sous la forme [GUY88, WIE95]:

$$\mathbf{P}_{eff}^{(2)}(2\omega) = \tilde{\chi}^{(D)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \tilde{\chi}_{GC}^{(Q)} : \mathbf{E}\mathbf{V}\mathbf{E} - (\nabla \cdot \tilde{\chi}_{GS}^{(Q)}) : \mathbf{E}\mathbf{E} . \quad (1.2)$$

Le premier terme décrit la source dipolaire électrique. Des considérations de symétrie permettent de montrer que ce terme est nul dans un matériau centrosymétrique, et il s'agit donc de la contribution de surface proprement dite. Le deuxième et le troisième terme sont respectivement liés au gradient de champ et au gradient structural à l'interface. Ils sont de type quadrupolaire électrique. Ces deux derniers termes sont des contributions en volume au doublage de fréquence, qui sont présentes dans les matériaux centrosymétriques.

En théorie, il existe donc un doublage de fréquence dans le volume des matériaux, même centrosymétriques. Ces contributions ne sont pas aisément dissociables des contributions spécifiquement interfaciales, mais des méthodes ont été proposées pour effectuer cette séparation [KOO95B]. En pratique, ces termes d'ordre supérieur sont négligeables dans l'immense majorité des cas. Il en est de même de la contribution dipolaire magnétique notée $\mathbf{M}^{(2)}$ dans l'équation (1.1), qui n'a (à notre connaissance) jamais été mise en évidence dans les matériaux ferromagnétiques. On ne retient alors que le premier terme de (1.2), d'origine dipolaire électrique, et l'on écrit la polarisation non linéaire sous la forme:

$$\mathbf{P}(2\omega) = \chi^{(2)} : \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega), \quad (1.3)$$

où $\chi^{(2)}$ est le tenseur susceptibilité non linéaire et $\mathbf{E}(\omega)$ le champ électrique à la pulsation fondamentale.

Le présent travail s'inscrit dans le cadre de cette approximation, dite approximation dipolaire électrique, admise dans la plupart des travaux sur le sujet. Il importe cependant de garder à l'esprit qu'il ne s'agit que d'une approximation. Nous nous efforcerons par conséquent de démontrer la sensibilité aux interfaces à chaque fois que cela sera possible.

Principe des mesures

La méthode utilisée pour effectuer des mesures par doublage de fréquence est assez simple (voir figure (2.2)). Le faisceau issu d'un oscillateur émettant à la pulsation ω des impulsions lumineuses extrêmement brèves mais de très forte intensité crête est envoyé sur la structure à étudier, composée de matériaux amorphes ou à structure centrosymétrique, et pénètre dans le matériau. Dans le volume d'un matériau centrosymétrique ou amorphe, le doublage de fréquence est, suivant l'approximation dipolaire, interdit. Aux interfaces, la juxtaposition de deux matériaux différents induit une rupture de la symétrie, et le doublage est localement autorisé. À chacune des interfaces, une composante de pulsation 2ω est donc engendrée, en réflexion comme en transmission. En réflexion sur la surface de la structure, on peut alors recueillir le faisceau fondamental réfléchi et le faisceau à la fréquence double, que l'on peut isoler et mesurer.

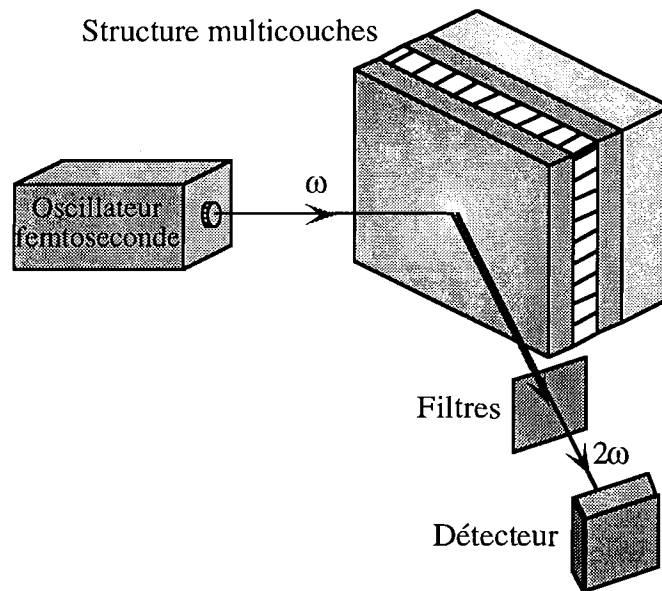


Figure 2.2: Schéma de principe pour la mesure du doublage de fréquence aux interfaces.

Problématiques

S'agissant d'une technique de caractérisation nouvelle, de nombreuses questions sont à examiner expérimentalement, concernant la technique elle-même et ses possibilités, mais aussi au sujet des informations qu'elle permet d'apporter sur les couches magnétiques ultraminces.

Ainsi, la sensibilité aux interfaces, si elle semble acquise théoriquement, doit évidemment être mise en évidence clairement. Au-delà, la notion même d'interface doit être précisée. Il est parfois admis qu'une interface réelle entre deux matériaux est constituée de trois ou quatre plans atomiques. Il importe d'avoir une idée de l'extension en profondeur de la zone interfaciale sondée par le doublage de fréquence.

Concernant la technique elle-même, l'existence d'une corrélation entre la rugosité et le doublage de fréquence (d'origine non magnétique), déjà suggérée ou observée, est à mettre en évidence et si possible à quantifier avant toute étude d'échantillons magnétiques. L'augmentation du doublage de fréquence avec la rugosité peut être due à des propriétés intrinsèques du doublage de fréquence (la symétrie est moins bonne à une interface rugueuse), mais aussi à l'excitation de plasmons locaux (la présence de petits objets peut induire des exaltations locales des champs électriques).

De même, la distinction entre signal magnétique et non magnétique doit être explicitée. En particulier, si une variation abrupte des propriétés du milieu à l'interface est nécessaire pour

autoriser le doublage de fréquence, on peut se demander si une variation aussi abrupte de l'aimantation est nécessaire à l'existence d'un signal d'origine magnétique.

Enfin, il est souhaitable de caractériser la technique de mesure proprement dite, afin de savoir dans quelle mesure et dans quelles conditions elle peut être comparée à d'autres techniques, comme le MOKE. Un effort important est nécessaire afin de comprendre quelles sont les spécificités des informations délivrées par le doublage de fréquence, en quoi elles sont utiles et comment il est possible de les exploiter.

Il sera alors possible d'utiliser le doublage de fréquence pour la caractérisation d'interfaces magnétiques. Il serait en particulier intéressant de pouvoir dégager des différences entre les propriétés d'interface et de volume, afin de justifier l'apport de la technique.

Dans la mesure du possible, nous nous sommes efforcés d'apporter des éléments de réponses à ces questions.

Organisation du mémoire

Étant donné le caractère fortement pluridisciplinaire de ce travail, il nous a semblé nécessaire d'y inclure des éléments qui le rendent accessible aux spécialistes du magnétisme comme à ceux de l'optique. Ce mémoire comprend donc certains rappels qui pourront paraître élémentaires mais permettront, nous l'espérons, de le rendre accessible à un plus large public.

Le chapitre II est essentiellement consacré à une étude phénoménologique du tenseur $\chi^{(2)}$ et de ses propriétés. Nous nous sommes efforcés ici d'effectuer une synthèse d'éléments dispersés ou inexistant dans la littérature afin d'offrir une vue aussi complète que possible du problème. Les différentes configurations expérimentales utilisables sont présentées, ainsi que les calculs théoriques qui leurs sont associés. Un aperçu des ordres de grandeurs usuels associés au doublage de fréquence est présenté, puis complété par une étude des effets thermiques (lents et rapides) produits par un faisceau impulsionnel. Enfin, un modèle théorique que nous avons développé pour modéliser le doublage dans les multicouches est présenté. À l'issue de ce chapitre, nous disposons donc d'une panoplie d'outils théoriques permettant une bonne compréhension du comportement du doublage de fréquence aux interfaces.

Le chapitre III est essentiellement expérimental. Il présente les trois principaux montages que nous avons développés et utilisés, ainsi que certains résultats fondamentaux. S'agissant de techniques nouvelles au plan mondial, un important travail expérimental a été fourni pour la mise au point de ce montage. Il m'a semblé important d'en relater l'essentiel, notamment à l'usage de ceux qui poursuivront ces travaux.

Dans un premier temps le principe des mesures est décrit, ainsi que le montage classiquement utilisé pour la mesure du doublage de fréquence. Ce montage est utilisé pour effectuer des

mesures fondamentales (mais novatrices) explicitant un lien entre la rugosité d'interfaces et le doublage de fréquence.

Deux systèmes originaux sont décrits ensuite. D'une part, nous présentons la configuration que nous avons mise au point pour utiliser l'exaltation du champ électromagnétique produite par des plasmons de surface afin d'augmenter le doublage de fréquence (ainsi que le modèle associé et les résultats expérimentaux). D'autre part, le montage mis au point pour réaliser de l'imagerie de domaines magnétiques est décrit et caractérisé.

Enfin, le chapitre IV présente, après une brève introduction à la physique des couches magnétiques ultraminces, un aperçu des principaux résultats expérimentaux obtenus sur trois types de systèmes. Au/Co est un excellent système modèle, pour lequel les propriétés en surface et en volume sont très similaires, et servira donc de référence. Le système Co/Pt est plus complexe, notamment en raison de la présence d'alliages aux interfaces. Enfin, Les doubles couches couplées par échange (très proches de celles utilisées pour les disques magnéto-optiques) constituent une belle illustration des possibilités de notre méthode de mesure. Dans chacun de ces cas, nous nous sommes efforcés de donner une interprétation quant à la nature des phénomènes magnétiques révélés par nos mesures.

Remarques préliminaires.

- Le principal phénomène étudié ici est couramment désigné en anglais par les termes de «Second Harmonic Generation» et par l'acronyme correspondant, SHG. La traduction la plus immédiate en Français, «Génération de Second Harmonique», est évidemment très utilisée. S'agissant du phénomène optique non linéaire le plus simple et le plus employé, particulièrement pour la conversion de la fréquence des lasers, il paraît illusoire de changer cet usage, qui repose pourtant sur une double incorrection. D'une part, le terme "second" implique exclusivement la dualité. Le nombre des harmoniques étant évidemment infini, on devrait plutôt utiliser le terme «deuxième». D'autre part, si l'on désigne par F la fréquence fondamentale, la fréquence $2F$ est le *premier* harmonique, alors que le *deuxième* harmonique correspond à la fréquence $3F$. Pour ces raisons, et pour écarter toute ambiguïté, nous emploierons ici préférentiellement les termes de «doublage de fréquence».
- La surface d'un matériau, c'est aussi son interface avec le vide, l'air, ou tout autre gaz. Par souci de simplification, le terme générique «interface» sera donc utilisé dans ce mémoire, y compris dans des cas usuellement désignés par le terme de surface.
- Le système d'unités cgs (centimètre-gramme-seconde) est parfois utilisé, tant en optique non linéaire qu'en magnétisme. Cependant, j'ai préféré utiliser, tout au long de ce mémoire, le système d'unités international SI. Les habitudes des spécialistes du magnétisme m'ont tout de même conduit, afin de faciliter le dialogue, à admettre une exception notable à cette règle en employant dans certains cas l'Oersted (Oe) comme

unité de champ magnétique. La conversion en unités S.I. est: $1 \text{ Oe} = 10^3/4\pi \text{ A/m}$. Pour plus de détails concernant ces unités et leurs origines, on pourra par exemple consulter [BRU67] ou [DEV64].

Ce Travail a été soutenu par les financements suivants: MENRT, BQR de Paris XI, RMNT, Ultimatech et TMR (en collaboration avec le groupe de Th.Rasing, Pays bas).

Chapitre II

Origine et spécificités du doublage de fréquence

On peut trouver dans la plupart des manuels d'optique non linéaire plusieurs manières d'expliquer l'origine microscopique des phénomènes non linéaires. Généralement, le modèle de l'oscillateur anharmonique est utilisé en première approche pour décrire le mouvement des électrons. On obtient ainsi une composante à la fréquence double dans le mouvement d'électrons soumis à une onde électromagnétique monochromatique. Ce modèle simple ne permet cependant que d'accéder à une idée très qualitative du phénomène. Les méthodes plus complètes permettant le calcul des susceptibilités non linéaires à partir de la structure de bande complète d'un matériau dépassent quant à elles le cadre de ce travail. On pourra notamment consulter à ce sujet les travaux de W. Hübner et al. dans [HUB98] (ainsi que les références qui s'y trouvent).

Au cours de ce mémoire, nous utilisons essentiellement une théorie phénoménologique du doublage de fréquence, dont les origines et les conséquences sont développées dans la section qui suit.

1. Phénoménologie: Considérations de symétrie

Le tenseur $\chi^{(2)}$, comme tout tenseur de propriété du matériau, doit refléter la symétrie du système [BIR66]. Il est alors possible de déterminer quels sont les éléments nuls de ce tenseur et d'obtenir certaines relations entre les éléments non nuls. La valeur des éléments du tenseur reste par contre inaccessible par ce type de raisonnement. Ainsi, les tenseurs de propriétés de matériaux magnétiques sont consignés dans [NYE57]. La connaissance des éléments de symétrie propres à l'interface permet donc d'obtenir le tenseur de propriétés correspondant.

Concernant le doublage de fréquence aux interfaces magnétiques, des raisonnements basés sur la théorie des groupes [KIE73, AKH85] ou sur des considérations de symétrie permettent de déterminer quels sont les éléments non nuls du tenseur susceptibilité non linéaire $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$. Ce dernier type de raisonnement a été introduit par Ru-Pin Pan et al. [RUP89]. C'est cette méthode que nous allons utiliser ici pour expliciter le tenseur $\chi^{(2)}$, dans le cas d'interfaces non magnétiques et magnétiques. La quasi totalité des publications relatives au doublage de fréquence sur des interfaces magnétiques se réfèrent à cette démonstration, ou en utilisent les résultats (tables 2.1 à 2.4). Pourtant, la démonstration n'est que très rapidement esquissée dans la littérature. Nous avons donc choisi d'en donner ici une version plus complète.

Pour des raisons pratiques, nous nous limitons cependant à un exemple, en configuration de réflexion sur l'interface (voir figure 2.1): l'interface entre un matériau cristallin à structure cubique (classe cristalline $m\bar{3}m$ selon la notation d'Hermann-Mauguin) et le vide. Ce cas est en effet strictement équivalent à celui d'une interface entre deux matériaux à structure cubique, ou plus généralement à une interface entre milieu isotropes, dans la mesure où leurs éléments

de symétrie communs permettent d'aboutir à des tenseurs susceptibilités ayant les mêmes formes.

1.1 Tenseur $\chi^{(2)}$ associé à une interface

Le tenseur $\chi^{(2)}$ est d'ordre trois. On désignera ses éléments par $\chi^{(2)}_{jkl}$, où les indices j, k et l peuvent prendre les «valeurs» x, y et z . Ce tenseur comporte donc a priori 27 éléments indépendants. L'expression générale décrivant le doublage de fréquence est:

$$P_j(2\omega) = \chi^{(2)}_{jkl} : E_k(\omega) : E_l(\omega) \quad (2.1)$$

$P_j(2\omega)$ est la composante suivant l'axe j de la polarisation non linéaire induite, pour la pulsation doublée 2ω . $E_k(\omega)$ est la composante suivant l'axe k du champ électrique d'excitation, à la pulsation fondamentale ω . On peut remarquer que dans cette expression, les indices k et l ont des rôles symétriques. On a donc la relation:

$$\chi^{(2)}_{jkl} = \chi^{(2)}_{jlk} \quad (2.2)$$

Il est ainsi possible de ramener le tenseur à 18 éléments indépendants seulement. La relation (2.1) peut alors être écrite sous la forme condensée de Voigt:

$$\begin{pmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & \chi_{xyz} & \chi_{xxz} & \chi_{xxy} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & \chi_{yzz} & \chi_{yyz} & \chi_{yxz} & \chi_{yyx} \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & \chi_{zyz} & \chi_{zxz} & \chi_{zxy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2(\omega) \\ E_y^2(\omega) \\ E_z^2(\omega) \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

Afin d'alléger les notations, on notera dans la suite de ce chapitre jkl l'élément de tenseur $\chi^{(2)}_{jkl}$.

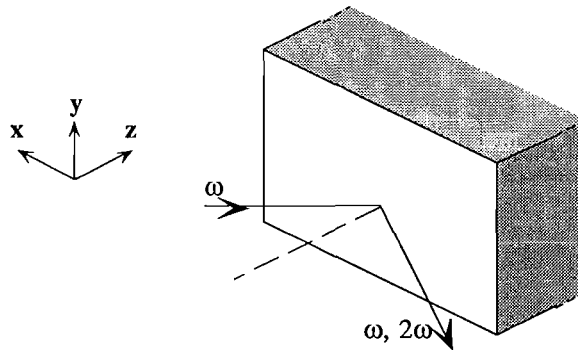


Figure 2.1: Doublage de fréquence optique en réflexion. configuration des axes.

1.2 Éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ pour une surface non magnétique

Considérons un milieu cristallin semi-infini à structure cubique $m3m$ dont le plan (001) est perpendiculaire à z (figure 1). Du fait de la présence de l'interface avec le vide, la symétrie σ_z (symétrie par rapport au plan (x, y)) n'est plus présente dans le système. La classe de symétrie de cette interface est alors $4mm$, et le système n'est plus centrosymétrique. On a alors les éléments de symétrie suivants:

- i) un axe d'ordre 4 suivant la direction z , noté C_{4z}
- ii) une symétrie (ou «miroir») par rapport au plan (x, z) , notée σ_y
- iii) une symétrie par rapport au plan (y, z) , notée σ_x .

Notons ici que les éléments de symétrie de cette interface sont également présents dans le cas d'une interface entre deux matériaux isotropes quels qu'ils soient.

Considérons successivement les implications des symétries présentes:

i) la présence d'un axe C_{4z} impose l'invariance par la rotation d'axe z et d'angle $\pi/2$, notée $R_z^{\pi/2}$. Cette rotation transforme (x, y, z) en (y, \bar{x}, z) . On a donc pour les éléments du tenseur $\chi^{(2)}_{jkl}$:

$$\begin{aligned} xzz &\xrightarrow{R_z^{\pi/2}} yzz \xrightarrow{R_z^{\pi/2}} \bar{x}zz, \text{ donc } xzz=yzz=\bar{x}zz=-xzz, \text{ d'où } xzz=0 \\ xxy &\xrightarrow{R_z^{\pi/2}} yy\bar{x} \xrightarrow{R_z^{\pi/2}} \bar{x}\bar{x}\bar{y}, \text{ donc } xxy=yy\bar{x}=\bar{x}\bar{x}\bar{y}=-xxy, \text{ d'où } xxy=0 \\ xxz &\xrightarrow{R_z^{\pi/2}} yyz \xrightarrow{R_z^{\pi/2}} \bar{x}\bar{x}z, \text{ donc } xxz=yyz=\bar{x}\bar{x}z=xxz. \end{aligned}$$

À travers ces trois exemples, on comprend que tous les éléments comprenant un nombre pair d'indices z sont nuls. Parmi les 18 éléments de (2.3), on obtient ainsi 8 éléments éventuellement non nuls, et les égalités: $xxz=yyz$, $xyz=-yxz$, $zxx=zyy$, zxy , zzz ,

ii) de même, la présence de σ_y impose l'invariance par la symétrie par rapport au plan orthogonal à y , qui transforme (x, y, z) en (x, \bar{y}, z) . On a alors:

$$\begin{aligned} xxz &\xrightarrow{\sigma_y} xxz \\ xyz &\xrightarrow{\sigma_y} x\bar{y}z, \text{ donc } xyz=0 \\ zyy &\xrightarrow{\sigma_y} z\bar{y}\bar{y}=zyy. \end{aligned}$$

Tous les éléments de tenseur comprenant un nombre impair d'indices y sont donc nuls,

iii) la présence de σ_x impose l'invariance par la symétrie par rapport au plan orthogonal à x , qui transforme (x, y, z) en (\bar{x}, y, z) . On a alors:

$$\begin{aligned} xxz &\xrightarrow{\sigma_x} \bar{x}\bar{x}z=xxz \\ xyz &\xrightarrow{\sigma_x} \bar{x}yz, \text{ donc } xyz=0 \\ zyy &\xrightarrow{\sigma_x} zyy. \end{aligned}$$

Tous les éléments de tenseur comprenant un nombre impair d'indices x sont donc nuls. Parmi les 18 éléments de (2.3), on obtient ainsi 5 éléments respectant les conditions énoncées en i), ii) et iii): $\chi_{xz}=\chi_{yz}$, $\chi_{zx}=\chi_{zy}$, χ_{zz} . Si l'on abandonne un instant la notation condensée de XXX, on a donc en utilisant la relation (2.2) les éléments non nuls suivants:

$$\chi_{xxz}=\chi_{xzx}=\chi_{yyz}=\chi_{yzy},$$

$$\chi_{zxx}=\chi_{zyy},\chi_{zzz}.$$

Table 2.1: éléments non nuls du tenseur $\chi^{(2)}$ pour une interface entre milieux isotropes non magnétiques.

1.3 Éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ pour une interface magnétique

Si l'on considère à présent une interface entre deux matériaux dont un au moins est magnétique, trois configurations principales sont à examiner:

- la configuration **longitudinale**, dans laquelle la direction d'aimantation est parallèle à l'axe x (Figure 2.2.a),
- la configuration **transverse**, dans laquelle la direction d'aimantation est parallèle à l'axe y (Figure 2.2.b),
- la configuration **polaire**, dans laquelle la direction d'aimantation est parallèle à l'axe z (Figure 2.2.c).

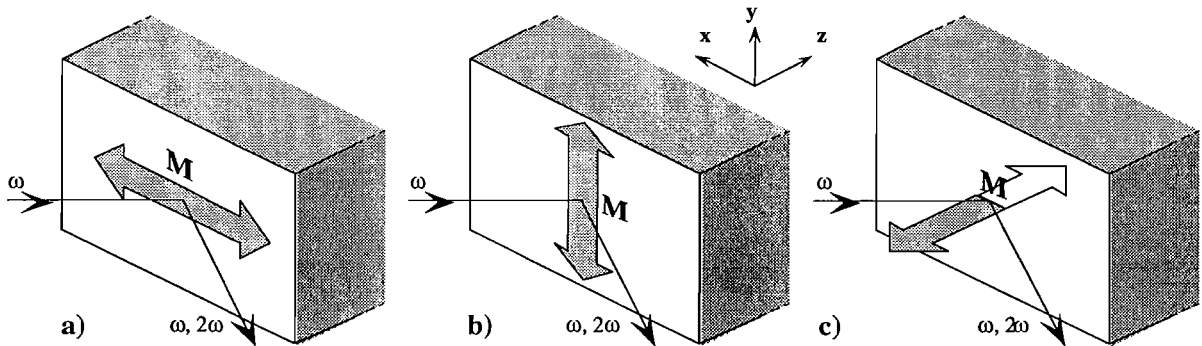


Figure 2.2: Configurations a) longitudinale, b) transverse, c) polaire.

Nous allons suivre l'analyse de Ru-Pin Pan [RUP89] et introduire un tenseur susceptibilité non linéaire $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$ dépendant de l'aimantation \mathbf{M} . Notons ici que \mathbf{M} est un vecteur *axial* [BIR66] (on parle également de pseudo-vecteur), et est donc invariant par inversion (on entend par «inversion» la convolution de 3 symétries par rapport à des plans orthogonaux entre eux). La présence d'une aimantation ne brise pas la symétrie en volume mais diminue la symétrie de l'interface, ce qui introduit, comme nous allons le voir, de nouveaux éléments non nuls dans le tenseur susceptibilité non linéaire. Le doublage de fréquence reste donc

impossible dans le volume d'un matériau magnétique, et le principal argument en faveur de la sensibilité du doublage de fréquence à l'aimantation d'interfaces reste valide.

Pour comprendre le caractère axial du vecteur aimantation (par opposition aux vecteurs, dits *polaires* [BIR66]), on peut visualiser \mathbf{M} comme une boucle de courant. Une symétrie par rapport à un plan orthogonal à \mathbf{M} laisse la boucle, et \mathbf{M} , invariants. Par contre, une symétrie par rapport à un plan parallèle à \mathbf{M} inverse le sens de la boucle. La direction de \mathbf{M} est inchangée, mais son sens est alors inversé. De la même manière, l'opération d'inversion temporelle a pour effet d'inverser le sens de rotation de la boucle de courant, donc le sens de \mathbf{M} . Ceci est à la source d'intéressantes propriétés, comme nous le verrons plus loin.

Les plans, axes et centres de symétrie des cristaux non magnétiques permettent de les affilier à l'une des 32 classes de symétrie spatiale. Cependant, dans un matériau cristallin ferro-, ferri- ou antiferromagnétique, le sens et la direction des spins constituent un motif répétitif qui n'est pas inclus dans cette description géométrique des cristaux. En considérant les symétries du cristal non pas seulement dans l'espace mais dans l'espace-temps, on est ainsi amené à ajouter 58 nouvelles classes aux 32 classes cristallines non magnétiques, pour un total de 90 classes magnéto-cristallines. On peut dès lors obtenir les éléments non nuls du tenseur $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$ dans un ouvrage de référence (par exemple dans [BIR66]) à partir de la classe de symétrie magnéto-cristalline de l'interface, ou grâce à la méthode détaillée ci-dessous pour plusieurs configurations d'aimantation. Le raisonnement employé est strictement analogue à celui employé dans le cas d'une interface non magnétique mais, à des fins de concision, nous allons formaliser la propriété d'invariance utilisée jusqu'à présent [RUP89]:

$$\chi_{jkl}^{(2)} = T_{jj'} T_{kk'} T_{ll'} \chi_{j'k'l'}^{(2)} \quad (2.4)$$

où T est la matrice associée à l'opération de symétrie considérée. On utilise la convention d'Einstein sur les sommations.

1.3.1 Configuration longitudinale

Dans cette configuration, l'aimantation est parallèle à l'axe \mathbf{x} , et l'on écrira: $\mathbf{M} = M\mathbf{x}$. L'interface a , nous l'avons vu, a une symétrie $4mm$. La présence de l'aimantation réduit la symétrie de l'interface à une symétrie pseudo- $1m$, c'est à dire que la symétrie serait $1m$ si \mathbf{M} n'était pas un vecteur axial. En effet, deux symétries seulement subsistent: i) σ_x et ii) σ_y .

i) σ_x est une symétrie cristalline qui n'affecte pas le sens de \mathbf{M} . On la notera donc σ_x^+ , et on a :

$$\sigma_x^+ \circ \chi_{jkl}^{(2)}(M\mathbf{x}) = \chi_{jkl}^{(2)}(M\mathbf{x}).$$

Cette condition conduit, comme nous l'avons vu plus haut, à la nullité de tous les éléments de tenseur comprenant un nombre impair d'indices x ,

ii) en l'absence d'aimantation, σ_y serait une symétrie parfaite. Ici, cependant, l'opération s'accompagne de la transformation $\mathbf{Mx} \xrightarrow{\sigma_x} -\mathbf{Mx}$, en raison du caractère axial de \mathbf{M} . L'opération de symétrie doit donc inclure cette inversion de \mathbf{M} , et l'on écrit σ_y^- , où le signe moins se réfère à l'inversion de \mathbf{M} . On a alors :

$$\sigma_y^- \circ \chi^{(2)}_{jkl}(\mathbf{Mx}) = \chi^{(2)}_{jkl}(\mathbf{Mx}). \quad (2.5)$$

Considérons deux exemples:

$$\begin{aligned} \sigma_y^- \circ \chi^{(2)}_{zyy}(-\mathbf{Mx}) &= \chi^{(2)}_{zyy}(\mathbf{Mx}) \\ \Leftrightarrow \chi^{(2)}_{zyy}(-\mathbf{Mx}) &= \chi^{(2)}_{zyy}(\mathbf{Mx}) \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} \sigma_y^- \circ \chi^{(2)}_{yyy}(-\mathbf{Mx}) &= \chi^{(2)}_{yyy}(\mathbf{Mx}) \\ \Leftrightarrow -\chi^{(2)}_{yyy}(-\mathbf{Mx}) &= \chi^{(2)}_{yyy}(\mathbf{Mx}). \end{aligned}$$

La condition (2.5) n'entraîne la nullité d'aucun élément du tenseur. On comprend cependant que les éléments de tenseur contenant un nombre impair d'indices y sont pairs en aimantation, tandis que les éléments contenant un nombre pair d'indices y sont impairs en aimantation. Si l'on abandonne à nouveau la notation condensée de Voigt, on a donc les éléments non nuls suivants:

Pairs en \mathbf{M}	$\chi_{xxz}(\mathbf{Mx}) = \chi_{xzx}(\mathbf{Mx})$, $\chi_{yyz}(\mathbf{Mx}) = \chi_{zyy}(\mathbf{Mx})$, $\chi_{zxx}(\mathbf{Mx})$, $\chi_{zyy}(\mathbf{Mx})$, $\chi_{zzz}(\mathbf{Mx})$
Impairs en \mathbf{M}	$\chi_{yyy}(\mathbf{Mx})$, $\chi_{yxx}(\mathbf{Mx})$, $\chi_{yzz}(\mathbf{Mx})$, $\chi_{xyx}(\mathbf{Mx}) = \chi_{xxy}(\mathbf{Mx})$, $\chi_{zyz}(\mathbf{Mx}) = \chi_{zzy}(\mathbf{Mx})$

Table 2.2: éléments non nuls du tenseur $\chi^{(2)}$ pour une interface entre milieux isotropes, l'aimantation étant orientée suivant la direction x .

Il est intéressant de noter que le jeu d'éléments du tenseur donné par la table 2.1 pour une surface non magnétique est quasiment identique au jeu d'éléments pairs pour une surface aimantée suivant x (mêmes éléments; quelques relations d'égalité supplémentaires sont présentes dans le premier cas). On peut donc dire que la présence d'une aimantation à l'interface a introduit une rupture de symétrie supplémentaire, qui se traduit par l'apparition d'éléments non nuls dans le tenseur qui sont tous impairs en aimantation.

Ceci se généralise, nous allons le voir, à toute orientation de l'aimantation. On peut ainsi décomposer $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$ en deux tenseurs distincts, l'un pair et l'autre impair en aimantation, qui vérifient respectivement les relations :

$$\chi^{(2)+}(-\mathbf{M}) = \chi^{(2)+}(\mathbf{M}), \text{ et } \chi^{(2)-}(-\mathbf{M}) = -\chi^{(2)-}(\mathbf{M}). \quad (2.6)$$

Certains auteurs utilisent également, d'après [BIR66], des notations équivalentes : $\chi^{(2)i}(\mathbf{M})$ (i pour «invariant under time-inversion») et $\chi^{(2)c}(\mathbf{M})$ (c pour «changes sign under time-inversion»). Enfin, un abus courant et commode consiste à qualifier le tenseur impair de «magnétique» et le tenseur pair de «non-magnétique», suivant que leur signe dépend ou non du sens de l'aimantation. Dans le cas général, tous deux dépendent pourtant, en valeur absolue, de l'aimantation.

1.3.2 Configuration transverse

Dans ce cas, l'aimantation est dans le plan de l'échantillon et perpendiculaire au plan d'incidence, et l'on écrira: $\mathbf{M}=\mathbf{M}_y$. Les éléments non nuls du tenseur correspondant sont déduits très simplement du cas précédent en échangeant x et y dans la table 2.2:

Pairs en \mathbf{M}	$\chi_{yyz}(\mathbf{M}_y)=\chi_{yzy}(\mathbf{M}_y)$, $\chi_{xxz}(\mathbf{M}_y)=\chi_{xzx}(\mathbf{M}_y)$, $\chi_{zxx}(\mathbf{M}_y)$, $\chi_{zyy}(\mathbf{M}_y)$, $\chi_{zzz}(\mathbf{M}_y)$
Impairs en \mathbf{M}	$\chi_{xxx}(\mathbf{M}_y)$, $\chi_{xyy}(\mathbf{M}_y)$, $\chi_{xzz}(\mathbf{M}_y)$, $\chi_{yxy}(\mathbf{M}_y)=\chi_{yyx}(\mathbf{M}_y)$, $\chi_{zxx}(\mathbf{M}_y)=\chi_{zzx}(\mathbf{M}_y)$

Table 2.3: éléments non nuls du tenseur $\chi^{(2)}$ pour une interface entre milieux isotropes, l'aimantation étant orientée dans le plan de l'interface et perpendiculairement au plan d'incidence (direction y).

Notons que les éléments pairs en aimantation sont restés inchangés.

1.3.3 Configuration polaire

Pour une interface entre milieux isotropes, l'aimantation étant perpendiculaire à l'interface, on dérive les éléments non nuls de la présence des opérations de symétrie suivantes :

$$\begin{aligned}\sigma_x^- \circ \chi^{(2)}_{jkl}(\mathbf{M}_z) &= \chi^{(2)}_{jkl}(\mathbf{M}_z), \\ \sigma_y^- \circ \chi^{(2)}_{jkl}(\mathbf{M}_z) &= \chi^{(2)}_{jkl}(\mathbf{M}_z), \\ R_{z,\alpha}^+ \circ \chi^{(2)}_{jkl}(\mathbf{M}_z) &= \chi^{(2)}_{jkl}(\mathbf{M}_z),\end{aligned}$$

où $R_{z,\alpha}^+$ est la rotation d'axe z et d'angle arbitraire α . Un raisonnement similaire aux précédents permet alors d'obtenir les éléments du tenseur suivants:

Pairs en \mathbf{M}	$\chi_{xxz}(\mathbf{Mz})=\chi_{xzx}(\mathbf{Mz})=\chi_{yyz}(\mathbf{Mz})=\chi_{yzy}(\mathbf{Mz}),$ $\chi_{zxx}(\mathbf{Mz})=\chi_{zyy}(\mathbf{Mz}), \chi_{zzz}(\mathbf{Mz})$
Impairs en \mathbf{M}	$\chi_{xyz}(\mathbf{Mz})=\chi_{xzy}(\mathbf{Mz})= -\chi_{yxz}(\mathbf{Mz})=$ $-\chi_{yzx}(\mathbf{Mz})$

Table 2.4 : éléments non nuls du tenseur $\chi^{(2)}$ pour une interface entre milieux isotropes, l'aimantation étant orientée perpendiculairement à l'interface (direction z).

1.4. Commentaires et approfondissements

Les implications du raisonnement que nous venons d'effectuer sont nombreuses. Elles ont été partiellement discutées par Wierenga [WIE95], dont nous reprenons (1.4.2 et début du §1.4.3) puis étendons les réflexions (1.4.1 et fin du §1.4.3).

1.4.1 Relations entre les tenseurs en configurations longitudinale et transverse

Dans ce qui précède, nous n'avons pas exploité l'axe d'ordre 4 C_{4z} , qui est un axe cristallographique altéré par la présence de l'aimantation. Les tenseurs $\chi^{(2)}(\mathbf{Mx})$ et $\chi^{(2)}(\mathbf{My})$ ayant été définis, on peut déduire de la présence de C_{4z} des relations entre les éléments de ces tenseurs. C_{4z} implique, comme nous l'avons vu précédemment, une invariance par la rotation $R_z^{\pi/2}$:

$$(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) \xrightarrow{R_z^{\pi/2}} (\mathbf{y}, -\mathbf{x}, \mathbf{z}).$$

En présence d'une aimantation, on a également pour le vecteur axial \mathbf{M} : $\mathbf{Mx} \xrightarrow{R_z^{\pi/2}} \mathbf{My}$, $\mathbf{My} \xrightarrow{R_z^{\pi/2}} -\mathbf{Mx}$ et $\mathbf{Mz} \xrightarrow{R_z^{\pi/2}} \mathbf{Mz}$.

Il est donc possible d'en déduire que tous les éléments pairs des tenseurs $\chi^{(2)}(\mathbf{Mx})$ et $\chi^{(2)}(\mathbf{My})$ sont égaux:

$$\chi^+(\mathbf{Mx})=\chi^+(\mathbf{My}). \quad (2.6.a)$$

Concernant les éléments impairs, on obtient aisément les relations:

$$\begin{aligned} \chi_{xyx}(\mathbf{Mx}) &= \chi_{xxy}(\mathbf{Mx}) = -\chi_{yxy}(\mathbf{My}) = -\chi_{yyx}(\mathbf{My}), \\ \chi_{zyz}(\mathbf{Mx}) &= \chi_{zzy}(\mathbf{Mx}) = -\chi_{zxx}(\mathbf{My}) = -\chi_{zzx}(\mathbf{My}), \\ \chi_{yyy}(\mathbf{Mx}) &= -\chi_{xxx}(\mathbf{My}), \\ \chi_{yzz}(\mathbf{Mx}) &= -\chi_{xzz}(\mathbf{My}), \\ \chi_{yxx}(\mathbf{Mx}) &= -\chi_{xyy}(\mathbf{My}). \end{aligned}$$

C'est à dire:
$$\chi^-(\mathbf{Mx}) = -\chi^-(\mathbf{My}). \quad (2.6.b)$$

On comprend ainsi que les configurations longitudinale et transverse sont étroitement liées (elles ne diffèrent que par la position relative de l'aimantation et du plan d'incidence). Il faut cependant noter que l'invariance par $R_z^{\pi/2}$ que nous venons d'appliquer à l'aimantation n'est valable que si l'on a bien $|\mathbf{Mx}| = |\mathbf{My}|$. Il en est donc de même des relations (2.6). Ce résultat sera essentiellement utilisé lors de mesures azimutales, où l'on conserve bien l'aimantation par rotation de l'échantillon.

1.4.2 Implications de la symétrie d'inversion temporelle

En général, le tenseur $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$ est complexe. Cependant, une analyse des propriétés d'inversion temporelle permet dans certaines conditions d'intéressantes simplifications du tenseur $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$. Reprenons l'expression générale (2.1):

$$P_{2\omega,j}(\mathbf{r},t) = \chi^{(2)}_{jkl} : E_{\omega,k}(\mathbf{r},t) : E_{\omega,l}(\mathbf{r},t). \quad (2.7)$$

Nous expliciterons plus loin les dépendances spatiales et temporelles de ces grandeurs. Il suffit ici de considérer que l'inversion temporelle se traduit par: $t \rightarrow -t$, $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$ et $\phi \rightarrow -\phi$, où \mathbf{k} est le vecteur d'onde et ϕ la phase. Notons ici que la cohérence est possible en raison de la faible épaisseur des couches. Si l'on néglige les pertes dues à l'absorption (non symétriques par inversion temporelle), on a:

$$P_{2\omega,j}(\mathbf{r},t) \rightarrow P_{2\omega,j}^*(\mathbf{r},t) \text{ et } E_{\omega,k}(\mathbf{r},t) \rightarrow E_{\omega,k}^*(\mathbf{r},t). \quad (2.8)$$

De plus, pour un système magnétique, nous avons vu que, \mathbf{M} étant un vecteur axial, la symétrie temporelle implique: $\mathbf{M} \rightarrow -\mathbf{M}$. Nous avons également montré qu'il était possible de scinder le tenseur susceptibilité en un tenseur pair et un tenseur impair en aimantation:

$$P_{2\omega,j}(\mathbf{r},t) = [\chi_{jkl}^+(\mathbf{M}) + \chi_{jkl}^-(\mathbf{M})] E_{\omega,k}(\mathbf{r},t) E_{\omega,l}(\mathbf{r},t). \quad (2.9)$$

En utilisant (2.8) et (2.9), l'inversion temporelle donne:

$$P_{2\omega,j}^*(\mathbf{r},t) = [\chi_{jkl}^+(\mathbf{M}) - \chi_{jkl}^-(\mathbf{M})] E_{\omega,k}^*(\mathbf{r},t) E_{\omega,l}^*(\mathbf{r},t). \quad (2.10)$$

En sommant (2.9) et (2.10), on obtient:

$$\begin{aligned} P_{2\omega,j}(\mathbf{r},t) + \text{c.c.} &= \chi_{jkl}^+(\mathbf{M}) [E_{\omega,k}(\mathbf{r},t) E_{\omega,l}(\mathbf{r},t) + \text{c.c.}] \\ &+ \chi_{jkl}^-(\mathbf{M}) [E_{\omega,k}(\mathbf{r},t) E_{\omega,l}(\mathbf{r},t) - \text{c.c.}] \end{aligned} \quad (2.11)$$

Le premier terme de cette équation est réel. Comme cette équation doit être valide quels que soient \mathbf{r} et t , le second terme dans (2.11) doit également être réel. On en conclut donc que $\chi_{jkl}^+(\mathbf{M})$ est réel, et que $\chi_{jkl}^-(\mathbf{M})$ est imaginaire pur. Autrement dit:

$$\chi_{jkl}^+(\mathbf{M}) \in \mathfrak{R}, \text{ et } i \chi_{jkl}^-(\mathbf{M}) \in \mathfrak{R}. \quad (2.12)$$

Ces relations ne sont cependant vraies que lorsque l'absorption est négligeable, ce qui implique que les constantes diélectriques des matériaux en présence soient réelles, et ce à la fréquence double comme au fondamental. Dans le domaine de fréquence où la partie imaginaire de la constante diélectrique n'est pas négligeable, aucune relation de phase simple n'existe a priori entre les tenseurs pair et impair en aimantation, qui sont tous deux complexes. Récemment, ce résultat a été confirmé par Hübner et Bennemann [HUB95] à partir d'une analyse théorique microscopique.

1.4.3 Interfaces symétriques

Certains des systèmes magnétiques que nous avons étudiés sont constitués d'empilements symétriques de couches. Considérons par exemple un empilement de deux matériaux A et B, où B est magnétique, l'aimantation étant orientée suivant y , qui est représenté sur la figure 2.3.

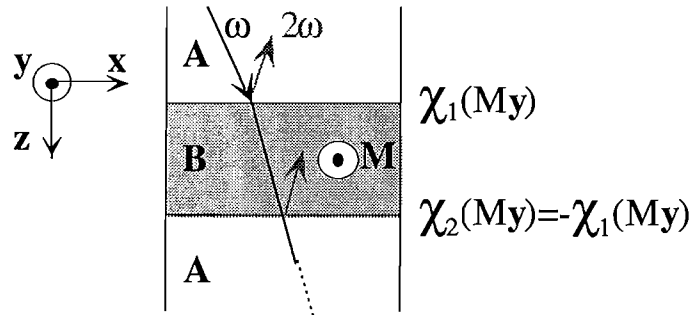


Figure 2.3: Système tricouche A/B/A. L'aimantation, dans B, est dans le plan des couches, suivant l'axe y . (Note: les composantes transmises à 2ω et réfléchies à ω ont été omises pour plus de clarté)

D'un point de vue théorique, ces deux interfaces A/B et B/A sont strictement symétriques par rapport au plan x,y . Le tenseur associé à l'interface A/B sera noté $\chi_1^{(2)}(\mathbf{My})$ et celui associé à B/A $\chi_2^{(2)}(\mathbf{My})$ (voir figure 2.3). Ces tenseurs ont tous deux la forme donnée dans la table 2.3 pour une interface entre matériaux isotropes en configuration transverse. On peut déduire de la présence de la symétrie σ_z^- une relation entre les tenseurs de chacune de ces interfaces:

$$\sigma_z^- \circ \chi_{jkl,1}^{(2)}(\mathbf{My}) = \chi_{jkl,2}^{(2)}(\mathbf{My}) \quad (2.13)$$

Notons que cette symétrie s'accompagne de l'inversion de \mathbf{M} : $\mathbf{M}\mathbf{y} \rightarrow -\mathbf{M}\mathbf{y}$. Examinons les conséquences de (2.12) pour différents éléments du tenseur:

$$\sigma_z^- \chi_{zxx,1}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{y}) = -\chi_{zxx,1}^{(2)}(-\mathbf{M}\mathbf{y}) = -\chi_{zxx,1}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{y}) = \chi_{zxx,2}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{y}).$$

Ici, nous avons utilisé le fait que l'élément $\chi_{zxx,1}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{y})$ est pair (voir table 2.3). Les deux éléments sont donc de signes opposés (i.e. ont entre eux une différence de phase de 180°). On peut répéter ce raisonnement pour un élément impair:

$$\sigma_z^- \chi_{xxx,1}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{y}) = \chi_{xxx,1}^{(2)}(-\mathbf{M}\mathbf{y}) = -\chi_{xxx,1}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{y}) = \chi_{xxx,2}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{y}).$$

À nouveau, on obtient une différence de phase de 180° entre les 2 éléments du tenseur. La table 2.3 permet de vérifier que tous les éléments pairs en \mathbf{M} ont un nombre impair d'indices z , tandis que les éléments impairs ont un nombre pair d'indices z . Il est donc possible de généraliser:

$$\sigma_z^- \chi_1^{(2),+}(\mathbf{M}\mathbf{y}) = -\chi_1^{(2),+}(-\mathbf{M}\mathbf{y}) = -\chi_1^{(2),+}(\mathbf{M}\mathbf{y}) = \chi_2^{(2),+}(\mathbf{M}\mathbf{y}),$$

et

$$\sigma_z^- \chi_1^{(2),-}(\mathbf{M}\mathbf{y}) = \chi_1^{(2),-}(-\mathbf{M}\mathbf{y}) = -\chi_1^{(2),-}(\mathbf{M}\mathbf{y}) = \chi_2^{(2),-}(\mathbf{M}\mathbf{y}).$$

Le même résultat est obtenu dans le cas où $\mathbf{M}=\mathbf{M}\mathbf{x}$ en échangeant les indices x et y .

Lorsque $\mathbf{M}=\mathbf{M}\mathbf{z}$, on peut voir dans la table 2.4 que tous les éléments de tenseur $\chi_{ijk}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{z})$ ont un nombre impair d'indices z . Comme, de plus, on a la relation analogue à (2.12) (mais ici la symétrie σ_z n'inverse pas le sens de l'aimantation $\mathbf{M}\mathbf{z}$, et on la note σ_z^+): $\sigma_z^+ \chi_{jki,1}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{z}) = \chi_{jki,2}^{(2)}(\mathbf{M}\mathbf{z})$, on obtient un résultat similaire.

On peut donc généraliser ce résultat à toute configuration d'aimantation, et on a la relation :

$$\chi_1^{(2)}(\mathbf{M}) = -\chi_2^{(2)}(\mathbf{M}) \quad (2.14)$$

Deux interfaces parfaitement symétriques ont donc des contributions au doublage de fréquence égales en norme et de signes opposés. À chaque fois que l'hypothèse selon laquelle les deux interfaces sont parfaitement symétriques est recevable, la relation (2.14) permet donc de réduire de moitié le nombre de paramètres libres.

Le résultat (2.14) a d'autres conséquences importantes, que nous allons à présent discuter.

- Le doublage de fréquence est nul dans le cas d'un tricouche transparent et parfaitement symétrique.

En l'absence d'absorption dans le matériau B, (2.14) implique que les contributions des interfaces A/B et B/A s'annulent. Un tel système n'engendre en théorie aucun signal doublé en fréquence.

Cependant, les systèmes réels présentent souvent des défauts de symétrie entre ces deux interfaces, qui ont alors des tenseurs associés légèrement différents, favorisant ainsi le doublage de fréquence sur une interface plutôt que sur l'autre. Globalement, le doublage de fréquence est alors autorisé sur le système.

- Rôle de l'absorption dans la couche B

L'absorption est rarement négligeable aux pulsations ω et 2ω dans les matériaux que nous avons étudiés. Le faisceau à la pulsation ω parvient donc atténué à l'interface la plus profonde. De même, le faisceau réfléchi doublé en fréquence est absorbé par la couche B, si bien que le signal doublé en fréquence n'est pas nul, et provient essentiellement de l'interface supérieure. D'une manière plus générale, on comprend que dans toute structure possédant ce type de symétrie, et en l'absence de tout effet d'exaltation du champ sur une interface (par des plasmons locaux ou non locaux, par exemple), c'est la présence d'une absorption dans le milieu séparant les interfaces symétriques qui permet l'observation d'un signal doublé en fréquence. Ce signal provient alors essentiellement de l'interface supérieure. Ainsi, il est théoriquement possible d'observer un signal provenant de nanostructures, pourvu qu'elles soient constituées d'un matériau suffisamment absorbant aux pulsations ω et/ou 2ω .

- Intérêt de la configuration de doublage en réflexion.

Nous avons vu précédemment que le doublage de fréquence s'effectue en transmission (dans la direction du faisceau fondamental incident) aussi bien qu'en réflexion.

En réflexion dans un système symétrique, la remarque précédente montre que l'absorption à ω et l'absorption à 2ω concourent toutes deux à favoriser la contribution de l'interface supérieure A/B au détriment de l'interface B/A.

En transmission dans le même système, l'absorption à ω favorise toujours l'interface supérieure A/B, qui reçoit un flux lumineux à ω plus important que B/A. Cependant, seule cette même contribution au doublage venant de l'interface A/B sera affectée par l'absorption à 2ω dans B. La discrimination entre les contributions antagonistes des deux interfaces symétriques est alors moins bonne.

On peut s'attendre à ce que le doublage de fréquence dans une structure symétrique soit plus faible en transmission qu'en réflexion. C'est cet argument, ainsi que la présence dans de nombreux systèmes expérimentaux de couches tampon ainsi que de substrats épais et absorbants, qui nous a amenés (à l'instar de très nombreux auteurs) à considérer exclusivement la configuration en réflexion dans ce travail.

2. Les configurations expérimentales: particularités et ordres de grandeur:

Nous avons à présent explicité le tenseur $\chi^{(2)}$ (\mathbf{M}). Le grand nombre d'éléments de tenseur mis en jeu dans une configuration donnée interdit le plus souvent une détermination expérimentale directe des valeurs de ces éléments par une mesure unique. Il importe alors de pouvoir faire varier certains paramètres de mesure ou les caractéristiques de l'échantillon de manière à accéder à des informations pertinentes. Nous allons dans un premier temps décrire et justifier les différentes techniques de mesure que nous avons utilisées, avant d'en déduire quelques ordres de grandeurs dans des cas expérimentaux courants.

2.1. Les configurations expérimentales.

2.1.1 Mesure en fonction du sens de l'aimantation

La présence de termes impairs en aimantation nous incite en premier lieu à faire varier l'aimantation dans le matériau sondé. Cette mesure élémentaire (qui est à la base de toutes les techniques qui suivent) consiste à mesurer les flux lumineux à la fréquence double générés aux interfaces d'un système pour deux aimantations de sens opposés. Considérons pour cela le système représenté sur la figure (2.4):

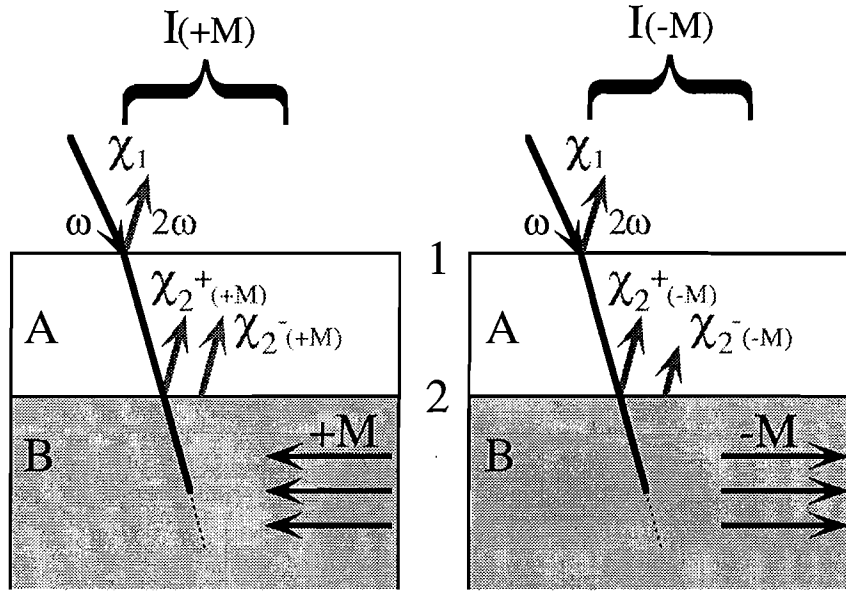


Figure 2.4: Représentation schématique des contributions des deux interfaces d'un système semi infini constitué de 2 matériaux A et B (B est magnétique), pour deux sens opposés de l'aimantation dans B. (N.B.: pour plus de clarté, les composantes transmises à 2ω et réfléchies à ω ont été omises; les composantes paire et impaire en aimantation χ_2^+ et χ_2^- ont été séparées).

Le système considéré se compose de deux matériaux A et B dont un (B) est magnétique. On suppose l'interface suivante (interface B/C) suffisamment éloignée pour que sa contribution au doublage de fréquence soit négligeable. Aux interfaces 1 (non magnétique) et 2 (magnétique), on peut associer deux tenseurs de susceptibilité non linéaire χ_1 et $\chi_2(\mathbf{M})$. On peut alors écrire l'éclairement à la fréquence double sous la forme:

$$\begin{aligned} I^{2\omega}(\pm\mathbf{M}) &\propto |P_1(2\omega) + P_2(2\omega)|^2 = |(\chi_1 + \chi_2(\mathbf{M})) : \mathbf{E} : \mathbf{E}|^2 \\ &\propto |(\chi_1 + \chi_2^+(\mathbf{M}) \pm \chi_2^-(\mathbf{M}))|^2, \end{aligned}$$

où l'on a décomposé $\chi_2(\mathbf{M})$ en une composante paire et une composante impaire en aimantation. Lorsque l'on change le sens de l'aimantation seul le signe de \mathbf{M} change, non sa norme ou sa direction. Le terme pair en aimantation peut donc être assimilé à un terme non magnétique. Dans le cas général, les grandeurs mises en jeu dans ces expressions sont complexes. Soit φ la différence de phase entre les composantes magnétique et non magnétique, et $\chi_{\text{nonmagn.}}$ et $\chi_{\text{magn.}}$ les grandeurs réelles associées. On peut alors écrire [MAL98]:

$$\begin{aligned} I^{(2\omega)}(\pm\mathbf{M}) &\propto \left| \chi_{\text{nonmagn.}} \pm \chi_{\text{magn.}} e^{i\varphi} \right|^2 \\ &\propto \left| \chi_{\text{nonmagn.}} \right|^2 + \left| \chi_{\text{magn.}} \right|^2 \pm 2 \left| \chi_{\text{nonmagn.}} \right| \left| \chi_{\text{magn.}} \right| \cos \varphi. \end{aligned} \quad (2.14)$$

Ces expressions permettent de comprendre qu'un changement du sens de l'aimantation va se traduire par une variation de l'éclairement à la fréquence double. Cet effet d'origine magnétique pourra être isolé en évaluant la différence:

$$I^{(2\omega)}(+\mathbf{M}) - I^{(2\omega)}(-\mathbf{M}) \propto 4 \left| \chi_{\text{nonmagn.}} \right| \left| \chi_{\text{magn.}} \right| \cos \varphi. \quad (2.15)$$

On peut également définir le contraste magnétique ρ comme la différence relative entre les éclairagements à la fréquence double pour deux sens opposés de l'aimantation:

$$\begin{aligned} \rho &= \frac{I^{(2\omega)}(+\mathbf{M}) - I^{(2\omega)}(-\mathbf{M})}{I^{(2\omega)}(+\mathbf{M}) + I^{(2\omega)}(-\mathbf{M})} \\ &= 2 \frac{\left| \chi_{\text{nonmagn.}} \right| \left| \chi_{\text{magn.}} \right| \cos \varphi}{\left| \chi_{\text{nonmagn.}} \right|^2 + \left| \chi_{\text{magn.}} \right|^2}. \end{aligned} \quad (2.16)$$

Cette grandeur présente l'avantage de ne pas dépendre de l'éclairement à la fréquence fondamentale.

2.1.2 Études polarimétriques

En fonction des polarisations utilisées, différents éléments du tenseur $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$ vont être mis en jeu. Il est donc intéressant d'examiner l'influence de la polarisation du faisceau incident au fondamental (polarisation d'entrée) et de la polarisation détectée sur le faisceau réfléchi doublé en fréquence (polarisation de sortie). Dans certaines configurations, il est ainsi possible d'extraire des informations sur les éléments du tenseur $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$ et sur l'orientation de l'aimantation. Par ailleurs, cette étude est à la base d'une optimisation de la configuration expérimentale.

Reprenons le système décrit par la figure 2.4, et considérons la configuration décrite par la figure 2.5:

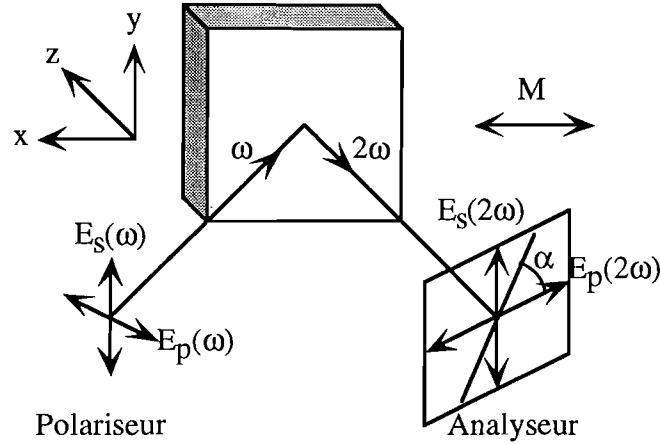


Figure 2.5: Doublage de fréquence en configuration longitudinale. L'analyseur forme un angle α par rapport à la polarisation p.

Nous allons à présent envisager différentes configurations de la direction d'aimantation et des polarisations.

- Configuration longitudinale, polarisation incidente p.

L'aimantation est supposée dans le plan des couches et dans le plan d'incidence (direction x). Les tenseurs associés aux interfaces 1 et 2 prennent respectivement les formes données dans les tables 2.1 et 2.2.

Le faisceau incident étant polarisé p ($\mathbf{E} = E_x \mathbf{x} + E_z \mathbf{z}$), les éléments du tenseur $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$ qui entrent en jeu dans l'expression (2.1): $P_j(2\omega) = \chi^{(2)}_{jkl} : E_k(\omega) : E_l(\omega)$, doivent être de la forme $\chi^{(2)}_{jkl}(\mathbf{M})$ avec $k, l = x$ ou z . Parmi les éléments non nul du tenseur susceptibilité donnés dans la table 2.2, ceux qui satisfont cette condition sont:

- χ_{xxz}, χ_{zxx} et χ_{zzz} , non magnétiques (pairs)
- χ_{yxx} et χ_{yzz} , magnétiques (impairs).

Il en résulte que la contribution d'origine non magnétique à la GDH est entièrement polarisée p (dans tous ces éléments pairs, l'indice j vaut = x ou z), tandis que la contribution d'origine magnétique est polarisée s (j = y).

En utilisant (2.14), on peut écrire l'éclairement à 2ω comme la somme de deux composantes d'origine non magnétique et magnétique respectivement polarisées p et s, et déphasées de ϕ . Comme, de plus, l'analyseur forme un angle α par rapport au plan d'incidence, l'éclairement à 2ω est proportionnel à:

$$I^{(2\omega)}(\alpha, \pm \mathbf{M}) \propto \left| \chi_{\text{nonmagn.}} \cos \alpha \pm \chi_{\text{magn.}} e^{i\phi} \sin \alpha \right|^2.$$

En posant $\phi_k = \frac{\chi_{\text{magn.}}}{\chi_{\text{nonmagn.}}}$, on a:

$$I^{(2\omega)}(\alpha, \pm M) \propto \chi_{\text{nonmagn.}}^2 (\cos^2 \alpha + \phi_k^2 \sin^2 \alpha \pm 2\phi_k \sin \alpha \cos \alpha \cos \varphi), \quad (2.17)$$

et on peut exprimer le contraste magnétique (2.16) sous la forme:

$$\rho(\alpha) = \frac{I(\alpha, +M) - I(\alpha, -M)}{I(\alpha, +M) + I(\alpha, -M)} = 2 \frac{\phi_k \tan \alpha \cos \varphi}{1 + \phi_k^2 \tan^2 \alpha}. \quad (2.18)$$

Grâce à cette expression, la mesure du contraste magnétique autorise l'accès à deux paramètres importants: le rapport des amplitudes et la différence de phase entre les composantes magnétique et non magnétique.

Nous allons à présent examiner les variations de ces grandeurs en fonction de α , pour les valeurs des paramètres $\phi_k=0,1$ et $\varphi=30^\circ$. Comme nous le verrons plus loin, ces valeurs sont typiquement de l'ordre de grandeur de celles rencontrées dans des tricouches Au/Co/Au.

La figure 2.6 représente les éclaircissements calculés à l'aide de l'expression (2.17) pour deux sens opposés de l'aimantation.

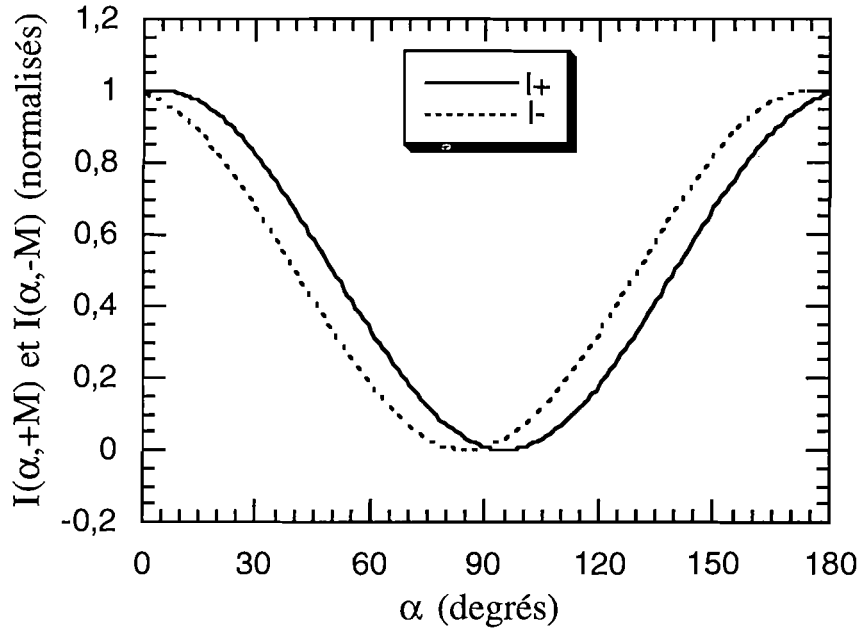


Figure 2.6.a : Éclaircissements normalisés à la fréquence double, pour deux sens opposés de l'aimantation, $I(\alpha, +M)$ et $I(\alpha, -M)$, calculés à partir de l'expression (2.17) pour les paramètres $\phi_k=0,1$ et $\varphi=30^\circ$.

Les éclaircissements $I(\alpha, +M)$ et $I(\alpha, -M)$ (respectivement notés I^+ et I^-) ont un maximum autour de 0° (respectivement 5° et 175° dans le cas présent) et un minimum autour de 90° (respectivement 95° et 85°). À chacun de ces extrema α_i , donnés par l'expression:

$$\tan(2\alpha_i) = \frac{\pm 2\phi_k \cos \varphi}{1 - \phi_k^2},$$

on a $I_+ = I_-$, c'est à dire aucun contraste magnétique. Sur la figure 2.6.b sont représentés la différence $I(\alpha, +M) - I(\alpha, -M)$ et le contraste magnétique en fonction de α . Ce sont toutes deux des fonctions impaires de l'angle α . $I(\alpha, +M) - I(\alpha, -M)$ a un maximum pour $\alpha = 45^\circ$ et un minimum pour $\alpha = 135^\circ$ (et ce indépendamment des paramètres ϕ_k et φ).

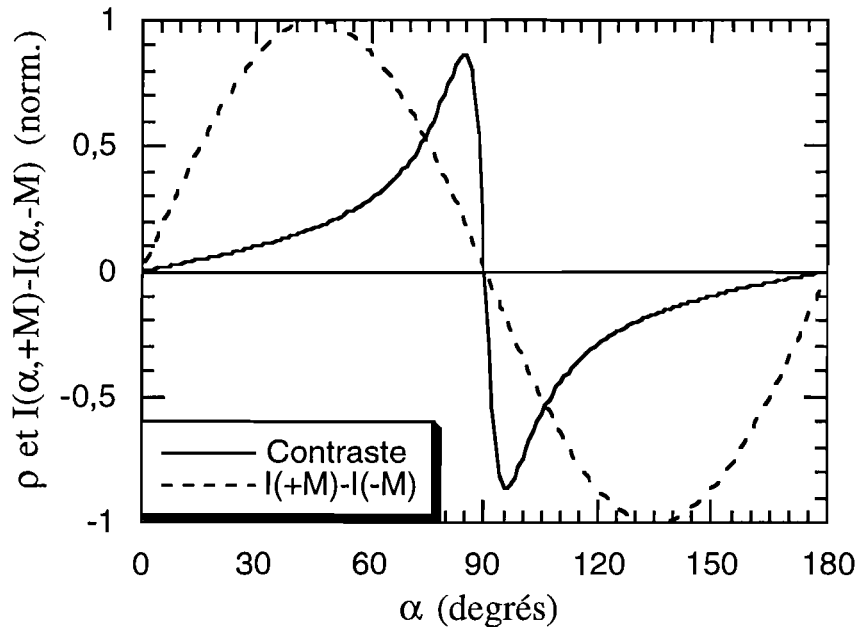


Figure 2.6.b : Contraste magnétique longitudinal en fonction de l'angle α de l'analyseur avec le plan d'incidence, calculé à partir de l'expression (2.18) pour les paramètres $\phi_k = 0,1$ et $\varphi = 30^\circ$.

Le contraste magnétique change de signe pour $\alpha = 0^\circ$ et $\alpha = 90^\circ$, et présente deux extrema (vers $\alpha = 85^\circ$ et $\alpha = 95^\circ$ dans notre cas). Il prend alors des valeurs élevées, de l'ordre de 1 ou -1. Près de la position $\alpha = 90^\circ$, c'est à dire pour un polariseur et un analyseur croisé, on a donc un signal total très faible, mais un fort contraste magnétique. Cette situation s'inverse près de la position $\alpha = 0^\circ$, (polariseur et analyseur p) où l'on a un fort signal mais aucun contraste magnétique. C'est cette dernière position que l'on choisira donc pour obtenir une information strictement «cristallographique» (toujours dans l'approximation dipolaire), c'est à dire ne dépendant pas de l'aimantation. La position idéale pour obtenir une information sur l'aimantation se situe donc autour de $\alpha = 45^\circ$, et sera choisie afin d'optimiser le rapport signal à bruit, suivant qu'il est nécessaire d'avoir un fort signal à 2ω (plus près de $\alpha = 0^\circ$), ou un fort contraste (vers $\alpha = 90^\circ$).

Les travaux existants dans la littérature [STR95] ne donnent que le résultat correspondant à un polariseur p en configuration longitudinale. Une étude du même type peut évidemment être menée pour toutes les autres combinaisons de polarisation et d'orientation de

l'aimantation. Afin d'offrir une vue synthétique du problème, nous avons résumé à la table (2.5) les résultats correspondant à toutes ces configurations.

	Polarisation d'entrée	Éléments pairs	Éléments impairs	$\rho(\alpha)$
Longitudinal ($\mathbf{M}=\mathbf{M}_x$)	p	$xxz=xzx, zxx,$ zzz p	yxx, yzz s	$2 \frac{\Phi_k \tan \alpha \cos \varphi}{1 + \Phi_k^2 \tan^2 \alpha}$
	s	zyy p	yyy s	$2 \frac{\Phi_k \tan \alpha \cos \varphi}{1 + \Phi_k^2 \tan^2 \alpha}$
Transverse ($\mathbf{M}=\mathbf{M}_y$)	p	$xxz=xzx, zxx,$ zzz p	$xxx, xzz, zxz,$ zzx p	$2 \frac{\Phi_k \cos \varphi}{1 + \Phi_k^2} = \text{cte}$
	s	zyy p	xyy p	$2 \frac{\Phi_k \cos \varphi}{1 + \Phi_k^2} = \text{cte}$
Polaire ($\mathbf{M}=\mathbf{M}_z$)	p	$xxz=xzx, zxx,$ zzz p	yxz, yzx s	$2 \frac{\Phi_k \tan \alpha \cos \varphi}{1 + \Phi_k^2 \tan^2 \alpha}$
	s	zyy p	/	0

Table 2.5: Éléments pairs et impairs du tenseur susceptibilité entrant en jeu, polarisation résultante à la fréquence double et expression du contraste magnétique en fonction de la polarisation d'entrée et de l'orientation de l'aimantation. Les éléments $\chi_{jkl}(\mathbf{M})$ du tenseur sont notés jkl .

On peut noter que les éléments pairs du tenseur $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$ sont les mêmes quelle que soit l'orientation de l'aimantation: quatre éléments en polarisation p incidente, un seul en s. Comme nous l'avons mentionné plus haut, les éléments pairs non nuls sont les mêmes quelle que soit l'aimantation de l'interface (isotrope). En aimantation transverse et longitudinale, on remarque par ailleurs que la polarisation incidente s permet de n'avoir qu'un élément pair et qu'un élément impair, ce qui permet d'obtenir assez facilement la valeur de ces éléments de tenseur. Par contre, cette polarisation incidente s ne donne lieu à aucun signal d'origine magnétique lorsque l'aimantation est perpendiculaire au plan des couches. Notons enfin que, en aimantation transverse, le contraste magnétique ne varie pas avec α , les contributions magnétique et non magnétique étant toutes deux polarisées p.

- Aimantation dans le plan de la couche (ni transverse, ni longitudinale), polarisation incidente p.

Les contrastes magnétiques présentés dans la table 2.5 sont tous des fonctions impaires (ou constantes) de l'angle de l'analyseur. Nous allons voir ici que, dans le cas où l'aimantation n'est ni dans le plan d'incidence ni perpendiculaire à ce plan, le contraste magnétique est une fonction ni paire ni impaire de α . La mesure de $\rho(\alpha)$ permet alors de détecter aisément ce cas de figure.

En configuration d'aimantation planaire ni transverse ni longitudinale, les éléments de tenseur qui interviennent sont, d'après les tables 2.2 et 2.3, pour une polarisation incidente p:

- pairs en M: xxz, xzx, zxx, zzz. La composante induite par ces termes est polarisée p, et sera notée χ_{nm} ,

- impairs en M: xxx, xzz, zxz, yxx, yzz. Les trois premiers termes induisent une composante polarisée p et déphasée de φ par rapport à la composante non magnétique, que l'on notera $\chi_m e^{i\varphi}$. Les deux derniers induisent une composante polarisée s déphasée de φ' , notée $\chi'_m e^{i\varphi'}$.

On peut donc écrire:

$$I^{(2\omega)}(\alpha, \pm \mathbf{M}) \propto \left| \chi_{nm} \cos \alpha \pm \chi_m e^{i\varphi} \cos \alpha \pm \chi'_m e^{i\varphi'} \sin \alpha \right|^2.$$

Le contraste magnétique (2.16) prend alors la forme:

$$\rho(\alpha) = 2 \frac{\chi_{nm} \chi'_m \cos \varphi' \tan \alpha + \chi_{nm} \chi_m \cos \varphi}{\chi_m'^2 \tan^2 \alpha + 2 \chi_m \chi'_m \cos(\varphi - \varphi') \tan \alpha + \chi_m^2 + \chi_{nm}^2},$$

ou encore, en posant $\phi_1 = \chi_{nm} / \chi'_m$ et $\phi_2 = \chi_m / \chi'_m$:

$$\rho(\alpha) = 2 \frac{\phi_1 \cos \varphi' \tan \alpha + \phi_1 \phi_2 \cos \varphi}{\tan^2 \alpha + 2 \phi_2 \cos(\varphi - \varphi') \tan \alpha + \phi_1^2 + \phi_2^2}. \quad (2.19)$$

La fonction $\rho(\alpha)$ donnée par (2.19) n'est ni paire ni impaire. L'appartenance d'un tel comportement pour le contraste magnétique permet ainsi d'affirmer que l'aimantation possède une composante qui n'est pas seulement longitudinale (ou pas seulement transverse). Cette propriété est particulièrement utile, puisqu'elle permet, comme nous le verrons au chapitre IV (voir par exemple la figure (4.28)), de détecter la présence d'une anisotropie dans le plan, si la mesure du contraste est effectuée à la rémanence.

2.2. Ordres de grandeur

2.2.1. Prédictions théoriques

La question de l'amplitude des effets de doublage de fréquence aux interfaces magnétiques étant d'une grande importance, de nombreuses études théoriques ont été consacrées au calcul *ab initio* des valeurs des éléments $\chi_{ijk}^{(2)}(\mathbf{M})$. La plupart de ces études sont consacrées aux cas du nickel et du fer, le cas du cobalt étant d'un traitement théorique plus délicat en raison de l'importance du couplage spin/orbite dans ce métal.

En 1989, Ru-Pin Pan *et al.* [RUP89], afin d'évaluer la possibilité d'observer le doublage de fréquence induit par aimantation aux interfaces, supposent les éléments de tenseurs pairs et impairs en aimantation égaux (hypothèse à l'évidence un peu simpliste). En supposant que, comme dans le cas de l'effet Kerr magnéto-optique, c'est essentiellement le changement des fonctions d'ondes électroniques qui est responsable en première approche des effets induits par l'aimantation, ils obtiennent, pour une surface de nickel (001), un rapport:

$$\left| \chi^{(2),-} / \chi^{(2),+} \right|_{\text{Ni}} \approx 0,07.$$

Partant de $\left| \omega^2 \chi^{(2),+} \right|_{\text{Ni}} \approx 10^{13} \text{V}^{-1} \text{s}^{-2} \text{m}$ pour une surface métallique, Ru-Pin Pan *et al.* évaluent donc: $\left| \omega^2 \chi^{(2),-} \right|_{\text{Ni}} \approx 10^{12} \text{V}^{-1} \text{s}^{-2} \text{m}$.

La même surface de nickel a par la suite été étudiée plus en détail par Hübner *et al.* Grâce à un calcul incluant la structure de bande complète du matériau, ils obtiennent [HUB90, HUB91]: $\left| \omega^2 \chi_{zzz}^{(2),-} \right|_{\text{Ni}} \approx 10^{17} \text{V}^{-1} \text{s}^{-2} \text{m}$ et, à l'instar de Ru-Pin Pan, $\left| \chi^{(2),-} / \chi^{(2),+} \right|_{\text{Ni}} \approx 0,07$.

Une approche similaire a été utilisée par Pustogawa *et al.* dans le cas du fer, et a donné [PUS93, PUS94]: $\left| \omega^2 \chi_{zzz}^{(2),-} \right|_{\text{Fe}} \approx 10^{16} \text{V}^{-1} \text{s}^{-2} \text{m}$, et $\left| \chi^{(2),-} / \chi^{(2),+} \right|_{\text{Fe}} \approx 0,18$.

Toutes ces valeurs sont bien au dessus du seuil de détectabilité du doublage de fréquence, évalué par Shen [SHE86] à $10^9 - 10^{10} \text{V}^{-1} \text{s}^{-2} \text{m}$, ou $10^{-19} - 10^{-18}$ esu. Les éléments du tenseurs susceptibilité non-linéaire doivent donc donner lieu à des effets mesurables, et les rapports entre les éléments pairs et impairs permettent d'attendre des changements observables lorsque l'aimantation est inversée.

Le rapport entre éléments impairs et pairs pour d'autres métaux a par ailleurs été déduit très simplement par Reif *et al.* [REI91] du résultat obtenu par Hübner dans le cas du nickel, en supposant les éléments impairs proportionnels au moment magnétique en volume. Ainsi, dans le cas du fer, on a $\mu_{\text{Fe}}/\mu_{\text{Ni}}=3,8$, et donc $\left| \chi^{(2),-} / \chi^{(2),+} \right|_{\text{Fe}} \approx 0,07 \times 3,8 = 0,27$. Cette valeur, assez proche de celle obtenue par Pustogawa, est par ailleurs compatible avec les valeurs expérimentales données dans [REI91]. D'après [FRE87], il semble par ailleurs que le fait d'utiliser les moments magnétiques à l'interface plutôt qu'en volume ne change pas significativement les résultats.

En utilisant la même approche, on peut dans le cas du cobalt, et en utilisant $\mu_{\text{Co}}/\mu_{\text{Ni}} = 3,1$, estimer le rapport: $|\chi^{(2),-}/\chi^{(2),+}|_{\text{Co}} \approx 0,22$.

Il importe de noter que ces estimations ont été réalisées à une longueur d'onde d'excitation donnée de 532 nm. En première approche, elles sont cependant suffisantes pour estimer l'amplitude des effets attendus dans notre cas (longueur d'onde d'excitation 800 nm).

Dans certains travaux [PUS93, HUB89, HUB98], Hübner *et al.* présentent des calculs *ab initio* des spectres magnéto-optiques linéaires et non-linéaires du fer et du nickel. Le spectre donné dans [HUB90] pour le nickel, présenté sur la figure (2.7), permet ainsi de vérifier que les ordres de grandeur restent les mêmes aux longueurs d'ondes de 532 nm (2,33 eV) et 800 nm (1,55 eV).

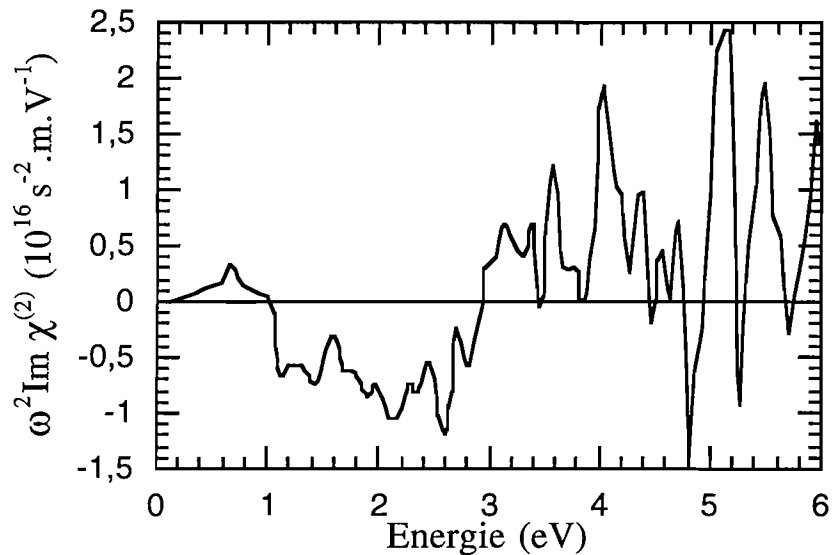


Figure (2.7): Susceptibilité non linéaire $\omega^2 \text{Im} \chi_{xxx}^{(2)}(\omega)$ calculée *ab initio* en fonction de la pulsation ω pour la surface du nickel ferromagnétique, l'aimantation étant transverse. Les faisceaux incidents et réfléchis sont supposés polarisés *p*. D'après W. Hübner *et al.*[HUB90].

Les théories phénoménologiques développées récemment, notamment avec les travaux de l'équipe de W. Hübner, sont une aide précieuse pour l'expérimentateur [HUB94, HUB98]. Le calcul du comportement non linéaire des métaux magnétiques à partir de théories microscopiques a quant à lui fait d'immenses progrès, grâce aux travaux des mêmes équipes, mais il est encore délicat d'établir un lien probant entre ces prédictions théoriques et les observations expérimentales. Pour reprendre l'exemple de la figure (2.7), il faut mentionner

que la mesure de propriétés non linéaires sur un spectre aussi large que celui présenté ici pose des problèmes expérimentaux considérables (entre autre parce que la mesure sur de telles surfaces non recouvertes doit s'effectuer sous ultravide). La validation expérimentale de telles prédictions ne pourra probablement être effectuée, même à l'aide de lasers largement accordables et d'Oscillateurs Paramétriques Optiques (OPO) performants, avant quelques années.

2.2.2. Ordres de grandeur expérimentaux

L'étude des effets optiques non linéaires nécessite une excitation par des champs électromagnétique très intenses, et est par là même tributaire de l'utilisation de lasers spécifiques. En effet, les éclairagements crête utilisés en optique non linéaire des interfaces sont de l'ordre du MW/cm². Il est évident que presque tous les matériaux, et a fortiori les métaux que nous étudions, seraient détruits par un laser délivrant un tel éclairagement en continu. On utilise donc des lasers fonctionnant en mode impulsif permettant d'atteindre ces éclairagements crêtes tout en maintenant la puissance moyenne sous des seuils tolérables par les matériaux étudiés. Malgré cela, les effets thermiques ne sont pas toujours négligeables.

Afin d'illustrer ceci, nous allons considérer deux types de sources laser utilisées couramment en optique non linéaire pour calculer les rendements de conversion qui leur sont associés, puis discuter des effets thermiques induits.

En réflexion sur une surface, le signal doublé en fréquence est donné dans [SHE84] pour le système d'unités CGS. En système S.I., on a l'expression (2.20), en nombre de photons par impulsion:

$$S(2\omega) = \frac{\lambda}{2h\epsilon_0^2} \frac{n_{2\omega}}{n_\omega^2} |\chi_{\text{eff}}^{(2)}|^2 I^2(\omega) AT \quad (2.20)$$

où $I(\omega)$ est l'éclairagement au fondamental, h la constante de Planck, A la surface du faisceau (où $A = \pi w_0^2$, et w_0 est le diamètre de col du faisceau au fondamental) focalisé au niveau de l'interface, et T la durée de l'impulsion. n_ω et $n_{2\omega}$ sont les indices optiques pour les pulsations ω et 2ω . $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ est ici une susceptibilité non linéaire effective de surface, incluant les facteurs de Fresnel pour la transmission et la réflexion à l'interface, au fondamental et à la fréquence double. Pour une surface métallique, on peut prendre ici $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ de l'ordre de 10^{-15} esu [SHE89], soit environ $3,7 \cdot 10^{-30}$ m.V⁻¹.

- Cas d'un laser Nd:YAG

Supposons à présent que l'on utilise un laser impulsif Nd:YAG, émettant à $1,06 \mu\text{m}$ des impulsions de durée 10 ns, avec une fréquence de répétition de 30 Hz, pour une puissance moyenne de 30 mW. Ce faisceau est focalisé en une tache de surface $A = 10^{-7} \text{ m}^2$ (donc de diamètre $w_0 = 360 \mu\text{m}$). En supposant ces impulsions temporellement rectangulaires, on a

donc un éclairement crête de $I(\omega)=10^{12} \text{ W.m}^{-2}$, ou encore une fluence crête de 10000 J.m^{-2} . D'après (2.20), on obtient alors environ 80 photons doublés en fréquence par impulsion, soit pour une fréquence de répétition de 30 Hz, 2400 photons par seconde. Une efficacité de détection de l'ordre de 5% (efficacité typique résultant de la présence de plusieurs filtres colorés, d'un analyseur, et du rendement quantique du système de détection) nous amène alors à détecter environ 120 photons par seconde. Ce signal est faible, mais reste à la portée des systèmes de détection actuels par comptage de photons, ou par CCD. Ce sont des systèmes basés sur ce type de laser, éventuellement doublé en fréquence, qui ont longtemps été à la base des observations expérimentales du doublage de fréquence aux interfaces (voir par exemple [HEI83] et [REI91]. La plupart des travaux antérieurs utilisent d'autres types de lasers).

Notons que des lasers Nd:YAG délivrant des éclairements crête de l'ordre de 100 MW et plus (au lieu de 30 mW considérés ici) sont disponibles commercialement, mais ne sauraient être utilisés ici sans dommage pour l'échantillon. En effet, nous verrons plus loin que la fluence crête (qui est le paramètre pertinent pour définir un seuil de dommage) de 10000 J.m^{-2} considérée ici est déjà une valeur extrême, de l'ordre de celle nécessaire à la fusion en surface de l'or massif.

- Cas d'un laser à saphir dopé au titane

Les progrès récents dans le domaine des lasers à impulsions ultra brèves et à haute fréquence de répétition ont révolutionné l'optique non linéaire, en augmentant considérablement les possibilités expérimentales. Les impulsions délivrées par de telles sources peuvent être d'une durée de quelques femtosecondes. Il est ainsi possible d'obtenir des éclairements crête supérieurs de plusieurs ordres de grandeur à ceux que nous venons de mentionner, pour des puissances moyennes très modérées (inférieures au Watt dans la plupart des cas). Ces sources sont commercialisées couramment, et connaissent une évolution rapide. Des oscillateurs à base de saphir dopé au titane, pompés par des lasers à solide (on parle de lasers entièrement solide, i.e. n'utilisant pas de laser à gaz) et de plus en plus compacts sont aujourd'hui disponibles.

Considérons ainsi un oscillateur Ti:saphir, délivrant des impulsions d'une durée de 100 fs centrées autour de 800 nm, avec une fréquence de répétition de 86 MHz et, comme précédemment, une puissance moyenne de 30 mW. Ce faisceau est focalisé pour obtenir sur l'interface une tache de diamètre 30 μm , soit $A=7.10^{-10} \text{ m}^2$. On a donc un éclairement crête de $5.10^{12} \text{ W.m}^{-2}$, ou encore une fluence crête de $0,5 \text{ J.m}^{-2}$. L'expression (2.20) donne alors, pour la même susceptibilité que ci-dessus ($\chi_{\text{eff}}^{(2)} \approx 3,7.10^{-30} \text{ m.V}^{-1}$), $S(2\omega) \approx 1,8.10^{-4}$ photons par impulsion en moyenne. Cette valeur est faible, mais en considérant que la fréquence de répétition du laser est de 86 MHz, on obtient un signal de $1,55.10^4$ photons par seconde (i.e. près de 800 photons détectés, avec une efficacité de détection de 5%). On

obtient donc environ *6 fois plus* de signal que précédemment, mais en soumettant l'échantillon, à puissance moyenne égale, à une *fluence crête 20000 fois moindre*.

À des fins de comparaison, on peut noter que le faisceau issu du laser Nd:YAG considéré ci-dessus, de puissance moyenne 30 mW, ne permet d'atteindre la fluence crête de $0,5 \text{ J.m}^{-2}$ que pour $A=2.10^{-3} \text{ m}^2$, c'est à dire pour un faisceau de diamètre 5 cm (cas évidemment irréaliste expérimentalement). Le nombre de photons doublé en fréquence serait alors de 0,12 par seconde. À fluence crête et puissance moyenne égale, l'utilisation d'impulsions femtosecondes permet ainsi d'obtenir un *gain de l'ordre de 130000* par rapport à l'utilisation d'impulsions nanosecondes.

Comme le montre l'expression (2.20), le nombre de photons doublés en fréquence $S(2\omega)$ est proportionnel à $I^2(\omega).A$, donc à P/A , où P est la puissance émise par le laser. Cette puissance est évidemment déterminée par les performances du laser utilisé. En pratique, $S(2\omega)$ est donc limité par le paramètre A . Il serait théoriquement possible de focaliser un faisceau jusqu'à des diamètres de l'ordre du micromètre, mais trois raisons nous obligent à nous limiter à des diamètres de l'ordre de 20 à 100 μm :

- en l'absence d'une précompensation appropriée de la dispersion, il importe de minimiser l'épaisseur des optiques traversées par le faisceau à la fréquence fondamentale: la dispersion y provoque un allongement de la durée des impulsions, donc une diminution de la puissance crête. Les optiques destinées à travailler au fondamental doivent si possible obéir à un critère de simplicité,
- dans la géométrie que nous avons choisie (réflexion à 45°), il est délicat d'approcher de l'échantillon une optique (dont le diamètre est au moins de l'ordre du cm) à moins de quelques millimètres. Ceci est difficilement compatible avec une focalisation aiguë,
- comme nous venons de le voir, l'utilisation d'impulsion ultrabrèves permet d'obtenir des rendements élevés tout en réduisant la fluence crête à laquelle est soumis l'échantillon. Les effets thermiques suscités ne sont pas pour autant négligeables. La taille du faisceau focalisé ne pourra être réduite au delà d'un certain seuil sans affecter notablement les propriétés de l'échantillon, voire le détruire.

Nous allons donc examiner ces effets thermiques afin de déterminer dans quelles mesure ils peuvent s'avérer limitants.

2.3. Étude des effets thermiques

Les seuils de dommage dépendent fortement de la nature des matériaux, de la longueur d'onde, et de la durée des impulsions. En particulier, les données et les travaux concernant les dommages causés par des impulsions femtosecondes sont assez rares, et les mesures directes des paramètres associés délicates. Les résultats qui suivent sont donc à considérer comme des ordres de grandeur. Dans les diélectriques, c'est essentiellement le phénomène de claquage qui est à la source des dommages causés par des impulsions ultrabrèves [STU96].

Dans les métaux, ce sont plutôt les phénomènes thermiques qui sont sources de dégâts. Globalement, on peut distinguer deux types de risques de destruction ou d'endommagement pour l'échantillon:

- les impulsions lumineuses que nous utilisons sont, nous l'avons vu, extrêmement brèves et intenses, soumettant l'échantillon à des phénomènes thermiques violents et rapides. Il est donc nécessaire d'examiner le risque de dommages causés sur des échelles de temps brèves. De tels dégâts ne peuvent être caractérisés expérimentalement qu'à l'aide de techniques donnant accès à la résolution temporelle. Ne disposant pas d'un tel montage (qui sortirait du cadre de ce travail), il importe de pouvoir évaluer ces risques le plus précisément possible de manière théorique,
- un second risque est lié à des phénomènes thermiques se produisant sur des échelles de temps beaucoup plus longues, liés à la diffusion thermique dans le matériau, à la puissance moyenne du laser, ou à d'éventuels effets de cumul sur plusieurs impulsions. Ces phénomènes dépendent fortement de l'échantillon considéré. Leur cinétique plus lente les rend par contre éventuellement observables expérimentalement à l'aide de notre système.

2.3.1 Modélisation des effets thermiques rapides.

Le but de ce paragraphe est dans un premier temps de montrer qu'une approche simpliste considérant une impulsion unique et une transmission instantanée de l'énergie au réseau cristallin n'est pas suffisante. Il est alors nécessaire de dissocier la température électronique et la température du réseau cristallin, pour utiliser un modèle dit «à deux températures» [ANI75]. Ce modèle va nous permettre, moyennant certaines approximations, d'évaluer l'accroissement de la température électronique dans l'échantillon en fonction du temps et de la profondeur dans celui-ci. La modélisation complète d'un échantillon comportant plusieurs couches ultraminces est plus délicate, et ne sera pas abordée ici. Nous considérons donc ici une simple surface d'or, et nous discuterons, à la fin de ce paragraphe, de l'influence (importante) de la faible épaisseur des couches.

Approche simple: transmission instantanée de l'énergie au réseau cristallin

Considérons un échantillon solide d'or soumis au faisceau issu de l'oscillateur Ti:saphir précédemment décrit. La lumière incidente sur l'échantillon est partiellement réfléchi, absorbée et transmise. L'énergie qui est absorbée par le solide est dans un premier temps stockée sous forme d'excitation électronique, puis se transmet par diffusion inélastique des électrons excités vers le réseau cristallin.

En première approximation, on peut supposer que l'énergie absorbée est instantanément transmise au réseau cristallin, et il est alors possible de calculer l'augmentation de température due à une impulsion (d'après [VOL98]):

$$\Delta T(z) = \frac{(1-R)\Psi}{\rho c} \cdot \alpha \cdot e^{-\alpha z},$$

où R est la réflectivité, α le coefficient d'absorption, ρ la densité, c la chaleur spécifique du matériau et z la profondeur (la surface étant définie par $z=0$). Comme dans le cas étudié précédemment, nous considérons une fluence crête $\Psi=0,5 \text{ J.m}^{-2}$. Dans le cas de l'or, $R=0,96$ (à $\lambda=800 \text{ nm}$), $\alpha= 6,5 \cdot 10^6 \text{ m}^{-1}$, et $\rho c= 3,5 \cdot 10^6 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$. L'accroissement de température en surface dû à une impulsion est donc $\Delta T(0)=10^{-2}\text{K}$. Cette valeur semble suffisamment faible pour écarter l'hypothèse d'une destruction par une impulsion unique.

Approche plus complète: modèle à deux températures

Cependant, les phénomènes associés à une excitation par une impulsion lumineuse ultrabrève sont plus complexes. Comme montré par Eesley [EES86], les électrons et le réseau cristallin ne sont pas en équilibre thermodynamique dans le cas d'une excitation par des impulsions lumineuses ultrabrèves.

Ainsi, l'excitation par une impulsion optique femtoseconde crée une distribution d'électrons de conduction qui n'est pas une distribution de Fermi, mais est centrée autour du niveau de Fermi. Pendant et immédiatement après l'excitation, l'énergie est redistribuée entre les électrons grâce aux collisions inélastiques entre électrons, qui se produisent avec une fréquence de l'ordre de 10^{14} s^{-1} . Il en résulte une distribution de Fermi de température $T_e \gg T_{e0}$ (T_{e0} est la température avant irradiation). En compétition avec ce processus de thermalisation, un transport balistique de l'énergie s'effectue grâce aux électrons hors d'équilibre, avec une vitesse de l'ordre de la vitesse de Fermi. Cependant, le processus de thermalisation réduit rapidement le nombre d'électrons hors équilibre, et diminue l'importance de ce transport balistique de l'énergie, que nous négligerons donc par la suite. Un régime de diffusion de l'énergie par les électrons thermalisés s'installe alors. Tous ces mécanismes contribuent donc à une diffusion rapide de l'énergie hors du volume initialement excité par l'impulsion lumineuse.

Pendant et après la thermalisation des électrons, il se produit également, mais avec une cinétique plus lente, un transfert d'énergie du gaz d'électrons chaud vers le réseau cristallin, grâce aux collisions électrons-phonons. Ce transfert résulte en un équilibre ($T_e = T_r > T_{e0}$, où T_r est la température du réseau cristallin) entre les températures des électrons et du réseau cristallin au bout de plusieurs picosecondes.

Enfin, la dernière étape de ce processus consiste en un équilibrage de la température par diffusion thermique dans le réseau cristallin. Celui-ci retrouve sa température initiale T_0 , plus une faible augmentation de température ΔT dépendant de la fluence incidente, sur une échelle de l'ordre de la microseconde. Ce phénomène, se situant sur une échelle de temps très différente, n'est pas envisagé ici. Il dépend fortement de la géométrie de l'échantillon (épaisseur de la couche, nature du substrat...).

Si l'on utilise un laser de type Nd:YAG, la durée d'impulsion (10 ns) est suffisamment grande pour permettre l'installation d'un équilibre thermique entre le réseau cristallin et les électrons. À l'opposé, si l'on utilise des impulsions ultrabrèves, le temps nécessaire au transfert est relativement grand devant la durée de l'impulsion (100 fs également). Alors qu'un modèle à une température (le même celui que nous avons utilisé plus haut en première approximation) est suffisant dans le premier cas, même pour des impulsions nanosecondes très énergétiques [HIC88], il devient nécessaire d'utiliser un modèle à deux températures lorsque l'on utilise des impulsions femtosecondes. Il s'agit dans un tel modèle de décrire le système électronique et le réseau cristallin comme deux systèmes distincts mais couplés. C'est cette dernière approche, introduite par Anisimov *et al.* [ANI75] et développée dans [COR88], que nous allons suivre ici. Ainsi, T_e et T_r étant respectivement la température électronique et la température du réseau cristallin, le transport de chaleur dans le métal est décrit par les équations:

$$\begin{cases} C_e \frac{\partial}{\partial t} T_e = \frac{\partial}{\partial z} K_e \frac{\partial}{\partial z} T_e - g(T_e - T_r) + A(z, t) \\ C_r \frac{\partial}{\partial t} T_r = g(T_e - T_r) \end{cases}, \quad (2.21)$$

où $C_e = C_e' T_e$ ($C_e' = \text{cte}$) et C_r sont les capacités thermiques volumiques respectives des électrons et du réseau cristallin et g est la constante de couplage entre les électrons et le réseau cristallin. K_e est la conductivité thermique des électrons, et peut être décrite approximativement par $K_e = K_{e0} T_e / T_r$. Enfin, $A(z, t)$ est le terme source défini par:

$$A(z, t) = \Psi(1 - R)\alpha \cdot e^{-\alpha z} q(t),$$

$$\text{et } q(t) = e^{-\left(\frac{t}{\sigma}\right)^2}$$

est le profil temporel de l'impulsion laser, supposé Gaussien. Ψ est la fluence incidente, R le coefficient de réflexion de la surface, α est le coefficient d'absorption du matériau, et le coefficient σ définit la durée des impulsions. Afin d'obtenir une solution analytique, nous allons nous intéresser à des temps t inférieurs au temps de relaxation τ_R . On estime ce temps de relaxation en considérant uniquement le deuxième terme du second membre dans (2.21): $\tau_R = C_e' T_e / g$. La chaleur diffuse alors sans être absorbée par le réseau cristallin. En considérant les deux derniers termes du deuxième membre dans (2.21) comme négligeables et T_r comme constant [COR88], on obtient la température électronique:

$$T_e^2 = (2E_{\text{abs}} / C_e') (C_e' T_r / K_{e0} \pi t)^{1/2} \exp(-C_e' T_r z^2 / 4K_{e0} t),$$

où E_{abs} est la fluence absorbée à l'interface: $E_{\text{abs}} = \Psi(1-R)q(t)$. On peut définir une longueur de diffusion:

$$z_D = (2K_{e0} t / C_e' T_r)^{1/2}, \quad (2.22)$$

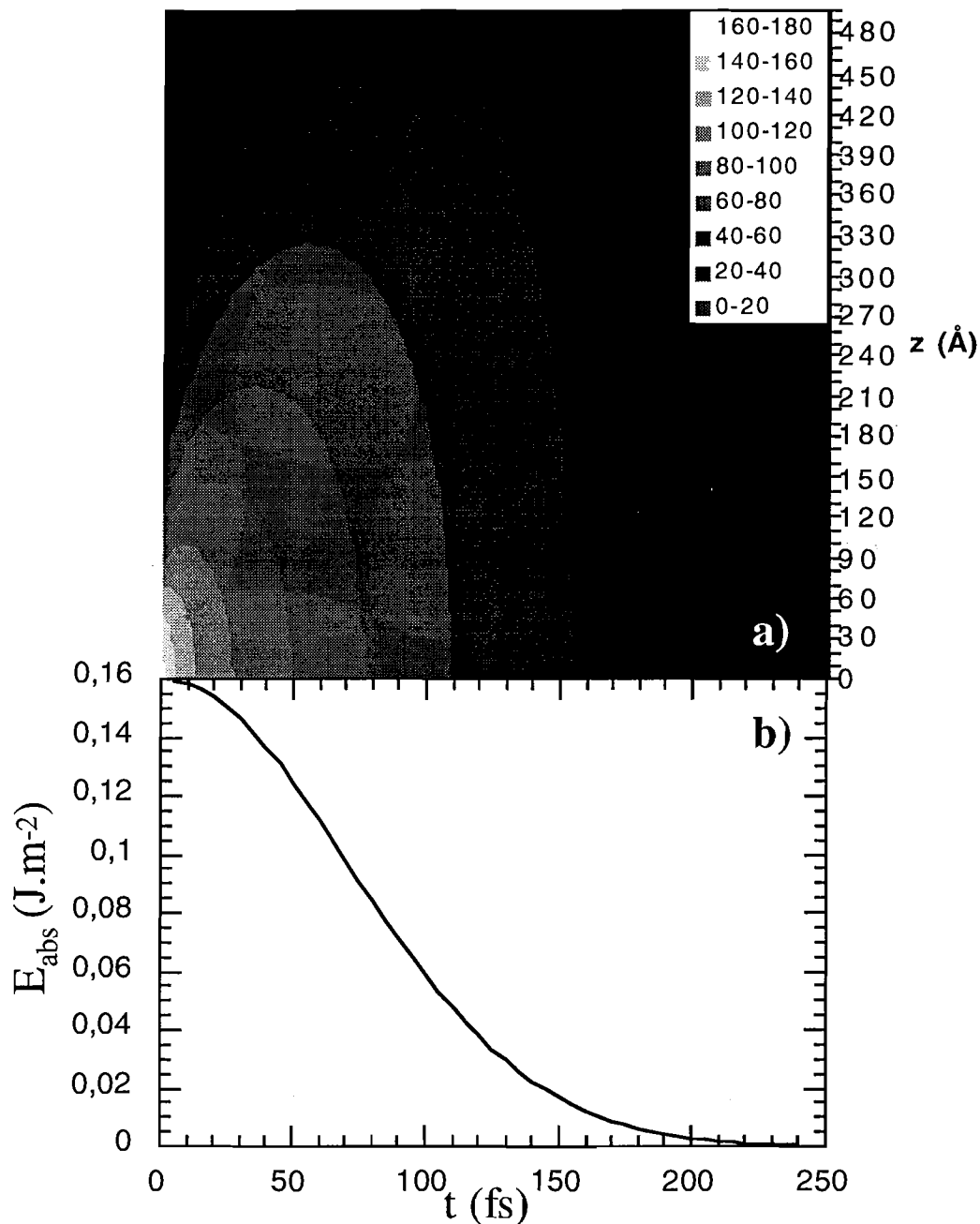


Figure (2.8): a) Évolution de la température électronique T_e (K), défini par (2.23) en fonction de la profondeur z (Å) (l'interface air/or correspond à $z=0$) et du temps ($t=0$ correspond à la crête de l'impulsion).

b) Éclairement E_{abs} absorbé à la surface air/or.

Même si l'échauffement du réseau cristallin dû à une impulsion unique est négligeable, les électrons subissent un échauffement de plus de 150 degrés, comme le montre la figure (2.8). Cet accroissement de température n'est pas suffisant pour endommager l'échantillon, mais

peut en modifier les propriétés physiques comme l'indice optique ou le tenseur $\chi^{(2)}$. Ces effets sont l'objet de nombreuses études, notamment à l'aide de techniques résolues en temps [BEA96, HOH98].

Pour obtenir l'équation (2.21), nous avons supposé $t < \tau_R$. On peut alors définir la profondeur de déposition de la chaleur z_R comme la longueur de diffusion z_D (2.22), pour $t = \tau_R$. En substituant à T_e l'expression (2.23), on obtient:

$$z_R = \left(\sqrt{\frac{128}{\pi}} \frac{K_{e0}^2}{T_r^2 g^2} \frac{E_{abs}}{C_e} \right)^{1/5}. \quad (2.24)$$

Dès lors, on peut définir le seuil de dommage comme la fluence seuil absorbée par la surface, E_s , nécessaire à ce que la température du réseau cristallin T_r atteigne la température de fusion du matériau T_{rf} , et on a:

$$E_s \approx C_r (T_{rf} - T_{r0}) z_R. \quad (2.25)$$

En prenant (2.25) et (2.26), avec $E_{abs} = E_s$ et $T_r = T_{rf}$, on obtient:

$$E_s \approx \left(\frac{128}{\pi} \right)^{1/8} \left(\frac{K_{e0}^2}{T_{rf}^2 g^2} \frac{C_r^5 (T_{rf} - T_{r0})^5}{C_e} \right)^{1/4}. \quad (2.26)$$

En utilisant les mêmes paramètres que précédemment, pour $g \approx 1,1 \cdot 10^{16} \text{ W.m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ (d'après [VOL98]), pour une température initiale T_{e0} et une température de fusion de l'or de $T_{rf} = 1064 \text{ K}$, il est possible d'évaluer la fluence maximale *absorbée* sans dommage: $E_s \approx 1560 \text{ J.m}^{-2} = 156 \text{ mJ.cm}^{-2}$. La fluence *incidente* maximale admissible est alors $\psi_s \approx 4 \text{ J.cm}^{-2}$.

La valeur de la fluence seuil obtenue dans le cas de l'or massif est donc suffisamment élevée pour rendre tout dommage impossible: pour une puissance moyenne de 30 mW et un taux de répétition de 86 MHz, on n'atteint cette fluence crête qu'en focalisant le faisceau jusqu'à un diamètre de 0,05 μm , ce qui est évidemment impossible.

Les choses sont très différentes dans les films minces que nous avons étudiés. L'étude qui précède, menée sur de l'or massif, ne permet guère d'obtenir que des ordres de grandeur. Il faut noter que dans les films ultraminces, la constante de couplage entre électrons et phonons g que nous avons utilisée plus haut dépend de l'épaisseur de la couche. Les travaux théoriques récents de A. Melikyan [MEL99] concluent ainsi à une dépendance de la forme $g \approx g_0 (1 - e^{-L/\Lambda})$, où g_0 est la constante de couplage de l'or massif et $\Lambda = 30 \text{ nm}$. Ainsi, une augmentation de l'épaisseur du film implique une augmentation de g . Lorsque le substrat est un meilleur conducteur thermique que la couche, ceci se traduit d'après (2.26) par une diminution du seuil de dommage avec l'épaisseur du film. Ceci est cependant rarement le cas en pratique, les couches métalliques minces étant souvent déposées sur des substrats isolants: verre, Al_2O_3 ou Si_3N_4 . L'effet de confinement de la chaleur dû au substrat est alors très

nettement dominant. Les couches ultra minces ont des seuils de dommages d'autant plus faibles qu'elles sont d'épaisseur faible.

Des modifications des propriétés optiques du matériau sur des échelles de temps brèves ne sont pas exclues. Cependant, l'étude que nous venons de mener nous permet d'écarter sans ambiguïté toute destruction de l'échantillon par une impulsion unique, ou sur des échelles de temps courtes.

2.3.2 Les effets thermiques lents. Exemples expérimentaux.

L'échauffement du réseau cristallin est trop faible pour provoquer la destruction d'un échantillon fortement conducteur et massif, comme celui que nous venons d'étudier. Cependant, l'échauffement dans les films minces est fortement déterminée par la résistance au transfert de chaleur imposée par les interfaces, et dépend très fortement du type d'échantillon considéré [REA71] (on trouvera par ailleurs dans cette dernière référence des détails sur la modélisation de certains de ces problèmes). La géométrie de l'échantillon étant déterminante, il n'est possible en théorie d'évaluer les risques de dommage qu'en construisant un modèle spécifique à chaque échantillon.

Certaines nanostructures ou films minces déposés sur des substrats isolants ou semiconducteurs sont donc beaucoup plus vulnérables (et ce d'autant plus qu'ils sont minces) et pourront conduire à limiter la puissance incidente moyenne ou à réduire la focalisation.

Les puissances moyennes que nous utilisons étant très modérées (30mW), il est raisonnable de penser que les effets thermiques pour les échelles de temps longues sont faibles.

Expérimentalement, en utilisant le système décrit plus haut à pleine puissance, nous n'avons effectivement constaté de destruction que sur deux échantillons correspondant typiquement aux cas à risques que nous venons de définir.

Le premier concernait des couches d'or de faibles épaisseurs sur substrat de Si_3N_4 , qui est un mauvais conducteur thermique. Les dégâts infligés étaient alors visibles à l'œil nu, du fait du bon contraste qu'offrent l'or et Si_3N_4 , et pouvaient être suivis sous la forme de variations des réflectivités linéaire et non linéaire. Ce cas sera discuté plus en détail au chapitre 3. Le second cas mettait en jeu des nanoparticules de cuivre incluses dans du verre. Ces agrégats étant invisibles à l'œil comme au microscope optique, les dommages n'ont été caractérisés que par des mesures de doublage de fréquence.

Dans les deux cas, les dégradations avaient une cinétique lente (temps caractéristiques de l'ordre de la minute) qui confirme sans ambiguïté notre assertion précédente: les dégâts ne sont pas dus à l'énergie apportée par une impulsion unique, mais sont plutôt la conséquence des fréquences de répétition élevées.

Dans les deux cas également, la présence d'agrégats de taille nanométrique (comme on le verra plus loin, la couche d'or comportait, aux épaisseurs qui ont fait l'objet de dégâts

visibles, des îlots ou gouttelettes d'or de quelques dizaines de nanomètres) conduit à penser que des effets de plasmons de surface locaux ont pu contribuer à augmenter localement les champs électriques, abaissant ainsi notablement le seuil de dommage.

La figure (2.9) présente l'évolution en fonction du temps du signal doublé en fréquence que nous avons mesuré sur un échantillon de verre contenant des inclusions de cuivre de taille nanométrique. Le caractère irréversible de la diminution constatée a été mis en évidence simplement, en masquant le faisceau incident pendant 5 minutes, puis en reprenant la mesure. Le niveau du signal reste alors identique à celui mesuré avant le masquage (environ 350), et diminue à nouveau en suivant la même cinétique. La même opération, effectuée pour un masquage de 30 minutes n'a mis en évidence aucune différence de comportement.

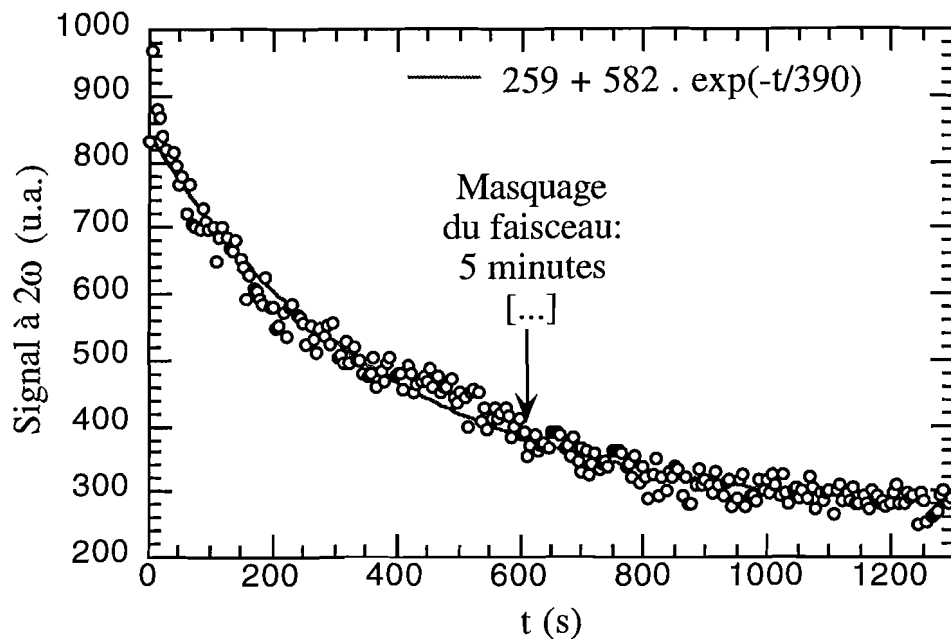


Figure (2.9): Variations avec le temps du signal doublé en fréquence réfléchi par un échantillon de verre contenant en inclusions des nanoparticules de cuivre. Les cercles indiquent les mesures expérimentales, pour une durée d'intégration du signal de 5 s par point. La ligne continue représente le meilleur ajustement obtenu, correspondant à l'équation indiquée.

Comme le montre l'ajustement effectué sur la figure (2.9), ce comportement est bien décrit par une expression du type $a+b \cdot e^{-t/\tau}$. Ici, a est non nul et représente essentiellement la contribution de l'interface air/verre, et on obtient une période de $\tau = 390 \text{ s} \pm 10 \text{ s}$.

Les effets thermiques et les dégradations causés par des impulsions ultrabrèves sur des couches métalliques ultraminces et sur les nanostructures en général constituent un sujet encore peu exploré. S'il est, nous l'avons vu, aisé de caractériser expérimentalement certains dégâts à la cinétique lente, des modifications rapides des caractéristiques physiques des métaux dus par exemple à un échauffement des électrons ne peuvent être caractérisés qu'en utilisant des techniques résolues en temps, de type "pompe-sonde" (voir [BEA96], [HOH98] et références incluses). Cependant, il n'existe à notre connaissance aucune caractérisation expérimentale systématique des seuils de dommages dus aux impulsions femtosecondes sur des couches métalliques.

Il semble raisonnable de penser, comme le montrent les seuils de dommages que nous avons évalués (et comme le supposent plus ou moins implicitement tous les auteurs utilisant ce type de sources et d'échantillons), qu'aucun dégât d'origine thermique ne se produit dans l'immense majorité des cas expérimentaux.

3. Doublage de fréquence dans les multicouches

3.1 Définition du problème

Une analyse quantitative du phénomène de doublage de fréquence dans des systèmes multicouches nécessite d'utiliser un modèle tenant compte des réflexions multiples et de leurs interférences à chacune des interfaces, et ce pour les deux pulsations présentes dans le système: ω et 2ω .

D'une part, comme le montre l'expression (2.1) $P_j(2\omega) = \chi^{(2)}_{jkl}.E_k(\omega).E_l(\omega)$, la connaissance du champ électrique fondamental $E(\omega)$ au niveau de l'interface et du tenseur susceptibilité non-linéaire permet d'évaluer la polarisation résultante, donc le champ $E(2\omega)$ engendré à la fréquence double. Il est donc nécessaire de connaître la répartition du champ électrique dans chacune des couches moyennes, pour en déduire, en respectant les conditions de continuité, le champ électrique à l'interface. Notons que le calcul de la réflectivité d'un système multicouche est très courant, mais que celui de la répartition des champs à l'intérieur d'une telle structure l'est beaucoup moins.

D'autre part, il est nécessaire de pouvoir exprimer le champ électrique $E(2\omega)$ au niveau du système de détection en fonction de celui créé à l'interface.

Nous allons donc établir les expressions régissant la propagation dans le système multicouche pour ces deux pulsations à partir d'une théorie classique basée sur les équations de Maxwell. Ce traitement a été suggéré par Bloembergen et Pershan dès 1962 [BLO62]. Plusieurs auteurs l'ont utilisé avec succès dans le cas de bicouches (voir par exemple [YEG92], qui a ainsi étudié le système ZnSe/GaAs, ou [KOO93] pour une résolution exhaustive du problème pour deux couches). Dans tous les cas, ce type de modélisation est généralement en bon accord avec les observations expérimentales, même pour des couches d'épaisseurs très inférieures à la longueur d'onde. La taille des expressions littérales obtenues lorsque l'on considère plus de trois ou quatre couches est

parfois impressionante. Les logiciels capables d'effectuer des calculs symboliques sont parfaitement adaptés à la résolution de tels problèmes, et permettent d'obtenir en quelques minutes une solution volumineuse mais exacte, directement implantable dans un programme de calcul numérique. L'un des avantages de disposer d'expressions littérales est la possibilité intéressante de remonter, en effectuant le calcul inverse, à certains paramètres du système, ce qui n'est pas directement possible lorsque le calcul est effectué numériquement (ceci est par exemple utilisé pour calculer les indices magnéto-optiques de couches minces [NYV96]).

Il est également possible d'envisager ce problème à l'aide d'un formalisme matriciel, strictement équivalent, mais qui présente l'intérêt de pouvoir être aisément étendu à un nombre quelconque d'interfaces. Ce raisonnement classique en optique a été adapté au cas du doublage de fréquence dans des multicouches magnétiques par Wierenga *et al.* [WIE95].

Dans le cadre spécifique de l'utilisation de plasmons de surface (voir au chapitre III), nous avons employé cette méthode matricielle. Cependant, nous avons utilisé essentiellement la méthode «littérale» pour la description des systèmes que nous avons eu à étudier.

Le cas littéral est exprimé ici pour un système comprenant trois couches, donc quatre dioptries et cinq matériaux distincts, correspondant au cas le plus courant dans nos expériences: un substrat (4), une couche tampon (3), une couche magnétique (2), une couche de protection (1) et le milieu ambiant (0). Notons qu'en raison de la faible longueur de cohérence de la source utilisée (les impulsions femtosecondes ont un spectre large) et de l'épaisseur du substrat (généralement de l'ordre du millimètre) il est souvent possible de négliger les interférences avec la composante réfléchie par l'interface substrat /milieu ambiant.

Nous allons nous placer dans l'approximation dipolaire (doublage en surface exclusivement), et négliger la perte d'énergie du faisceau fondamental (le rendement de doublage étant très faible, la diminution de l'énergie du faisceau fondamental due à la conversion est négligeable).

Le cas de couches métalliques peut être abordé en utilisant le même formalisme que celui utilisé pour des couches diélectriques. En effet, on peut écrire pour un métal les équations de Maxwell sous la forme :

$$\operatorname{rot} \mathbf{E} = i\omega\mu_0\mathbf{H}, \quad \operatorname{rot} \mathbf{H} = -i\omega\mathbf{E}(\epsilon + i\sigma/\omega), \quad \operatorname{div} \mathbf{D} = \rho, \quad \operatorname{div} \mathbf{B} = 0. \quad (2.27)$$

Dans le métal, où $\mathbf{D} = \epsilon\mathbf{E}$, il suffit de prendre la divergence de la deuxième équation pour établir que $\rho = 0$. Ainsi, il apparaît que les équations (2.27) sont exactement les mêmes que dans un diélectrique, pourvu que l'on prenne pour le métal une permittivité valant $\epsilon + i\sigma/\omega$.

3.2 Formulation du problème pour quatre couches

3.2.1 Calcul des champs en tout point pour la fréquence fondamentale

En l'absence de polarisation non linéaire, les équations de Maxwell permettent de déduire (voir par exemple [PET88]) l'équation de Helmholtz pour le champ électrique \mathbf{E} :

$$\Delta \mathbf{E} - \mu_0 \epsilon \omega^2 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0,$$

et en présence d'un terme de polarisation non linéaire ($\mathbf{P}=\mathbf{P}_L+\mathbf{P}_{NL}$),

$$\Delta \mathbf{E} - \mu_0 \epsilon \omega^2 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \omega^2 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2}.$$

Une des solutions de l'équation d'Helmoltz est une onde plane progressive monochromatique (de pulsation ω) s'écrivant: $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \mathbf{E}(\mathbf{r}) e^{i(-\omega t + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} + \text{c.c.}$

Nous allons à présent considérer que l'onde incidente est polarisée p (ou encore TM), c'est à dire que \mathbf{H} est suivant la direction \mathbf{y} . Il s'agit en effet de la configuration que nous avons utilisée expérimentalement dans la plupart des cas, et particulièrement lors de l'utilisation de plasmons de surface. Bien entendu, le cas s-incident met en jeu le même raisonnement.

Le système comporte 5 milieux distincts d'indices n_j numérotés de $j=0$ à 4 comme décrit par la figure (2.10), et dont deux (0 et 4) sont considérés comme semi-infinis. Pour simplifier l'analyse, nous allons ici considérer que les couches sont homogènes ($\Delta \epsilon=0$) et séparées par des interfaces parfaitement planes. Le cas d'interfaces diffuses peut se ramener à l'ajout d'une couche supplémentaire pour laquelle on adopte un indice effectif. Ceci revient néanmoins à négliger d'éventuels effets d'amplification locale des champs par la rugosité (plasmons locaux).

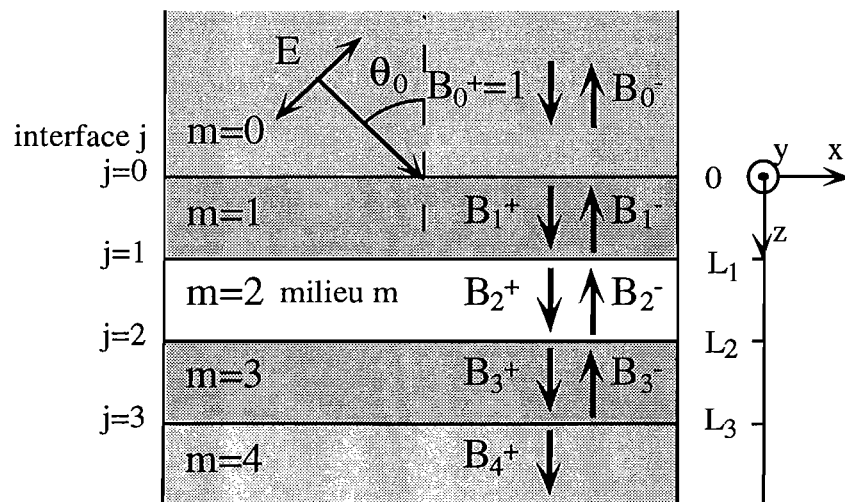


Figure 2.10: Schéma du système étudié. Définition des axes et des notations pour les grandeurs associées à la fréquence fondamentale.

Si l'on considère que le système est infini dans la direction y , et avec les axes représentés sur la figure (2.10), on peut écrire le champ \mathbf{H}_m dans la couche m sous la forme:

$$\mathbf{H}_m(\mathbf{r},t)=\mathbf{H}_m(x,z,t)=1/2.(F_m(z) \exp i(\beta k_0 x - \omega t) + \text{c.c.}).\mathbf{y}, \quad (2.28)$$

où $\beta = n_0 \sin \theta_0$ est la constante de propagation longitudinale normalisée par rapport à $k_0 = \omega/c$ (notons que tous les β_m sont égaux) et $F_m(z)$ la dépendance en z du champ dans le milieu m , que l'on peut exprimer sous la forme:

$$F_m(z) = B_m^+ e^{i\kappa_m k_0 z} + B_m^- e^{-i\kappa_m k_0 z}, \quad (2.29)$$

où $\kappa_m = n_m \cos \theta_m = \sqrt{n_m^2 - n_0^2 \sin^2 \theta_0}$ est la constante de propagation transversale dans le milieu m normalisée par rapport à k_0 . B_m^+ et B_m^- sont les amplitudes, et le signe en exposant fait référence au sens de propagation de l'onde associée (voir figure (2.10)). Pour l'onde incidente, on choisit de normaliser à 1: $B_0^+ = 1$. On notera de plus qu'il ne peut y avoir d'onde rétrograde dans le milieu 4, c'est à dire que $B_4^- = 0$.

On peut également déduire des équations de Maxwell le couplage entre les champs \mathbf{E} et \mathbf{H} :

$$E_{x,m} = \frac{-i}{\omega \epsilon_0} \frac{1}{n_m^2} \frac{\partial H_{y,m}}{\partial z}, \text{ et } E_{z,m} = \frac{i}{\omega \epsilon_0} \frac{1}{n_m^2} \frac{\partial H_{y,m}}{\partial x}. \quad (2.30)$$

La condition de continuité du champ tangentiel H_y à chacune des interfaces ($z=0, L_1, L_2, L_3$) permet alors d'écrire, en posant $W_{mj} = \kappa_m k_0 L_j$:

$$\begin{aligned} \text{en } z=0 & \quad 1 + B_0^- = B_1^+ + B_1^- \\ \text{en } z=L_1 & \quad B_1^+ e^{iW_{11}} + B_1^- e^{-iW_{11}} = B_2^+ e^{iW_{21}} + B_2^- e^{-iW_{21}} \\ \text{en } z=L_2 & \quad B_2^+ e^{iW_{22}} + B_2^- e^{-iW_{22}} = B_3^+ e^{iW_{32}} + B_3^- e^{-iW_{32}} \\ \text{en } z=L_3 & \quad B_3^+ e^{iW_{33}} + B_3^- e^{-iW_{33}} = B_4^+ e^{iW_{43}}. \end{aligned} \quad (2.31)$$

De même, la continuité du champ tangentiel E_x (obtenu d'après (2.30)) aux interfaces donne les équations:

$$\begin{aligned} \text{en } z=0 & \quad \frac{\kappa_0}{n_0^2} (1 - B_0^-) = \frac{\kappa_1}{n_1^2} (B_1^+ - B_1^-) \\ \text{en } z=L_1 & \quad \frac{\kappa_1}{n_1^2} (B_1^+ e^{iW_{11}} - B_1^- e^{-iW_{11}}) = \frac{\kappa_2}{n_2^2} (B_2^+ e^{iW_{21}} - B_2^- e^{-iW_{21}}) \\ \text{en } z=L_2 & \quad \frac{\kappa_2}{n_2^2} (B_2^+ e^{iW_{22}} - B_2^- e^{-iW_{22}}) = \frac{\kappa_3}{n_3^2} (B_3^+ e^{iW_{32}} - B_3^- e^{-iW_{32}}) \\ \text{en } z=L_3 & \quad \frac{\kappa_3}{n_3^2} (B_3^+ e^{iW_{33}} - B_3^- e^{-iW_{33}}) = \frac{\kappa_4}{n_4^2} B_4^+ e^{iW_{43}}. \end{aligned} \quad (2.32)$$

De manière plus générale, on pourra écrire ces équations sous la forme:

$$B_m^+ e^{iW_{mm}} + B_m^- e^{-iW_{mm}} = B_{m+1}^+ e^{iW_{m+1,m}} + B_{m+1}^- e^{-iW_{m+1,m}} \quad (2.31\text{bis})$$

$$\frac{\kappa_m}{n_m^2} (B_m^+ e^{iW_{mm}} - B_m^- e^{-iW_{mm}}) = \frac{\kappa_{m+1}}{n_{m+1}^2} (B_{m+1}^+ e^{iW_{m+1,m}} - B_{m+1}^- e^{-iW_{m+1,m}}), \quad (2.32\text{bis})$$

pour $j=0$ à 3, et toujours avec $W_{00}=W_{10}=0$, $B_0^+=1$ et $B_4^-=0$.

Il faut noter que ces équations sont évidemment valables quel que soit le nombre de couches considéré.

L'obtention des 8 coefficients B_j^+ et B_j^- à partir des 8 équations (2.31) et (2.32) est fastidieuse, mais ne pose aucun problème ... à un logiciel de calcul symbolique. Les solutions exactes sont trop volumineuses pour être exposées ici. En fait, le calcul de B_0^- suffit, les autres coefficients pouvant être déduits successivement à l'aide des relations simples suivantes:

$$B_{m+1}^+ = \frac{1}{2} e^{-iW_{m+1,m}} \left((B_m^+ e^{iW_{mm}} + B_m^- e^{-iW_{mm}}) + \frac{\kappa_m \cdot n_{m+1}^2}{n_m^2 \cdot \kappa_{m+1}} (B_m^+ e^{iW_{mm}} - B_m^- e^{-iW_{mm}}) \right)$$

$$B_{m+1}^- = \frac{1}{2} e^{iW_{m+1,m}} \left((B_m^+ e^{iW_{mm}} + B_m^- e^{-iW_{mm}}) - \frac{\kappa_m \cdot n_{m+1}^2}{n_m^2 \cdot \kappa_{m+1}} (B_m^+ e^{iW_{mm}} - B_m^- e^{-iW_{mm}}) \right).$$

Nous disposons à présent des coefficients B_m^+ et B_m^- , donc, grâce aux équations (2.28), (2.29) et (2.30), des champs \mathbf{E} et \mathbf{H} en tout point du système. En particulier, les dépendances en z du champ \mathbf{E} suivant les directions \mathbf{x} et \mathbf{z} s'expriment sous la forme:

$$E_{x,m}(z) = \frac{k_o}{2\omega\epsilon_o} \frac{\kappa_m}{n_m^2} (B_m^+ e^{i\kappa_m k_o z} - B_m^- e^{-i\kappa_m k_o z}), \quad (2.33)$$

$$E_{z,m}(z) = \frac{-k_o \beta}{2\omega\epsilon_o} \frac{1}{n_m^2} (B_m^+ e^{i\kappa_m k_o z} + B_m^- e^{-i\kappa_m k_o z}), \quad (2.34)$$

toujours avec $B_0^+=1$ et $B_4^-=0$.

Répartition des champs électriques: exemple d'une structure Au/Co/Au

Les relations (2.33) et (2.34) permettent de donner l'allure du champ électrique à la pulsation fondamentale dans un système multicouche. Nous considérerons ici une structure classique: un tricouche Au/Co/Au déposé sur substrat de verre, avec des épaisseurs de l'ordre de celles que nous avons rencontrées expérimentalement. Une couche d'or tampon de 200Å, une couche de cobalt d'épaisseur 30Å, et une couche d'or de couverture de 30Å également. Ce système, représenté à l'échelle sur la figure (2.11), est éclairé par la couche d'or la plus fine (c'est à dire par la gauche sur le schéma).

Conformément à nos hypothèses, on peut remarquer que la composante E_x est continue, tandis que E_z ne l'est pas. Le saut subi par cette composante à la traversée d'une interface dépend fortement du saut d'indice (complexe). Ainsi, l'indice complexe de l'or étant à 800 nm de l'ordre de $0,19+5,23i$ [JOH72], le saut est très important à l'interface air/Au. Les indices de l'or et du cobalt étant plus proches ($2,45+4,79i$ à 800 nm, *ibid.*), le saut de $|E_z|$ est relativement faible à l'interface Au/Co.

Globalement, on remarque également une décroissance très rapide des champs électriques dans ces couches métalliques fortement absorbantes.

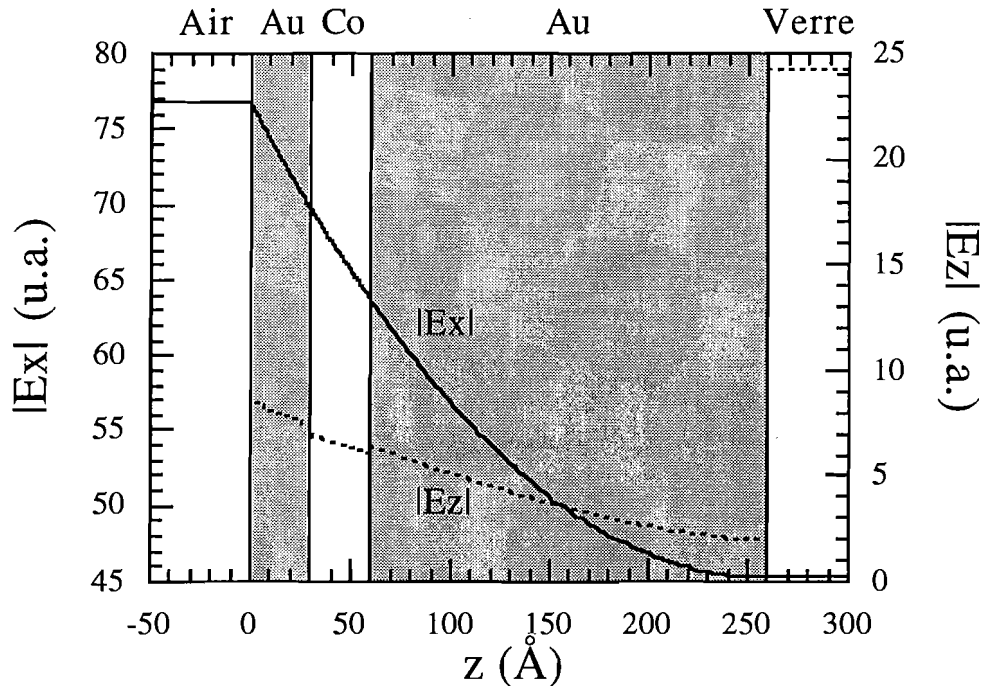


Figure (2.11): répartition du module des composantes E_x et E_z du champ électrique dans un système Au/Co/Au/verre éclairé par un faisceau polarisé p, sous une incidence de 45° , à $\lambda=800\text{nm}$. Noter les échelles différentes pour E_x et E_z . Dans l'air, $|E_z|$ (hors échelle) vaut environ 250 (u.a.).

3.2.2 calcul des termes sources à l'interface j

Afin de calculer la polarisation non linéaire à chaque interface, nous avons besoin d'injecter dans l'équation $P_j(2\omega) = \chi^{(2)}_{jkl} E_k(\omega) E_l(\omega)$ (où j, k et l prennent les valeurs x, y et z) les valeurs des champs électriques aux interfaces. Or, nous l'avons vu, E_x est continu aux interfaces, mais E_z ne l'est pas.

En toute rigueur, une intégration des champs électriques de chaque côté de l'interface s'impose pour obtenir une valeur fiable du champ à utiliser ici. Cette idée est à la base de la méthode utilisant des fonctions de Green que nous exposerons au chapitre suivant, dans le cas où l'on utilise des plasmons de surface.

Dans le cas présent, nous supposons que les variations des champs longitudinaux aux interfaces sont suffisamment douces pour utiliser comme valeur la moyenne des champs électriques de chaque côté de l'interface. Cette hypothèse s'applique bien aux interfaces entre métaux, en particulier l'or et le cobalt où le saut d'indice est, nous l'avons vu, assez faible. En $z=L_j$, on prendra donc pour E_z :

$$E_z(L_j) = \frac{-k_o \beta}{4\omega \epsilon_o} \left(\frac{1}{n_j^2} (B_j^+ e^{i\kappa_j k_o L_j} + B_j^- e^{-i\kappa_j k_o L_j}) + \frac{1}{n_{j+1}^2} (B_{j+1}^+ e^{i\kappa_{j+1} k_o L_j} + B_{j+1}^- e^{-i\kappa_{j+1} k_o L_j}) \right). \quad (2.35)$$

E_x étant continu, on prendra indifféremment la valeur $E_{x,j}(L_j)$ ou $E_{x,j+1}(L_j)$ donnée par (2.33).

On a alors, toujours pour un faisceau incident polarisé p , la polarisation non linéaire à

$$\text{l'interface (en notation de Voigt):} \quad P^{(2\omega)}(L_j) = \chi_j^{(2)} \begin{pmatrix} E_x^2(L_j) \\ 0 \\ E_z^2(L_j) \\ 0 \\ 2E_x(L_j)E_z(L_j) \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (2.36)$$

où $\chi_j^{(2)}$ est le tenseur associé à l'interface j . Si l'on considère par exemple une interface entre matériaux non magnétiques, à laquelle est associé un tenseur dont la forme est

$$\text{donnée par la table (2.1), on a: } P^{(2\omega)}(L_j) = \begin{pmatrix} 2\chi_{j,xxx} E_x(L_j)E_z(L_j) \\ 0 \\ \chi_{j,zxx} E_x^2(L_j) + \chi_{j,zzz} E_z^2(L_j) \end{pmatrix}. \quad (2.37)$$

Chaque interface non magnétique introduit alors trois coefficients complexes. De la même manière, chaque interface magnétique introduit, en configuration longitudinale, deux coefficients supplémentaires (χ_{yxx} et χ_{yzz} , impairs en aimantation), soit cinq coefficients complexes.

Les termes sources $P^{(2\omega)}(L_j)$ étant connus pour chaque interface, il est possible de calculer le champ électrique engendré à la fréquence double à chacune des interfaces. En première approximation, on peut négliger réflexions multiples et interférences du faisceau doublé en fréquence. Il suffit alors d'additionner les contributions de chacune des interfaces, en tenant compte toutefois de l'absorption dans les couches, pour obtenir rapidement une bonne estimation du signal doublé en fréquence.

Cependant, une résolution plus rigoureuse implique l'utilisation pour la fréquence double d'un modèle similaire à celui que nous venons d'établir.

3.2.3 Calcul des champs à 2ω en tout point pour la polarisation p

Les termes sources que nous venons d'exprimer dans le cas d'une interface non magnétique (2.37) indiquent bien que l'onde engendrée à la fréquence double est polarisée suivant les directions x et z , c'est à dire p . Cependant, dans le cas d'une interface magnétique, des contributions polarisées s sont également générées, et il est alors nécessaire de traiter parallèlement les deux configurations de polarisation. Ces calculs étant très similaires, nous présentons ici essentiellement le cas d'une onde à la fréquence double polarisée p .

Conditions de continuité

Les conditions de continuité à la traversée d'une interface polarisée non linéairement ont été établies par T.F. Heinz [HEI82]. Une démonstration détaillée de ces relations est donnée dans l'appendice A.

La conséquence principale en est que, contrairement au cas «classique», les composantes de $\mathbf{D}^{(2\omega)}$, $\mathbf{E}^{(2\omega)}$ et $\mathbf{H}^{(2\omega)}$ à la pulsation 2ω ne varient plus continûment (à l'échelle macroscopique) à la traversée de l'interface. Les expressions des sauts subis à la traversée d'une interface par chacune des composantes de ces champs sont données dans l'appendice A. En particulier, on a pour les composantes tangentielles H_y et E_x , à la traversée de l'interface j , les sauts:

$$\Delta H_{y,j}^{(2\omega)} = 2i\omega P_x^{(2\omega)}(L_j) \tag{2.38}$$

$$\Delta E_{x,j}^{(2\omega)} = \frac{-i}{\epsilon_j^{int.}(2\omega)} k_x(2\omega) P_z^{(2\omega)}(L_j), \tag{2.39}$$

où $k_x(2\omega)$ est la composante suivant x du vecteur d'onde $\mathbf{k}(2\omega)$ à la pulsation 2ω et $\epsilon_j^{int.}(2\omega)$ la permittivité de l'interface j . Cette permittivité est a priori inconnue, mais on peut supposer qu'elle a une valeur proche de la valeur moyenne des permittivités des deux milieux mitoyens. Quoi qu'il en soit, sa valeur exacte a peu d'importance dans la mesure ou elle peut être assimilée à un simple facteur d'échelle dans le tenseur non linéaire (pour plus de détails à ce sujet, voir [KOO93]).

Expressions des champs en polarisation p

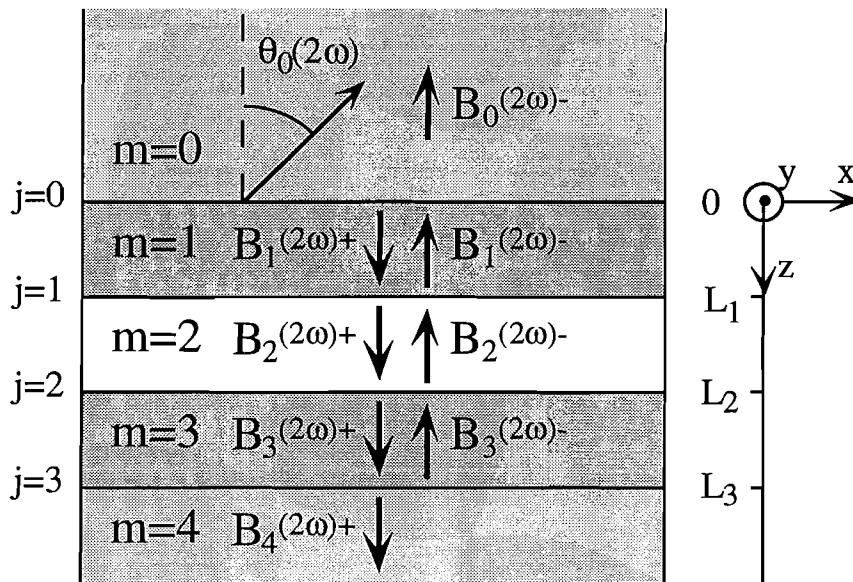


Figure 2.12: Schéma du système étudié. Définition des axes et des notations pour les grandeurs associées à la fréquence double.

Afin de bien distinguer les grandeurs relatives aux pulsations ω et 2ω , nous notons (voir Figure (2.12)) $B_m^{(2\omega)+}$ et $B_m^{(2\omega)-}$ les amplitudes des ondes respectivement progressive et rétrograde dans le milieu m , et $W_{ij}^{(2\omega)} = \kappa_i^{(2\omega)} k_o L_j$. La relation de Snell Descartes généralisée permet d'écrire, pour un faisceau à ω dans un milieu m , sous une incidence $\theta_m(\omega)$, générant (en réflexion ou en transmission) un faisceau à 2ω dans le milieu n : $n_m(2\omega) \cdot \sin \theta_m(2\omega) = n_n(\omega) \cdot \sin \theta_n(\omega)$. On a donc, comme précédemment:

$\kappa_m^{(2\omega)} = n_m(2\omega) \cos \theta_m(2\omega) = \sqrt{n_m(2\omega)^2 (1 - \sin^2 \theta_m(2\omega))} = \sqrt{n_m(2\omega)^2 - n_o(\omega)^2 \sin^2 \theta_o(\omega)}$. Les valeurs de $P_x^{(2\omega)}(L_j)$ et $P_z^{(2\omega)}(L_j)$ étant données par (2.36), on peut évaluer les expressions (2.38) et (2.39) et exprimer les relations de passage, qui sont très similaires à (2.31) et (2.32). Il suffit en effet d'ajouter $2\Delta H_{y,j}^{(2\omega)}$ (le facteur 2 est une conséquence de notre définition des champs (2.28)) au premier terme des équation (2.31) et $2i\omega\epsilon_0\Delta E_{x,j}^{(2\omega)}$ dans les équations (2.32). Ainsi, on obtient pour les relations de passage relatives à H_y , pour l'interface j ($z=L_j$, avec $j=0$ à 3):

$$B_j^{(2\omega)+} e^{iW_{jj}^{(2\omega)}} + B_j^{(2\omega)-} e^{-iW_{jj}^{(2\omega)}} + 2\Delta H_{y,j}^{(2\omega)} = B_{j+1}^{(2\omega)+} e^{iW_{j+1,j}^{(2\omega)}} + B_{j+1}^{(2\omega)-} e^{-iW_{j+1,j}^{(2\omega)}}, \quad (2.40)$$

et pour la composante E_z :

$$\frac{\kappa_j^{(2\omega)}}{n_j(2\omega)^2} \left(B_j^{(2\omega)+} e^{iW_{jj}^{(2\omega)}} - B_j^{(2\omega)-} e^{-iW_{jj}^{(2\omega)}} \right) + 2i\omega\epsilon_0\Delta E_{z,j}^{(2\omega)} = \frac{\kappa_{j+1}^{(2\omega)}}{n_{j+1}(2\omega)^2} \left(B_{j+1}^{(2\omega)+} e^{iW_{j+1,j}^{(2\omega)}} - B_{j+1}^{(2\omega)-} e^{-iW_{j+1,j}^{(2\omega)}} \right). \quad (2.41)$$

Il faut noter que $B_0^{(2\omega)+}$ et $B_4^{(2\omega)-}$ sont nuls, puisqu'il ne peut y avoir d'onde progressive à 2ω dans le milieu 0, ni d'onde rétrograde à 2ω dans le milieu 4. On a donc à nouveau, avec (2.40) et (2.41), 8 équations dont les inconnues sont les 8 paramètres $B_m^{(2\omega)+}$ et $B_m^{(2\omega)-}$, pour $m=0$ à 4. La résolution de ce système d'équations est très similaire à celle décrite plus haut pour la pulsation ω .

A partir des amplitudes $B_m^{(2\omega)}$, il est donc possible d'exprimer les champs à la pulsation 2ω en tout point du système, en prenant pour paramètres (voir (2.36)) les éléments du tenseur susceptibilité non linéaire

3.4.4 Calcul des champs à 2ω en tout point pour la polarisation s

Conditions de continuité

Dans le cas où des termes sources existent suivant la polarisation s (champ électrique suivant la direction y), on utilise les expressions des sauts à la traversée de l'interface (appendice A):

$$\Delta H_{x,j}^{(2\omega)} = -2i\omega P_y^{(2\omega)}(L_j) \quad (2.42)$$

$$\Delta E_{y,j}^{(2\omega)} = \frac{-i}{\epsilon_j^{int}(2\omega)} k_y(2\omega) P_z^{(2\omega)}(L_j). \quad (2.43)$$

Comme précédemment, on utilise la polarisation non linéaire donnée par (2.36) pour évaluer (2.42) et (2.43).

Expressions des champs en polarisation s

Dans le cas présent, on peut exprimer le champ \mathbf{E} sous la forme (analogue à (2.28)):

$$\mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_m(x, z, t) = \mathbf{y} \cdot E_{y,m}(x, z, t) = 1/2 \cdot \mathbf{y} \cdot (G_m(z) \exp i(\beta k_0 x - \omega t) + \text{c.c.}), \text{ avec}$$

$$G_m(z) = C_m^{(2\omega)+} e^{i\kappa_m k_0 z} + C_m^{(2\omega)-} e^{-i\kappa_m k_0 z}.$$

En exprimant la «discontinuité» des composantes tangentielles $E_{y,j}^{(2\omega)}$ et $H_{x,j}^{(2\omega)}$ (c'est à dire $G_m(z)$ et $\frac{1}{\mu} \frac{\partial G_m(z)}{\partial z}$) aux interfaces à l'aide des sauts donnés par (2.42) et (2.43),

on obtient à nouveau 8 relations liant les huit coefficients $C_j^{(2\omega)+}$ et $C_j^{(2\omega)-}$. La forme de ces équations étant strictement analogue à (2.40) et (2.41), on pourra réutiliser les expressions littérales des solutions, moyennant une simple modification de la valeur des coefficients.

3.3 Le codage. Exemples de calculs.

A partir de ce qui précède, nous avons développé plusieurs programmes, capables de calculer l'amplitude de l'onde réfléchiée par un système multicouches à la pulsation fondamentale et à la pulsation double, en fonction de l'angle d'incidence sur le système ou de l'épaisseur des couches, ou encore la répartition du champ électrique à travers le système au fondamental comme à la fréquence double. Ces programmes ont été développés à l'aide du logiciel Labview, qui autorise des temps de calcul très brefs et une grande facilité d'utilisation. Concernant les calculs à la pulsation fondamentale, les programmes ont pu être validés par comparaison avec les programmes éprouvés de l'équipe de Yves Lévy, à l'Institut d'Optique. La partie concernant la fréquence double a quant à elle été comparée avec succès aux simulations simples effectuées par H.A. Wierenga [WIE95] à l'aide d'un programme utilisant la formulation matricielle. Enfin, ces programmes ont permis d'obtenir un bon accord avec les résultats expérimentaux dans le cadre de l'utilisation de plasmons de surface, comme nous le verrons plus loin.

3.3.1. Etude du doublage en fonction de l'épaisseur de l'une des couches

Dans l'exemple de calcul qui suit, nous allons utiliser une structure très simple: une couche d'or déposée sur du cobalt (supposé non magnétique). Nous allons à présent faire varier l'épaisseur de la couche supérieure d'or et étudier la réponse d'un tel échantillon à la fréquence double, pour un angle d'incidence de 45° . Pour cela, nous supposons (hypothèse simpliste mais didactique) que seul l'élément χ_{xxx} du tenseur susceptibilité est non nul. Les indices optiques sont à nouveau ceux mesurés par Johnson et Christy [JOH72], et nous supposons qu'ils changent de manière abrupte à l'interface.

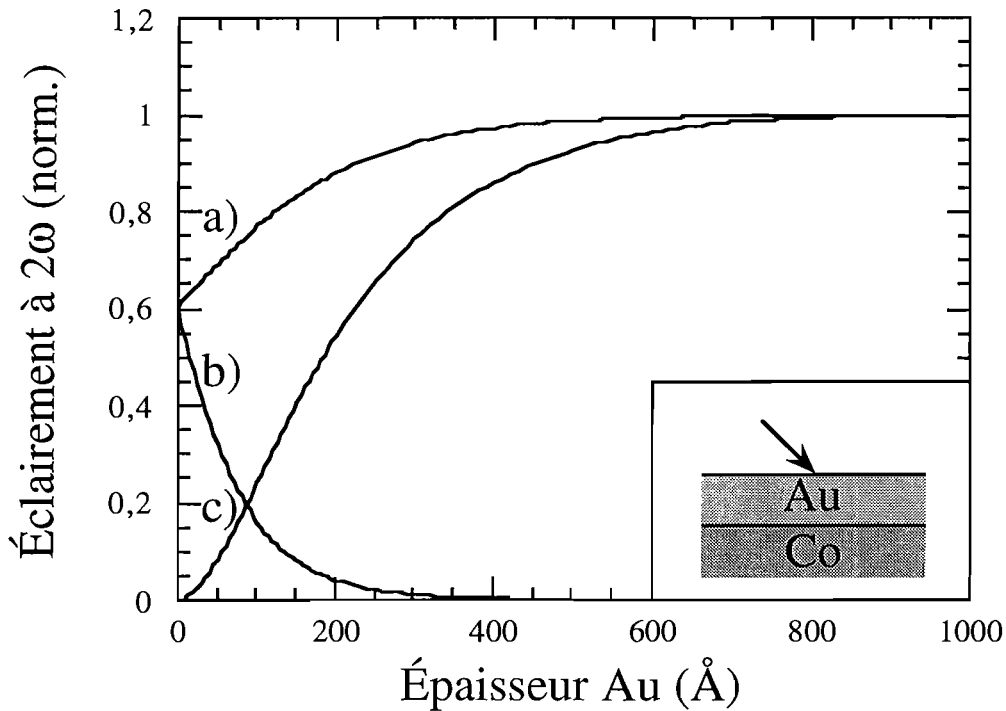


Figure (2.13): Calcul du signal doublé en fréquence émis par une couche d'or sur substrat de cobalt (schéma en insert) éclairée à $\lambda=800$ nm sous un angle d'incidence de 45° en fonction de l'épaisseur de la couche d'or. La courbe a) correspond à $\chi_{xxx}^{\text{air/Au}} = 1$ et $\chi_{xxx}^{\text{Au/Co}} = 0$, b) à $\chi_{xxx}^{\text{air/Au}} = 0$ et $\chi_{xxx}^{\text{Au/Co}} = -1$, et c) à $\chi_{xxx}^{\text{air/Au}} = 1$ et $\chi_{xxx}^{\text{Au/Co}} = -1$. Les valeurs sont normalisées par rapport à la limite des courbes a) et c) lorsque l'épaisseur d'or tend vers l'infini.

Nous allons envisager successivement trois hypothèses, correspondant respectivement aux courbes a, b et c sur la figure (2.13).

a) $\chi_{xxx}^{\text{air/Au}} = 1$ et $\chi_{xxx}^{\text{Au/Co}} = 0$. Ici, seule l'interface supérieure donne donc lieu au doublage de fréquence. La courbe a) montre que le signal dépend fortement de l'épaisseur de la couche d'or. Le doublage de fréquence dépend ici, nous l'avons vu, du champ électrique à l'interface air / or, donc à la fois de l'onde progressive et de l'onde rétrograde au niveau de l'interface. Les amplitudes de ces ondes dépendent essentiellement du saut d'indice à l'interface. Dans le cas présent, l'interface air / Co (indice $2,54+4,79i$ à 800 nm) suscite un champ à l'interface plus faible qu'une interface air / Au (indice $0,19+5,23i$ à 800 nm). On a donc un doublage de fréquence relativement faible pour 0 Å d'or, puis un accroissement du signal à la fréquence double avec l'épaisseur d'or. Pour de fortes épaisseur d'or (au delà de 600 Å), ces effets deviennent négligeables: le signal doublé

tend vers une valeur constante correspondant à la seule contribution de l'interface Au / air.

b) $\chi_{xxx}^{\text{air/Au}} = 0$ et $\chi_{xxx}^{\text{Au/Co}} = -1$. Notons tout d'abord que le choix du signe moins pour $\chi_{xxx}^{\text{Au/Co}}$ découle de la remarque faite au paragraphe 2: deux interfaces symétriques ont a priori des contributions de signes opposés. On voit ici que la contribution issue de l'interface Au/Co enterrée décroît rapidement avec l'augmentation de l'épaisseur d'or. Dans la couche d'or, on a en effet d'une part une absorption du faisceau à la fréquence fondamentale, qui conduit à un champ électrique plus faible au niveau de l'interface, et d'autre part une forte absorption du faisceau doublé en fréquence généré à l'interface. Ainsi, au delà de 500 Å d'or, le signal doublé provenant de l'interface enterrée devient inobservable.

c) $\chi_{xxx}^{\text{air/Au}} = 1$ et $\chi_{xxx}^{\text{Au/Co}} = -1$. Lorsque l'on considère simultanément l'influence des deux interfaces, le choix de signes opposés pour les susceptibilités nous permet d'observer une interférence destructive entre les deux contributions pour de faibles épaisseurs. L'épaisseur d'or croissant, l'influence de la contribution de l'interface enterrée va décroître (pour les mêmes raisons que dans le cas b)) et la courbe c) tendre vers la courbe a). Pour une très grande épaisseur d'or, les cas a) et c) sont équivalents à un simple substrat d'or, où seule est visible l'interface supérieure.

Notons cependant que cette convergence est lente. Ainsi, pour 150 Å d'or, l'éclairement provenant de l'interface enterrée (b) a décru de près de 90%, alors que l'on a encore un facteur 2 entre les valeurs d'éclairements de a) et c). Ceci découle du fait que l'on considère ici des interférences entre champs électriques (et non, évidemment, entre éclairements). L'extinction des champs électriques est plus lente que celles des éclairements, puisque $I \propto E^2$. L'influence de l'interface enterrée est donc sensible sur une large gamme d'épaisseurs: cet effet d'interférence renforce la sensibilité aux interfaces enterrées

Ces exemples nous ont permis de mettre en évidence trois faits importants:

- les sauts d'indices et les réflexions multiples à la fréquence fondamentale modifient le champ électrique au fondamental, donc les efficacités de doublage.
- les interférences entre les différentes contributions à la fréquence double conduisent également à une modification du signal à 2ω . La géométrie de l'échantillon est donc importante.
- l'absorption dans les couches détermine la profondeur à laquelle il est possible de sonder les interfaces enterrées.

3.3.2. Etude du doublage de fréquence en fonction de l'angle d'incidence

Le même programme permet de calculer le doublage de fréquence en fonction de l'angle d'incidence sur la structure. Nous allons pour cela considérer le cas le plus élémentaire: un simple substrat d'or, supposé semi infini, et ne comportant donc qu'une seule interface. Ce cas, plus simple que celui d'un bicouche Au/Co que nous venons de traiter, permet en effet une meilleure compréhension du phénomène mis en jeu. Les contributions

dues aux éléments de tenseur $\chi_{xxx}^{\text{air}/\text{Au}}$ et $\chi_{xxz}^{\text{air}/\text{Au}}$ sont successivement examinées sur les graphes de la figure (2.14).

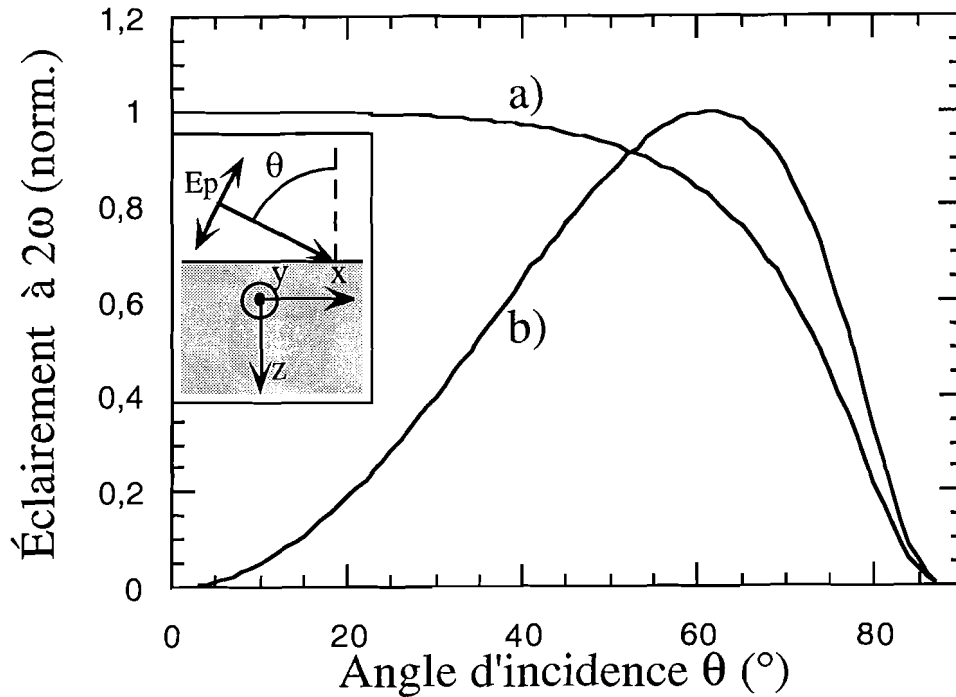


Figure (2.14): Calcul du signal à la fréquence double émis par un substrat d'or (schéma en insert) éclairé à $\lambda=800$ nm sous un angle d'incidence θ variable. La courbe a) correspond à $\chi_{xxx}^{\text{air}/\text{Au}} = 1$, b) à $\chi_{xxz}^{\text{air}/\text{Au}} = 1$, tous les autres éléments du tenseur étant supposés nuls.

La courbe a), correspondant à $\chi_{xxx}^{\text{air}/\text{Au}} = 1$, présente un maximum pour un angle d'incidence de 0° , et un minimum pour 90° . Ceci se comprend aisément si l'on considère que cet élément de tenseur intervient dans le doublage de fréquence grâce à un terme de la forme: $P_x \propto \chi_{xxx}^{\text{air}/\text{Au}} E_x^2 = \chi_{xxx}^{\text{air}/\text{Au}} E_p^2 \sin^2 \theta$. En $\theta=0^\circ$, le champ électrique de l'onde incidente est entièrement suivant la direction x, et la polarisation non linéaire résultante est maximale, tandis qu'elle est nulle en $\theta=90^\circ$ lorsque la composante suivant l'axe x est nulle.

La courbe b), pour $\chi_{xxz}^{\text{air}/\text{Au}} = 1$, présente deux minima à 0° et 90° , et un maximum vers 60° . À nouveau, on peut rapprocher ce comportement de celui de la polarisation non linéaire: $P_x \propto \chi_{xxz}^{\text{air}/\text{Au}} E_x E_z = \chi_{xxz}^{\text{air}/\text{Au}} E_p^2 \sin \theta \cos \theta$

Dans le cas limite où le substrat a un indice de 1, les courbes a) et b) ont respectivement un comportement du type $\sin^2 \theta$ et $\sin 2\theta$, et la courbe b) a un maximum pour $\theta=45^\circ$.

Dans le cas où l'on considère un matériau d'indice différent de 1 (donc un saut d'indice), ce qui est le cas ici, le champ électrique à l'interface se trouve modifié, ainsi que la réponse de l'échantillon en fonction de l'angle d'incidence.

Une telle étude permet donc de sonder divers éléments du tenseur susceptibilité. Il est ainsi possible de prendre ces éléments de tenseur pour paramètres et d'en obtenir la valeur par un ajustement du doublage de fréquence calculé en fonction de l'angle d'incidence. Un choix judicieux de la configuration de polarisation permet alors de minimiser le nombre d'éléments de tenseur entrant en jeu, et d'obtenir leur valeur expérimentale de manière relativement précise.

L'étude qui précède permet également de vérifier que la configuration où $\theta=45^\circ$ permet d'être dans tous les cas proche de la configuration optimale, pourvu que l'indice optique du matériau n'ait pas une valeur trop élevée. C'est donc la configuration expérimentale que nous adopterons par la suite.

Chapitre III

Montage et résultats expérimentaux

Nous venons d'expliciter les justifications théoriques et les spécificités du doublage de fréquence. Dans le chapitre qui va suivre, nous allons détailler les modalités expérimentales d'utilisation et les principales possibilités de trois configurations: les mesures simples en réflexion, l'utilisation de plasmons de surface et l'imagerie d'interface.

Les premières mesures des effets de l'aimantation sur le doublage de fréquence sont, nous l'avons vu au chapitre I, très récentes. Les montages que nous avons réalisés sont donc relativement novateurs. Pour chacun d'eux, nous nous efforcerons donc dans un premier temps de décrire le système que nous avons réalisé, puis d'en valider le concept à l'aide de résultats expérimentaux

1. Configuration expérimentale en réflexion

1.1. Principes

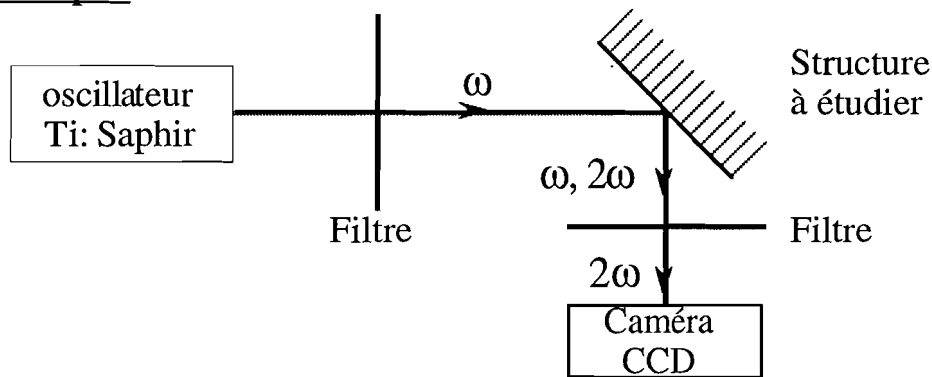


Figure (3.1): Schéma de principe

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, le doublage de fréquence se caractérise par des rendements de conversion extrêmement faibles. Il est donc nécessaire d'utiliser d'une part une source appropriée délivrant des impulsions ultra-brèves afin d'augmenter autant que possible ces rendements de conversion sans pour autant endommager l'échantillon par chauffage. D'autre part, un filtrage extrêmement efficace est nécessaire à une élimination aussi poussée que possible du faisceau non doublé en fréquence, qui conserve évidemment la quasi totalité de son énergie initiale et est colinéaire au faisceau doublé. Enfin, il faut disposer d'un système de détection très performant, à faible bruit, et autorisant de longues durées d'intégration. Ces trois éléments qui sont la source, le filtrage, et le détecteur constituent l'ossature de notre système, et vont en déterminer les performances. Notre objectif est ici de réaliser un système capable de mesurer un signal doublé en fréquence y compris dans les hypothèses les plus pessimistes, c'est à dire pour des rendements de doublage $P_{2\omega}/P_{\omega}$ aussi faibles que 10^{-17} .

1.1.1. L'oscillateur Ti:Saphir

C'est un oscillateur basé sur l'utilisation d'un cristal de saphir dopé au titane (Ti:saphir) qui, à l'heure actuelle, remplit le mieux la fonction de source pour notre application. Cet oscillateur, qui a été réalisé à l'Institut d'Optique, est pompé par un laser commercial continu à Argon.

Le cristal de Ti:saphir a en effet un spectre d'émission très large, ce qui est un pré-requis indispensable à la génération d'impulsions ultrabrèves (par transformée de Fourier, le spectre d'une impulsion est d'autant plus large que sa durée est courte). De ce fait, l'oscillateur basé sur ce cristal est ajustable en longueur d'onde sur une gamme allant de 700 à 1020 nm. L'utilisation d'une plage de longueurs d'ondes aussi large nécessite cependant de changer certaines des optiques, et nous n'avons pas exploité en pratique l'accordabilité de la source dans ce travail.

Le schéma de l'oscillateur est donné à la figure (3.2). Le principe de fonctionnement du laser repose essentiellement sur le verrouillage de mode par lentille de Kerr. Lorsque le laser est en mode pulsé, il se produit au sein même du barreau de Ti:saphir de l'autofocalisation par effet Kerr. En un point choisi de la cavité, cette autofocalisation se traduit par une diminution de la section du faisceau. Au contraire, si le laser est en mode continu, ce phénomène non linéaire d'autofocalisation ne peut avoir lieu, et la section du faisceau est plus importante. En insérant une fente de largeur réglable sur le trajet du faisceau, il est ainsi possible d'introduire des pertes sur le mode continu sans modifier le mode pulsé, et donc de favoriser ce dernier mode de fonctionnement (voir insert à droite de la figure (3.2)).

Le mode de fonctionnement pulsé est obtenu grâce à un système créant une perturbation dans la cavité à l'aide d'un miroir monté sur pot vibrant. Ce dispositif simple permet d'initier le fonctionnement en mode pulsé et verrouillé.

Le cristal de Ti: saphir, ainsi que les éléments optiques de la cavité, ont une dispersion de vitesse de groupe positive (le rouge s'y propage plus vite que le bleu). Ce phénomène contribue à détériorer la qualité (principalement par un élargissement temporel) du faisceau. Il est compensé à l'aide d'une séquence de prismes insérés dans la cavité et permettant d'introduire une dispersion de vitesse de groupe négative. Les éléments optiques du système situés en aval de l'oscillateur donnent également lieu à ce phénomène de dispersion. Il est possible grâce aux prismes situés dans la cavité de pré-compenser cette dispersion afin d'obtenir une impulsion de durée optimale en un point donné de ce système.

À la sortie de l'oscillateur, on peut ainsi obtenir un faisceau d'une puissance moyenne de 100 mW environ (dont nous utiliserons 30 mW pour notre application) et de longueur d'onde centrée autour de 800 nm. La durée des impulsions est de 100 fs environ, et leur fréquence de répétition est de 86 MHz.

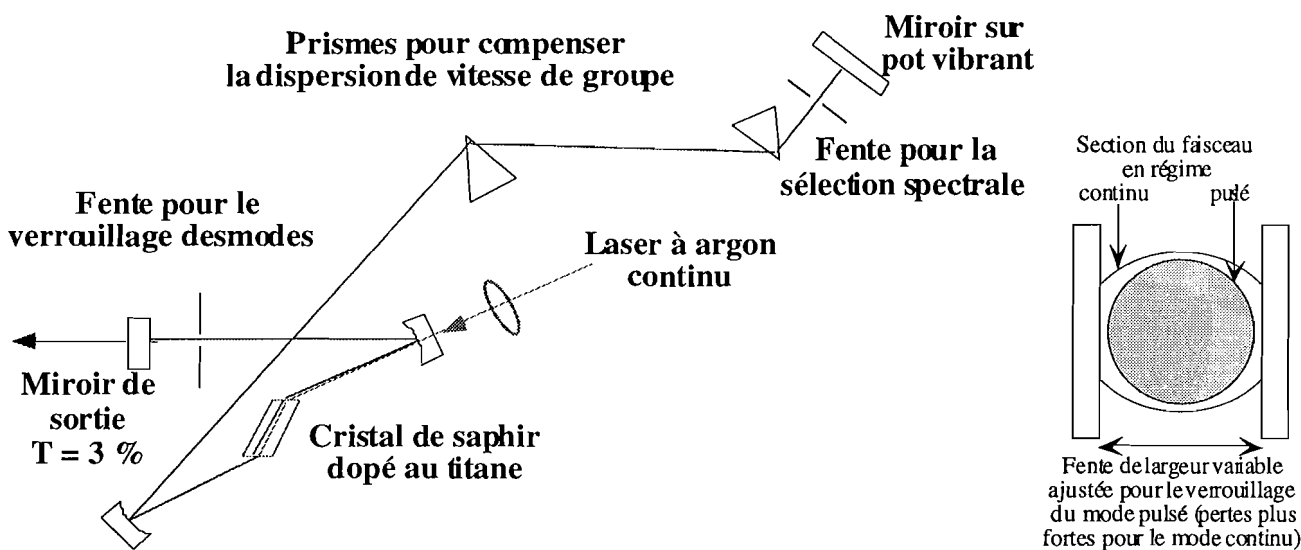


Figure (3.2): Schéma de l'oscillateur à saphir dopé au titane. À droite, un schéma décrivant le principe du verrouillage de mode par lentille de Kerr.

Nous l'avons vu, les impulsions issues de l'oscillateur, et donc également les impulsions à la fréquence double, ont un spectre relativement large. Par souci de simplification, nous mentionnerons simplement dans tout ce qui suit les longueurs d'ondes autour desquelles sont centrées ces impulsions: 800 nm et 400 nm.

1.1.2. Les filtrages

Comme on peut le voir sur la figure (3.1), deux types de filtrages successifs sont nécessaires au bon fonctionnement du montage. Le premier permet de s'assurer que le faisceau envoyé sur l'échantillon ne contient que la pulsation fondamentale ω . Le second permet d'absorber considérablement le faisceau à ω afin de ne mesurer que la composante à 2ω .

Filtrage du faisceau fondamental

Les éclairissements crêtes délivrés par le faisceau issu de l'oscillateur Ti: saphir, même non focalisé, autorisent un doublage de fréquence à la surface des optiques, la génération d'harmoniques supérieurs dans leur volume, et éventuellement d'autres phénomènes comme la fluorescence. Il importe donc d'éliminer ces longueurs d'ondes (inférieures à la longueur d'onde fondamentale) afin de s'assurer que le signal doublé en fréquence que l'on mesure provient exclusivement de l'échantillon. Il faut pour cela ramener ces contributions parasites à au moins un ordre de grandeur en dessous du plus faible signal que l'on compte détecter, c'est à dire $10^{-17} P_\omega$.

Ce filtrage doit donc être efficace tout en minimisant les pertes d'énergie du faisceau fondamental. Un filtre passe haut de longueur d'onde de coupure légèrement inférieur à 800

nm doit donc convenir. Pour assurer cette fonction, notre choix s'est porté sur un filtre rouge de type RG715, et d'épaisseur 3 nm. À 400 nm, la transmission d'un tel filtre est de 10^{-7} (spécifications du constructeur). L'association de trois de ces filtres permet donc d'obtenir une atténuation de l'ordre de 10^{21} à 400 nm, ce qui permet de satisfaire largement le critère énoncé ci-dessus.

Afin de diminuer le nombre d'interfaces (les réflexions diminuent la transmission), ces trois filtres sont assemblés avec une colle appropriée. La transmission interne (c'est à dire en négligeant ces réflexions sur les faces du verre) de chacun de ces filtres à 800 nm est de l'ordre de 99 % (spécifications du constructeur). On a donc, pour un assemblage de trois filtres et en tenant compte des deux interfaces (air/verre et verre/air), une transmission à 800 nm de 89 % environ.

Filtrage du faisceau doublé en fréquence

D'autre part, il est indispensable de pouvoir éliminer très efficacement le faisceau fondamental réfléchi par l'échantillon, afin de ne recueillir sur le détecteur que le signal doublé en fréquence. En effet, notre détecteur ne permet évidemment pas de sélectionner la longueur d'onde mesurée et est beaucoup plus sensible dans le rouge qu'il ne l'est dans le bleu. De plus, les deux faisceaux sont en général quasiment colinéaires. Il importe donc de bloquer la radiation rouge dans un rapport nettement meilleur que l'efficacité de conversion la plus faible que l'on désire pouvoir observer. Ce filtrage est beaucoup plus critique que le précédent, dans la mesure où il faut absolument éviter toute perte de signal à 400 nm.

Deux possibilités s'offrent alors.

La première, qui paraît la plus évidente, est de séparer spatialement les composantes fondamentale et doublée au moyen d'un élément dispersif. Cependant, cette option est difficilement compatible avec des applications d'imagerie en raison des aberrations introduites par un prisme ou un monochromateur, et a donc été rejetée. Il faut cependant noter que certains auteurs ont utilisé un monochromateur ([FIE94],[WIE95]), mais semblent avoir aujourd'hui abandonné cette solution d'usage plutôt lourd.

La seconde est d'utiliser un jeu de filtres absorbants ou de miroirs dichroïques pour éliminer le fondamental. Afin d'optimiser le choix de ces filtres, nous avons donc mesuré les spectres d'absorption de quatre types de filtres (2 dichroïques et 2 filtres colorés), puis testé ces filtres dans une configuration de doublage de fréquence.

Les essais que nous avons effectués avec des miroirs dichroïques se sont avérés peu concluants, probablement en raison du doublage de fréquence ayant lieu aux interfaces (et/ou dans le volume) de la structure multicouche qui les constitue. Nous avons donc employé des filtres colorés Schott. Alors que des filtres BG39 sont utilisés par la plupart des équipes (voir par exemple [VOL96] et [RAS96] pour les équipes respectives de J. Kirschner et Th. Rasing), nous avons opté pour le BG40, qui présente l'avantage d'offrir une meilleure

transmission autour de 400 nm (85 % pour le BG40, 60% pour le BG39) tout en ayant une transmission comparable à 800 nm (3.10^{-6} pour le BG40, 5.10^{-7} pour le BG39), comme le montrent les spectres présentés sur la figure (3.3), pour une épaisseur de 3 mm. Ainsi, la combinaison de trois filtres BG40 permet d'atténuer le faisceau fondamental d'un facteur 3.10^{-17} , le faisceau doublé étant dans le même temps transmis à 61% (au lieu de 22% pour un BG 39).

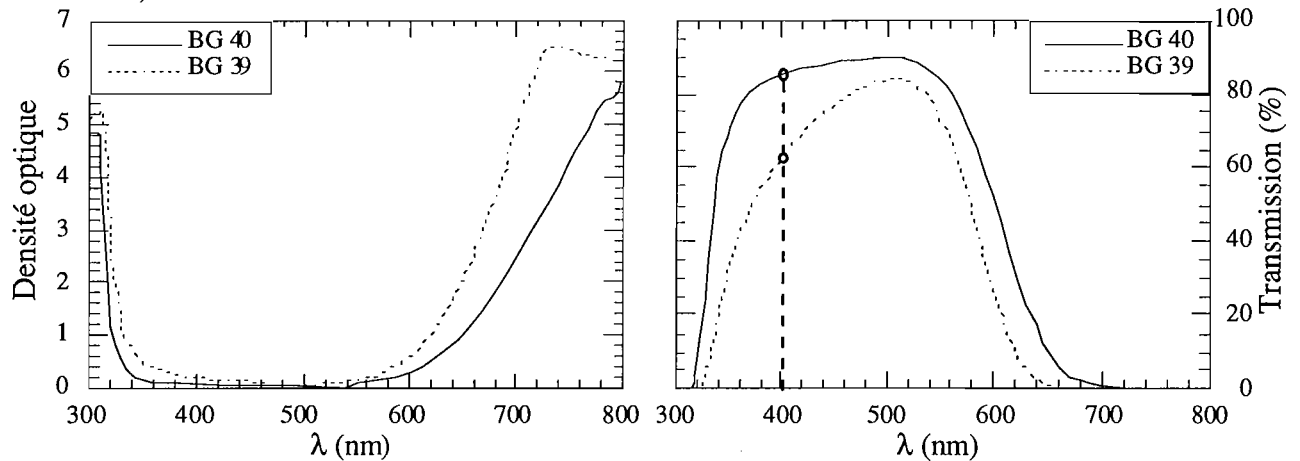


Figure (3.3): Spectres d'absorption (à gauche) et de transmission (à droite) mesurés expérimentalement sur des filtres Schott BG 39 (pointillés) et BG 40 (traits pleins) d'épaisseur 3 mm. La densité optique d (graphe de gauche) est définie par $T=10^{-d}$ (où T est le facteur de transmission).

Deux raisons nous interdisent ici d'assembler les filtres bleus BG40 comme nous l'avons fait précédemment.

D'une part, les colles optiques utilisées précédemment sont conçues pour polymériser sous rayonnement U.V., et sont donc inutilisables à 400 nm, où elles sont fortement absorbantes. D'autre part, il est nécessaire de disposer un filtre immédiatement après l'échantillon, et avant toute autre optique, afin d'éviter tout phénomène de doublage de fréquence sur les optiques qui suivent. Ce filtre doit donc être le moins encombrant possible. De plus, il est souhaitable de disposer au moins un filtre au plus près de la caméra, pour éliminer au maximum la lumière parasite. Nous avons donc dissocié ces trois filtres. Les pertes à la réflexion sur la surface de ces filtres pourraient éventuellement être diminuées à l'aide d'un revêtement anti réflexion.

1.1.3. La caméra CCD

Caractéristiques de la caméra

Le capteur de la caméra que nous utilisons est une matrice CCD (Charge Coupled Device) fabriquée par Kodak de 512x512 pixels séparés de 24 μm . Cette matrice est amincie par l'arrière, rétroéclairée, et refroidie à $-120\text{ }^\circ\text{C}$.

Le courant d'obscurité de ce type de capteur croît exponentiellement avec la température. Ainsi, autour de la température de travail typique, une augmentation de la température de $7\text{ }^\circ\text{C}$ se traduit par une augmentation du courant d'obscurité d'un facteur 2 environ. Cependant, la sensibilité du capteur décroît également avec la température. La température de $-120\text{ }^\circ\text{C}$ permet d'optimiser le rapport signal à bruit. Cette température est atteinte grâce à un réservoir d'azote liquide («dewar»), couplé à un élément à effet Peltier, ce qui nous permet de travailler à une température différente de celle de l'azote liquide. Afin d'assurer au capteur des performances constantes, sa température est régulée avec une grande précision (le constructeur spécifie une précision de $\pm 0,05\text{ }^\circ\text{C}$). L'ensemble est maintenu sous un vide intermédiaire de l'ordre de 10^{-5} torr ($\approx 1,3 \cdot 10^{-3}$ Pa), ce qui permet de limiter les pertes thermiques, d'éviter les contaminations et la condensation sur le capteur et la fenêtre de la caméra. L'autonomie de la caméra chargée en azote liquide est alors d'environ 12 heures. La face avant de la caméra est traitée antireflet pour le proche ultraviolet afin de minimiser les pertes dans cette gamme spectrale où le rendement quantique est assez faible. Le capteur est placé derrière un obturateur mécanique autorisant des expositions d'une durée de 25 ms à 23 h.

Le contrôleur de la caméra assure la régulation en température, l'alimentation, le pilotage de l'obturateur, la lecture du capteur et permet de stocker des images en attente de transfert. Il est également possible, afin d'augmenter le rapport signal à bruit, d'ajouter les données d'un nombre choisi de pixel («binning», en anglais) pour former un seul pixel (on parle parfois de super pixel). Dans le cas où les signaux sont faibles (c'est en général notre cas), l'un des bruits dominants est le bruit de lecture des pixels. L'utilisation d'une sommation électronique des valeurs des pixels *avant* leur lecture permet alors d'améliorer nettement le rapport signal à bruit (il n'y a qu'une lecture pour les n pixels). Au prix d'une diminution de la définition, on augmente ainsi linéairement le rapport signal à bruit avec le nombre de pixels associés.

La caméra et son contrôleur sont connectés à un ordinateur par l'intermédiaire d'une interface (port NuBus). Il est ainsi possible de piloter l'ensemble et d'acquérir des images de très grande dynamique, puisque chaque pixel est codé sur 16 bits (soit 65536 niveaux). Malgré cela, les temps de lecture et de transfert des images sont toujours inférieurs à quelques centaines de millisecondes, ce qui n'est jamais gênant pour nos applications.

L'uniformité de la réponse des pixels est garantie par le constructeur entre 5 et 10 %. Les linéarités de lecture et de réponse des pixels spécifiées sont de 1%. Nous présentons à présent des expériences qui ont permis de vérifier les caractéristiques de la caméra.

Étalonnage expérimental de la caméra

Dans les paragraphes qui suivent, la valeur des pixels (qui varie de 0 à 65535) est indiquée sans unité ou par le terme de «niveaux». Nous verrons par la suite comment il est possible d'étalonner le flux correspondant à un niveau.

a) Courant et bruit d'obscurité

L'homogénéité des pixels peut aisément être testée par l'acquisition d'une image, la caméra étant placée dans l'obscurité. Pour une durée d'intégration de 100 ms et un regroupement des pixels par 16, on peut constater sur la figure (3.4) que cette homogénéité est satisfaisante, même si la valeur des pixels sur la gauche de l'image est légèrement supérieure (décalage systématique inhérent au capteur). L'écart maximal entre les valeurs des pixels est de l'ordre de 10, ce qui représente moins de 0,02% de la dynamique totale.

Les variations du courant d'obscurité avec le temps sont très faibles. Des mesures effectuées pour des temps de pose et sur des pixels différents ont en effet permis d'évaluer ces variations à 0,05 niveau par minute en moyenne. Ce bruit d'obscurité n'est donc pas gênant puisqu'il reste inférieur à 1 niveau par pixel pour des temps de pose inférieurs à 20 min.

Par contre, le courant et le bruit d'obscurité dépendent beaucoup de la température du capteur: autour de -120 °C, une variation de 5 °C entraîne une variation de la valeur moyenne des pixels de l'ordre de 10 niveaux environ, ce qui justifie une régulation de la température du capteur à 0,05 °C près.

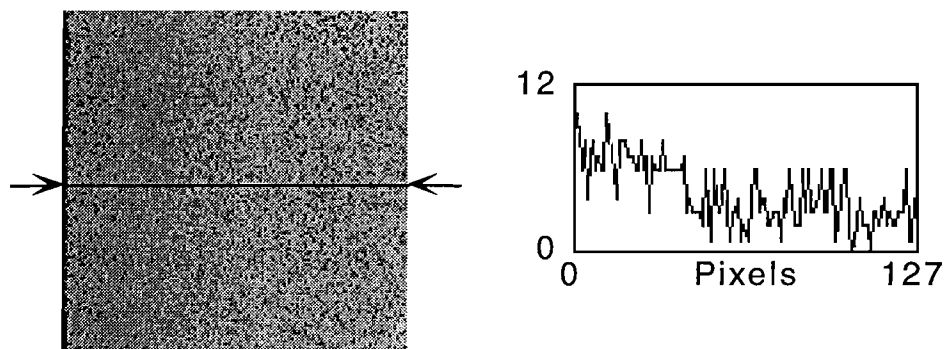


Figure (3.4): Image obtenue, le capteur étant placé dans l'obscurité, pour un temps de pose de 100 ms. Les pixels sont groupés par 16 (4x4), la définition de l'image est donc de 128 x 128. A droite, le profil des valeurs des pixels mesurées suivant la ligne horizontale indiquée sur l'image.

Il ressort de cette brève étude que toute mesure précise nécessite d'effectuer une mesure préalable du courant d'obscurité de la caméra à temps d'exposition et température identiques, afin de pouvoir soustraire ce fond de la mesure. En pratique, nous n'illuminons le plus souvent qu'une partie très restreinte du capteur CCD, le reste étant dans l'obscurité. Nous utilisons alors une bande horizontale non éclairée du capteur afin d'évaluer ce fond pour chaque image.

b) Linéarité de la réponse du capteur CCD

Afin de tester la linéarité de la réponse de la caméra à l'éclairage dans des conditions très proches des conditions expérimentales réelles, nous avons utilisé un cristal doubleur de fréquence en BBO, permettant d'obtenir un rendement de doublage conséquent. Un jeu de filtres neutres préalablement étalonnés nous permet alors de faire varier de manière précise le flux reçu par la caméra. Le schéma expérimental utilisé est représenté sur la figure (3.5).

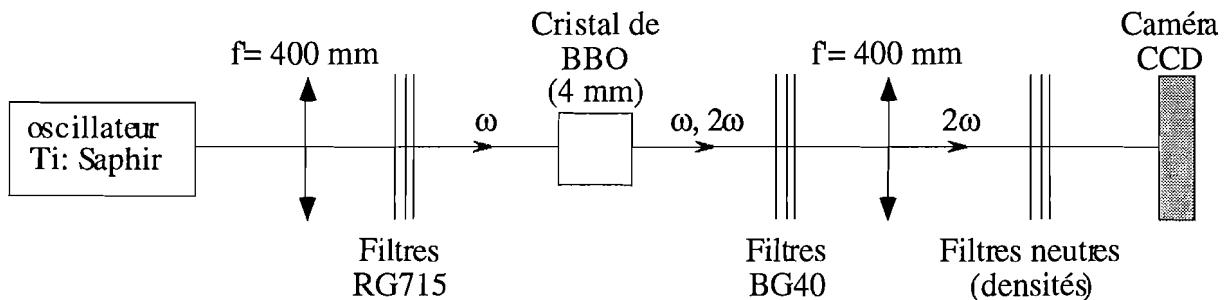


Figure (3.5): Schéma du montage utilisé pour l'étalonnage de la caméra à $\lambda=400$ nm. Le doublage de fréquence s'effectue grâce à un cristal de BBO de 4 mm de longueur. Les deux lentilles servent respectivement à focaliser le faisceau sur le cristal et à obtenir sur la caméra l'image du faisceau doublé. L'ensemble est enclos dans une enceinte réduisant considérablement la lumière parasite.

Deux mesures au puissance-mètre effectuées immédiatement avant le cristal et après les filtres BG40 permettent d'évaluer le rendement de doublage obtenu dans cette configuration. Pour une puissance moyenne du faisceau incident de $P_{\omega}=33$ mW, on obtient $P_{2\omega}=1,1 \cdot 10^{-5}$ W, soit un rendement de doublage $P_{2\omega}/P_{\omega}=3,3 \cdot 10^{-4}$. Dès lors, si $T(2\omega)$ est le facteur de transmission d'une association donnée de filtres neutres placés devant la caméra, l'efficacité de doublage effective devient $T(2\omega) \cdot P_{2\omega}/P_{\omega}$.

Les mesures obtenues pour des temps d'intégration différents, allant de 30 s pour $P_{2\omega} = 8 \cdot 10^{-12}$ W à 2,5 h pour $P_{2\omega}=3,35 \cdot 10^{-19}$ W, sont données, ramenées à une seconde, par la figure (3.6). Les niveaux portés en abscisse résultent de la sommation des valeurs de 270 pixels situés dans la zone illuminée, de la soustraction du bruit de fond associé, puis d'une division par le temps de pose utilisé.

La linéarité de la réponse de la caméra est bonne même pour les faibles signaux. Les variations d'intensité du laser sont probablement responsables d'une partie du bruit de ces mesures. La pente de la réponse évaluée expérimentalement est de $1,8 \cdot 10^{-17}$ W.s / niveau.

Ces mesures permettent également de montrer l'extrême sensibilité de la caméra, puisqu'il est possible de détecter un signal pour un rendement de doublage aussi faible que 10^{-17} , soit environ $3,35 \cdot 10^{-19}$ W. À la longueur d'onde de 400 nm (l'énergie d'un photon étant de $4,97 \cdot 10^{-19}$ J) nous sommes donc capables de détecter 0,7 photon par seconde seulement.

Comme on peut le voir, cette caméra permet de travailler avec des signaux très faibles, puisque $1,8 \cdot 10^{-17} \times 65535 = 10^{-12}$ W.s environ, suffisent à couvrir toute la dynamique d'un pixel.

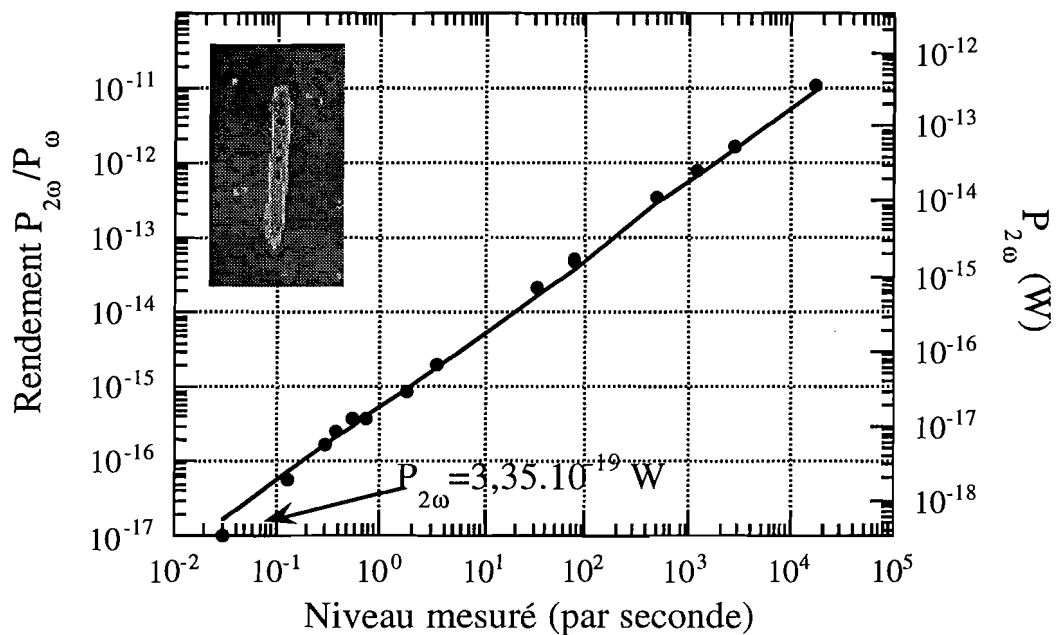


Figure (3.6): Puissance à la fréquence double (échelle de droite) et rendement de doublage équivalent (échelle de gauche, pour $P_{\omega} = 33$ mW) en fonction du nombre de niveaux total de l'ensemble des pixels considérés ramené à une seconde. Les points correspondent aux mesures, la ligne continue à une régression linéaire (pente $1,8 \cdot 10^{-17}$ W.s / niveau). Les pixels sont groupés par 16 (image 128x128). En insert, une zone choisie des images typiquement obtenues. La forme allongée est due à l'effet dit «walk-off» dans le cristal de BBO.

D'une manière générale, le rapport signal à bruit pour les signaux faibles est largement déterminé par le bruit de lecture de l'image. De plus, dans la mesure où nous mesurons des signaux très faibles, il est préférable d'utiliser au maximum la dynamique de quelques pixels plutôt que de répartir le flux lumineux sur l'ensemble du capteur. À chaque fois que seule une information quantitative est nécessaire, nous utiliserons donc la fonction d'association des pixels et/ou une focalisation forte du faisceau doublé sur un faible nombre de pixels.

La courbe d'étalonnage que nous venons d'obtenir a été réalisée à partir d'images telles que celle présentée en insert dans la figure précédente, c'est à dire à partir de plus de 200 pixels. Il est donc probable qu'une focalisation plus importante du faisceau sur la caméra permettrait d'observer des rendements de conversion plus faibles encore (ou de diminuer les temps d'intégration nécessaires).

Le montage constitué des trois éléments principaux que nous venons de décrire permet donc, pour des temps d'intégration raisonnables, de détecter moins de 1 photon par seconde à la fréquence double (400 nm). Notre système a donc des performances tout à fait comparables à celles d'un photomultiplicateur équipé d'un système de comptage de photons.

On comprend ici l'intérêt que représente l'utilisation d'une telle caméra. En intégrant la totalité du signal comme nous venons de le faire, on atteint des performances de détection proches de celles des meilleurs capteurs optiques. De plus, on dispose évidemment de la possibilité d'obtenir des images.

Le montage utilisé pour la caractérisation d'échantillons magnétiques est cependant plus complexe. Nous allons à présent discuter du rôle et des caractéristiques de chaque élément du système.

1.2 Description du montage

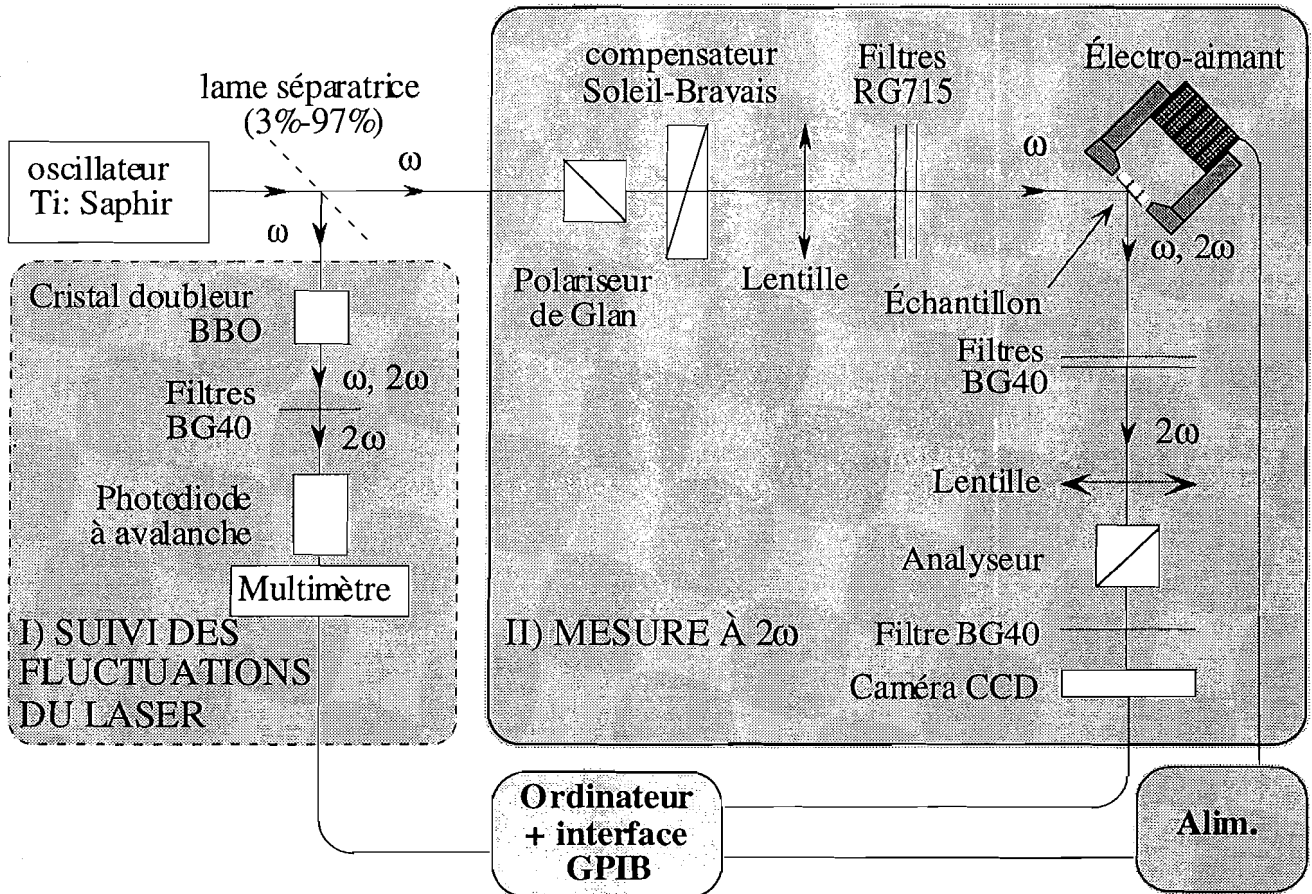


Figure (3.7) : Schéma optique du montage expérimental.

Le montage expérimental présenté sur la figure (3.7) est composé pour l'essentiel de deux parties (I et II). La première assure le suivi des éventuelles variations du faisceau issu de l'oscillateur à saphir dopé au titane, et la seconde constitue le système de mesure proprement dit.

1.2.1 Suivi des fluctuations du faisceau (I).

Le laser que nous utilisons est un système complexe. Malgré toutes les précautions prises (le cristal de saphir est stabilisé en température, le laser est placé sous un capot et sous une hotte à flux laminaire d'air, dans une pièce climatisée), des fluctuations imprévisibles du faisceau, principalement d'origine thermique, se produisent inévitablement. D'une journée à l'autre, voire d'une mesure à une autre, le faisceau peut très bien changer d'amplitude, de puissance moyenne, de position latérale (ou d'angle), de durée d'impulsion, de fréquence de répétition,

de longueur d'onde, etc. Or, nous avons souvent eu à effectuer de longues séries de mesures, parfois avec des temps d'intégration longs (10 minutes et plus). Afin de pouvoir comparer entre elles des mesures effectuées à des instants différents, il est important de pouvoir s'assurer de la stabilité du faisceau à la fréquence fondamentale pendant et entre les mesures. Le cas échéant, il est nécessaire de pouvoir compenser les variations du faisceau.

Le doublage de fréquence dépend fortement de l'amplitude du champ électrique à la pulsation fondamentale, de la durée des impulsions (qui conditionne l'amplitude crête des impulsions), de leur profil temporel et de leur fréquence de répétition. Il est évidemment très délicat de prendre en compte ces paramètres indépendamment. La meilleure solution est d'utiliser comme référence un phénomène le plus similaire possible à celui que l'on désire mesurer.

Une solution consiste à utiliser un cristal doubleur de BBO. Le schéma du montage utilisé est donné par le cadre I de la figure (3.7). Une simple lame de verre permet de prélever environ 3% du faisceau initial (soit environ 1 mW). Ce faisceau est focalisé sur un cristal doubleur de BBO. Un filtre BG 40 permet alors d'éliminer la majeure partie du faisceau fondamental. En positionnant correctement le cristal de BBO, on obtient un signal à la fréquence double parfaitement mesurable. Le détecteur utilisé ici est une photodiode à avalanche Hamamatsu à faible bruit d'obscurité. L'ensemble est placé dans un boîtier protégeant de la lumière parasite. La tension aux bornes de la photodiode est mesurée à l'aide d'un multimètre numérique Yokogawa. Pendant la durée de l'exposition du capteur CCD, ces valeurs sont stockées dans la mémoire du multimètre (capacité 1000 mesures max.), puis transmises à l'ordinateur à la fin de l'acquisition de l'image. Le signal ainsi mesuré peut être intégré sur toute la durée d'une acquisition, et servir à la normalisation des mesures.

Cependant, la condition d'accord de phase du cristal de BBO n'est réalisée que pour un intervalle extrêmement réduit d'angles d'incidences (de l'ordre de 1 mrad) et pour une longueur d'onde fondamentale donnée. Il en résulte que ce montage est très sensible aux variations de la longueur d'onde et de la position du faisceau (ou aux variations mécaniques de la position du cristal). En pratique, l'accord de phase doit donc être réajusté périodiquement, interdisant toute comparaison entre des signaux mesurés à plusieurs jours d'intervalle.

La meilleure solution pour s'affranchir du problème de l'accord de phase serait d'utiliser une surface (par exemple une lame de quartz), qui permette d'obtenir un bon doublage de fréquence en surface. Cependant, son faible rendement de doublage réclame une détection performante (détection synchrone et /ou photomultiplicateur) lourde à utiliser.

Dans certains cas, nous avons donc utilisé un système plus simple. La photodiode à avalanche est alors placée immédiatement après la lame séparatrice, et mesure le faisceau fondamental. Comme le montre l'expression (2.20), le signal à la fréquence double est proportionnel à $I^2(\omega)$. Le signal mesuré par la photodiode est donc élevé au carré par notre logiciel, avant d'être utilisé comme référence pour la normalisation des mesures.

Expérimentalement, l'utilisation de ces méthodes de renormalisation permet une amélioration notable du rapport signal à bruit dans le cas où le bruit introduit par la source est de très basse fréquence (dérives sur des temps supérieurs à la durée d'acquisition de l'image, et jusqu'à quelques heures). Par contre, les bruit rapides à l'échelle de nos mesures (la seconde) sont assez mal corrigés par les deux méthodes. Il est probable que ce bruit à haute fréquence a principalement une autre origine que la source laser (bruit de lecture de la caméra). Quoiqu'il en soit, la période d'échantillonnage des mesures de correction est trop faible (100 à 500 ms) pour espérer corriger toute sorte de variation aléatoire rapide.

Nous avons comparé les deux méthodes de correction sur un même échantillon, sur deux séries de 30 mesures réalisées successivement à raison de deux par minute. La correction à la fréquence double a permis une diminution de l'écart type entre les mesures de l'ordre de 10%, contre 8% avec une correction à la fréquence fondamentale. On a donc utilisé préférentiellement la correction basée sur des mesures à 2ω , en gardant à l'esprit qu'elle est moins fiable à long terme que la correction à la fréquence fondamentale.

D'une manière générale, le grand nombre de paramètres dont dépend l'efficacité du doublage de fréquence rend délicate une comparaison précise de façon absolue entre des mesures très éloignées dans le temps. Il est toujours préférable de réaliser les mesures en une seule passe afin de disposer d'une correction fiable.

1.2.2 Système de mesure à la fréquence double (II).

L'ensemble de ce montage est enfermé dans une enceinte hermétique permettant de le protéger de toute lumière parasite que la caméra pourrait détecter sans discrimination.

Le faisceau issu de l'oscillateur est polarisé p. Un polariseur de Glan placé à l'entrée du montage permet d'affiner cette polarisation. On dispose ensuite d'un compensateur de Soleil-Bravais, que l'on utilise comme une lame d'onde ajustable. Après étalonnage, il est ainsi possible de choisir l'état de polarisation du faisceau.

La focalisation du faisceau sur l'échantillon

Le faisceau est ensuite focalisé sur l'échantillon à l'aide d'une lentille. Cette focalisation est cruciale, puisque le nombre de photons doublés en fréquence est, d'après (2.X1), proportionnel à $I^2(\omega)A = P^2/A$ (où P est la puissance rayonnante et A la surface éclairée par le laser), donc inversement proportionnel à A. Or, le rayon de la plus petite tache que l'on puisse obtenir à l'aide d'un faisceau gaussien de diamètre à mi hauteur D et d'une lentille de distance focale f est donné par: $D_0 = 2\lambda f / \pi D$ [SIE86]. On a donc intérêt à choisir une lentille de courte distance focale afin d'augmenter le nombre de photons générés à la fréquence double.

Les diamètres de focalisation adoptés sont très variables d'un auteur à l'autre, allant de 25 μm dans certains cas ([VOL96]) jusqu'à 100 μm ([KOO95], [RAS96]).

Dans un premier temps, nous avons utilisé une lentille de focale 175 mm. À l'aide d'un analyseur de faisceau, on a déterminé pour le faisceau issu de l'oscillateur un diamètre à mi-hauteur de $D=800 \mu\text{m}$ (soit un diamètre de $2w = D\sqrt{2 / \ln 2} = 1360 \mu\text{m}$ à $1/e^2$). Le diamètre de la tache obtenue est donc de $D_0 \approx 110 \mu\text{m}$ à mi-hauteur, proche de la valeur de 100 μm utilisée par la majorité des auteurs.

Cependant, ne disposant que de 30 mW de puissance moyenne, au lieu de 100 mW pour les auteurs cités plus haut, nous avons rapidement été amenés à utiliser une focalisation plus poussée, à l'aide d'une lentille de focale 55 mm. Le diamètre à mi-hauteur obtenu est alors de 35 μm .

Le diamètre de la tache de focalisation obtenue a été estimé expérimentalement, en réalisant sur la caméra l'image de la zone éclairée par le laser (grâce au système d'imagerie décrit plus loin). La largeur à mi hauteur de la tache obtenue a été évaluée en nombre de pixels. Les moteurs pas à pas ont alors été utilisés pour mesurer quel déplacement de l'échantillon, repéré à l'aide d'un détail reconnaissable de l'échantillon, correspond à ce nombre de pixels. Suivant l'axe perpendiculaire au plan d'incidence, un déplacement de 34 μm est nécessaire pour parcourir la largeur à mi hauteur de la tache de focalisation. On a donc $D_0 \approx 34 \mu\text{m} \pm 3 \mu\text{m}$, en accord avec la limite théorique.

On obtient ainsi une considérable amélioration par rapport à une tâche de focalisation de 110 μm puisque, toutes choses étant égales par ailleurs, le nombre de photons doublés en fréquence devrait être *10 fois plus grand*. Expérimentalement, nous avons constaté sur un échantillon de Pt/Co/Pt, une augmentation du signal d'un facteur 7 environ.

Il faut par ailleurs noter que, du fait que l'échantillon est incliné à 45°, la tache obtenue sur l'échantillon est elliptique (ellipse dont le rapport grand axe/ petit axe vaut $\sqrt{2}$). La surface éclairée sur l'échantillon ($\pi \cdot \text{grand axe} \cdot \text{petit axe}$) est donc augmentée dans le rapport $\sqrt{2}$, et le nombre de photons à la fréquence double est diminué d'autant.

Dans la configuration en réflexion à 45°, il est délicat de s'approcher de l'échantillon à moins de 4 cm, en raison de l'encombrement du support de l'échantillon. Il est donc difficile de diminuer beaucoup plus la focale de la lentille utilisée. Afin de diminuer l'encombrement, les filtres RG715 sont intégrés dans une monture supportant la lentille, représentée sur la figure (3.8).

Comme tous les réglages impliquant un signal à la fréquence double, le réglage de la position de la lentille doit s'effectuer en utilisant la caméra (il est évidemment impossible d'observer à l'œil un signal aussi faible). On utilise pour cela des temps de pose décroissants (quelques dizaines de secondes au début, puis une seconde environ) lorsque le réglage s'affine et que le doublage devient plus efficace.

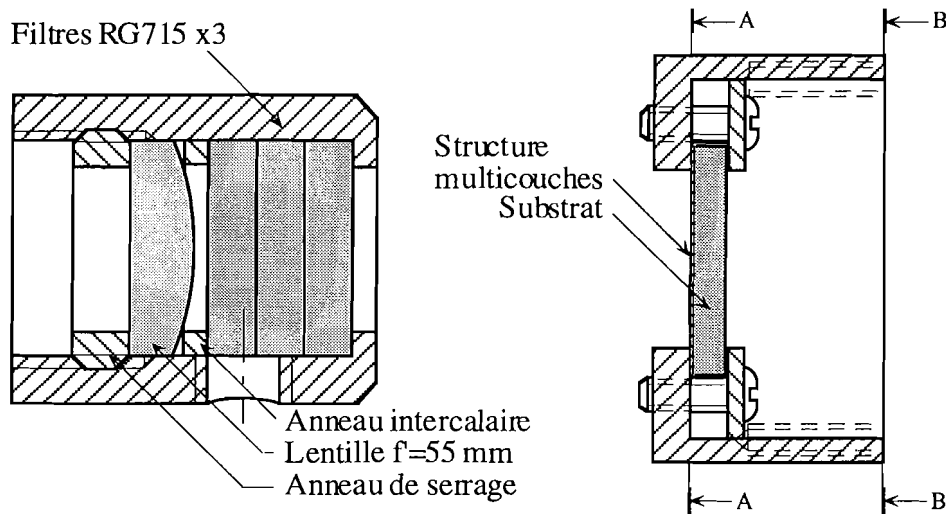


Figure (3.8): Schéma du support de lentille et du porte-échantillon

Les supports d'échantillons

La réduction de la distance focale de la lentille va de pair avec une diminution de la longueur de Rayleigh, c'est à dire la distance $z_r = \pi w_0^2 / \lambda$ sur laquelle le diamètre du faisceau n'excède pas $w_0 \sqrt{2}$. Dans notre cas, z_r étant de l'ordre du millimètre, nous avons réalisé une monture permettant d'aligner la face avant des échantillons (celle sur laquelle est déposée la structure à étudier) avec un plan de référence (AA sur le schéma (3.8)). Ainsi, la face avant de l'échantillon est à une distance fixe de la lentille quelle que soit l'épaisseur du substrat, et il est inutile de corriger la focalisation à chaque changement d'échantillon. Ce support peut être fixé sur deux types de montures.

La première, la plus utilisée, comporte une motorisation suivant deux axes orthogonaux dans le plan de l'échantillon (axes x et y). Il est ainsi possible de réaliser des mesures sur des régions différentes d'un même échantillon, ce qui est indispensable s'ils comportent des zones de caractéristiques différentes (par exemple des marches d'épaisseurs variables), ou pour réaliser de l'imagerie par balayage.

La seconde monture permet d'effectuer des études de l'échantillon en fonction de l'azimut, c'est à dire en rotation autour d'un axe perpendiculaire au plan du film sans changer l'angle d'incidence. Il est alors nécessaire que le «point d'impact» du faisceau sur l'échantillon ne bouge pas au cours de la rotation, les échantillons n'étant jamais d'une homogénéité parfaite. Pour cela, il faut que l'axe de rotation de l'échantillon soit dans le plan d'incidence du faisceau et passe par le «point d'impact» du faisceau sur l'échantillon (voir figure (3.9)). Deux translations (x et y) sont donc nécessaires pour permettre ce réglage délicat. Celui-ci doit si possible s'effectuer avec une précision de l'ordre du diamètre de la tache de focalisation, c'est à dire à 35 μm près. La vérification s'effectue avec le système d'imagerie décrit plus loin. Enfin, l'axe de rotation étant fixé, il est nécessaire de pouvoir déplacer

l'échantillon afin de choisir la zone de l'échantillon à étudier. Deux translations (dans le plan $x y$) de petite taille autorisent ce déplacement.

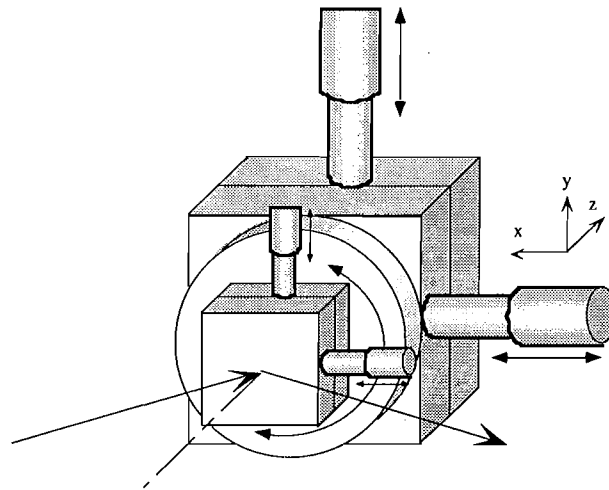


Figure (3.9): Support d'échantillon à 5 degrés de liberté pour les études en azimuth.

1.2.3 Contrôle et mesure des champs magnétiques.

Les champs magnétiques appliqués à l'échantillon doivent être précisément contrôlables et homogènes. De plus, les aimants doivent permettre le passage du faisceau. Nous disposons pour cela de trois types d'aimants, permettant d'obtenir des champs variables dans des configurations différentes.

a) Afin d'obtenir de forts champs magnétiques pendant de faibles durées, nous utilisons des bobines de Helmholtz. Celles-ci sont constituées de quelques dizaines de tours de fil de cuivre et disposées de manière à permettre l'application d'un champ dans les trois configurations définies au chapitre I (voir le schéma (a) sur la figure (3.10)). Ces bobines ne peuvent supporter les courants nécessaires à l'établissement d'un champ élevé que pendant quelques fractions de seconde sous peine de destruction. On utilise donc une alimentation spécialement conçue pour délivrer des impulsions allant jusqu'à 60 A pendant des temps de l'ordre de quelques millisecondes. La délivrance de ces impulsions peut être commandée en envoyant une impulsion de type TTL sur une entrée de l'alimentation. Ainsi, ces bobines permettent d'obtenir des champs allant jusqu'à 1800 Oe en configuration polaire (à raison de 30 Oe/A), 300 Oe en transverse (5 Oe/A) et 400 Oe en longitudinal (6,5 Oe/A). Ces bobines sont d'un encombrement très faible, et sont particulièrement adaptées lorsqu'il est simplement nécessaire de retourner l'aimantation dans une couche.

b) Lorsque le balayage du champ magnétique est nécessaire, un électroaimant à noyau de fer doux est utilisé. Cet aimant assez volumineux est muni de deux pièces polaires d'espacement réglable. Le champ est d'autant plus élevé que l'espacement entre les pièces polaires est réduit. L'homogénéité du champ est bonne entre ces mâchoires, mais se dégrade rapidement dès que l'on s'en éloigne. En appliquant une tension comprise entre -3,5 et +3,5

V, à un amplificateur, on peut contrôler le champ appliqué de -600 à +600 Oe. Comme on peut le voir sur la figure (3.10), le noyau de fer introduit un hystérésis (champ coercitif de l'ordre de 160 Oe dans ce cas). «L'histoire» de l'aimant a donc une importance, et il sera particulièrement difficile de contrôler le champ appliqué pour des champs faibles.

L'alimentation des bobines de Helmholtz, comme l'amplificateur alimentant l'électroaimant, sont pilotés par un générateur de fonction, respectivement en appliquant des impulsions TTL ou une tension continue. Ce générateur est lui-même piloté par ordinateur.

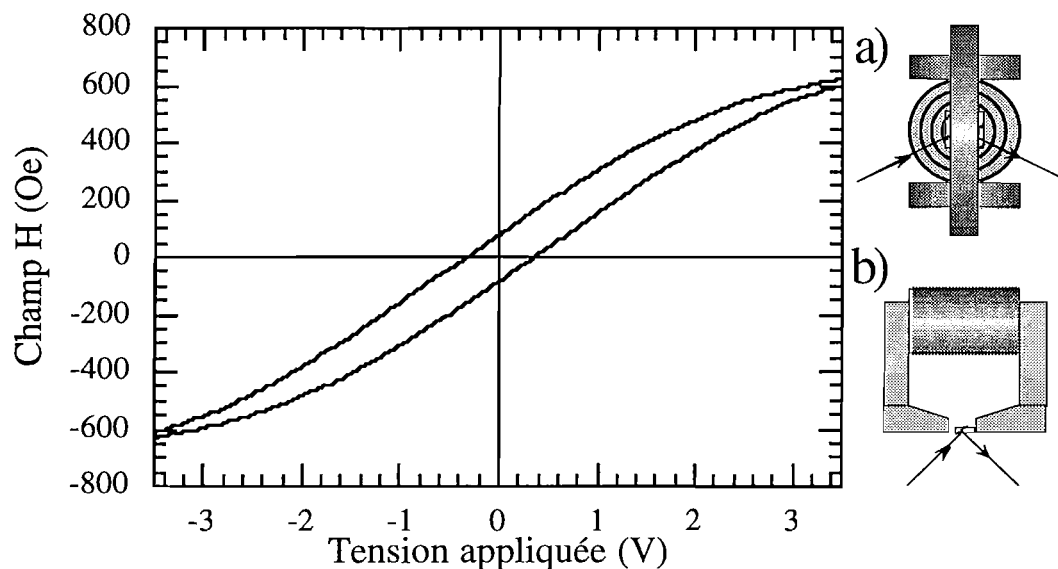


Figure (3.10): Champ magnétique H généré par l'électroaimant en fonction de la tension appliquée à l'amplificateur, mesuré à l'aide de la sonde à effet Hall. Les pièces polaires de l'aimant sont espacées de 2 cm. En insert, un schéma des bobines de Helmholtz (a) et de l'électroaimant (b).

c) Enfin, on dispose en complément de deux petits aimants permanents à base de fer et néodyme donnant un champ en surface de l'ordre de 3000 Oe; qui permettent d'appliquer très aisément des champs élevés.

Afin de mesurer le champ magnétique, on dispose d'une sonde à effet Hall dont la polarisation est assurée par une alimentation stabilisée. L'étalonnage de la sonde (détermination de la pente champ / tension et du décalage en champ nul) est effectué à l'aide d'un aimant calibré de 1000 Oe. La petite taille de la sonde permet de la placer près de l'échantillon sans occulter les faisceaux. Pour autant, elle ne mesure pas nécessairement le champ au niveau de l'impact du laser sur l'échantillon, en raison des inhomogénéités du champ dans l'entrefer. Il importe donc d'effectuer indépendamment un étalonnage précis en

plaçant la sonde à l'endroit de l'impact du laser sur l'échantillon. La tension aux bornes de la sonde à effet Hall est mesurée à l'aide d'un oscilloscope piloté par ordinateur.

1.3. Méthodes de mesure et automatisation du montage.

1.3.1 Méthode de mesure

Utilisation des images pour des mesures quantitatives.

Le fait d'utiliser une caméra comme capteur, même lorsqu'elle n'est pas employée en imagerie, présente plusieurs avantages. Le premier est sa grande sensibilité: on peut compter moins de 1 photon par seconde à $\lambda=400$ nm (voir §1.1.3). Ensuite, il est souvent possible de constater visuellement des anomalies de mesure (présence de lumière parasite dans l'enceinte par exemple) qui seraient probablement passées inaperçues sans cela. De plus, certains bruits de lecture des pixels sont clairement identifiables à l'image (les pixels ont une valeur anormalement basse ou élevée, d'où un point blanc ou noir à l'image). Si le problème se situe dans la zone d'intérêt sur l'image, il suffit alors d'écarter la mesure. D'une manière générale, n'ayant trouvé aucune technique de filtrage efficace et fiable des images, nous nous sommes interdit d'employer tout filtrage dès que l'on cherchait à faire des mesures quantitatives.

La technique employée lors de nos mesures magnétooptiques est illustrée par les figures (3.11) et (3.12).

La première figure présente deux images du faisceau engendré à la fréquence double par une structure Au / Co (17 plans atomiques) / Au. Pour permettre une meilleure interprétation de l'image, le faisceau doublé en fréquence est défocalisé sur la caméra (tache large). Les conditions expérimentales sont strictement identiques pour les deux images (temps d'exposition du capteur 5 min.). Trois images ont été réalisées. Les deux premières images (1 et 2) ont été obtenues dans des conditions identiques après application d'un champ à saturation de +150 Oe, et la suivante (3) après application de -150 Oe. Nous noterons respectivement I_1^+ , I_2^+ et I_3^- les signaux à 2ω associés à ces images.

Comme on peut le voir sur la figure (3.11); la différence entre le signal doublé dans les cas (1) et (3) est notable, et correspond à la présence des éléments de tenseur $\chi^{(2)}(\mathbf{M})$ impairs en aimantation. Toutes choses étant égales par ailleurs, la différence observée entre les deux images correspond bien à un effet d'origine magnétique.

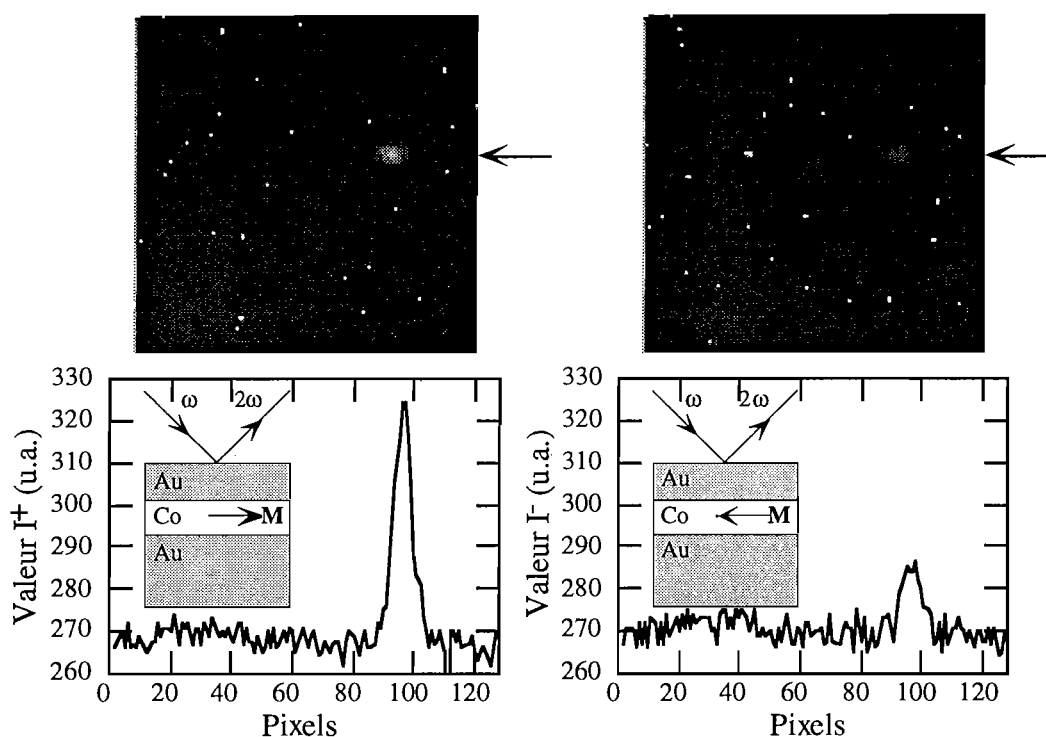


Figure (3.11): Images (128x128 pixels) obtenues à la fréquence double sur une structure Au/Co/Au, en configuration longitudinale, l'aimantation étant saturée dans deux sens opposés (images (1) et (3)). Les graphiques sous chaque image donnent les valeurs des pixels mesurées le long d'un axe horizontal repéré par une flèche sur l'image. Les inserts représentent schématiquement la situation expérimentale (le sens de \mathbf{M} est arbitraire).

Pour isoler l'effet d'origine magnétique, on effectue une différence entre les images (1) et (3) de la figure (3.11) (il s'agit simplement d'une différence pixel par pixel). Le résultat est présenté à la figure (3.12) (image de gauche). La même différence, effectuée cette fois entre deux images obtenues pour le même sens d'aimantation ((1) et (2)) met en évidence une différence quasi nulle (image de droite), ce qui permet une bonne évaluation expérimentale de notre bruit de mesure. On est donc bien en présence d'un effet d'origine magnétique.

On peut à présent intégrer les valeurs des pixels de ces différences d'images sur une zone choisie afin d'obtenir une évaluation quantitative du doublage de fréquence, c'est à dire des grandeurs I_1^+ , I_2^+ et I_3^- . On peut noter les quelques pixels blancs correspondant pour l'essentiel au bruit de lecture du contrôleur. Leur présence justifie que l'on intègre sur une zone la plus restreinte possible (sans pour autant, évidemment perdre de signal) et non sur la totalité de l'image. Il est alors possible d'évaluer le contraste magnétique, défini au chapitre 2

comme le rapport: $\rho = \frac{I_1^+ - I_3^-}{I_1^+ + I_3^-}$.

L'intégration de la différence $I_1^+ - I_2^+$ fournit une évaluation du bruit de mesure. Dans le cas présent, on obtient pour une zone d'intégration de 15x15 pixels (après soustraction du

décalage de la caméra qui vaut ici 268) un rapport signal à bruit $I_1^+/(I_1^+-I_2^+)$ de l'ordre de 150. Ce rapport dépend évidemment de nombreux paramètres, comme la zone d'intégration choisie, le type de l'échantillon, ou encore le temps d'exposition du capteur.

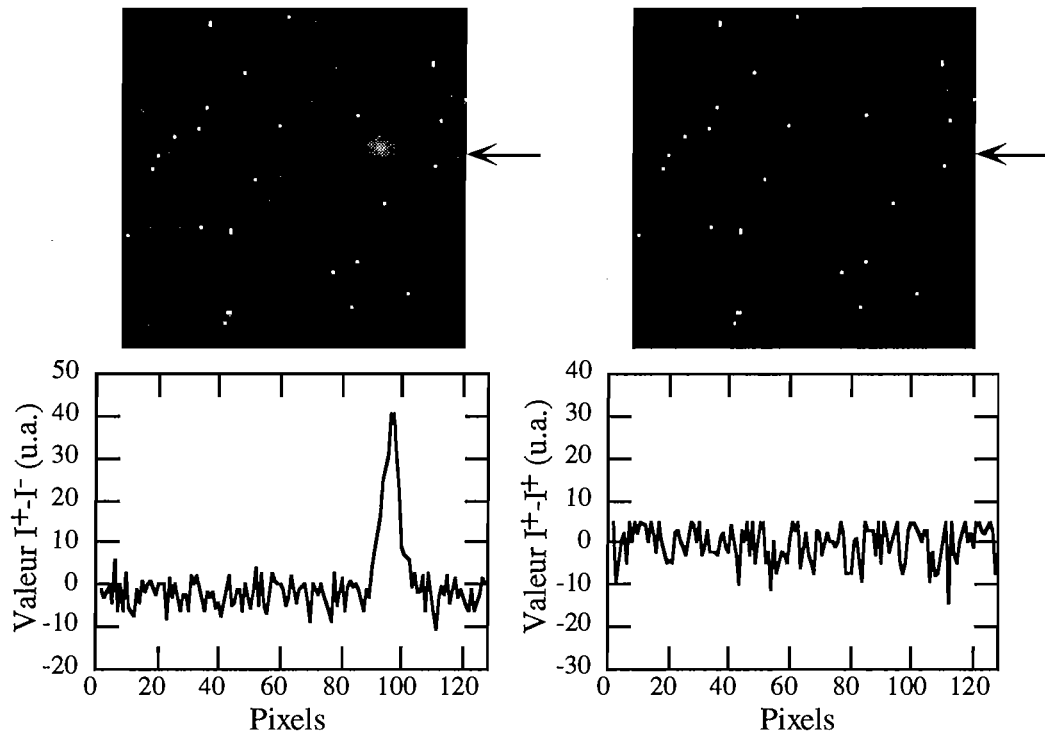


Figure (3.12): À gauche, différence entre les deux images présentées à la figure (3.11), réalisées pour deux sens opposés de l'aimantation. À droite, différence entre deux images réalisées successivement dans les mêmes conditions, l'aimantation étant dans le même sens.

À nouveau, les graphiques donnent les valeurs des pixels mesurées le long d'un axe horizontal. (N.B.: les échelles de gris et les échelles des graphiques sont les mêmes pour les figures (3.11) et (3.12)).

On évite en pratique d'effectuer des différences d'images, qui requièrent un temps de calcul relativement important, et on travaille pour calculer le contraste magnétique et le bruit de mesure sur les valeurs des intégrales. Mais le principe reste identique, et l'on s'efforce lorsque c'est possible d'acquérir trois images I_1^+ , I_2^+ et I^- , les deux premières servant à l'évaluation du bruit.

Analyse des images en temps réel

Le fait d'utiliser directement des images présente certains inconvénients, découlant du volume mémoire qu'elles réclament: une image de 512×512 pixels codés sur 16 bits représente $512^2 \times 16/8 = 525$ kilo octets au minimum en l'absence de compression des données. Par

exemple, la cartographie d'un échantillon par balayage avec une définition de 50x50 mesures réclame pour le stockage des 2500 images prises par la caméra une capacité de 1,3 Go. Ce stockage peut rapidement devenir problématique. Par ailleurs, le fait d'utiliser deux programmes différents pour la mesure et le traitement implique des pertes de temps (temps de sauvegarde et de lecture) qui deviennent rapidement gênantes.

On s'efforcera donc de réaliser l'opération d'intégration des pixels le plus tôt possible, c'est à dire au moment de la mesure. Nous avons donc été amenés dans certains cas à effectuer une analyse en temps réel des images acquises, afin de ne plus stocker en mémoire que le signal utile. On utilise pour cela une zone d'intégration rectangulaire, dont les coordonnées sont spécifiées par l'utilisateur. Le programme d'acquisition ne sauvegarde alors que le résultat de cette intégration et les informations relatives aux conditions de mesure (champs appliqués, position des moteurs, etc.). Le volume mémoire sollicité devient alors faible (la cartographie 50 x 50 que nous venons d'évoquer n'occupe plus que quelques dizaines de kilo octets), et les temps de traitements sont considérablement raccourcis.

La plupart des programmes que nous avons développés existent donc en deux versions: l'une permettant d'effectuer une intégration immédiate de la zone choisie, l'autre permettant de sauvegarder l'image entière (ce qui reste évidemment utile pour des applications d'imagerie). Pour ce dernier cas, nous avons développé un programme dédié à l'analyse des images afin d'en extraire une information quantitative.

1.3.2. Instrumentation et automatisation des mesures

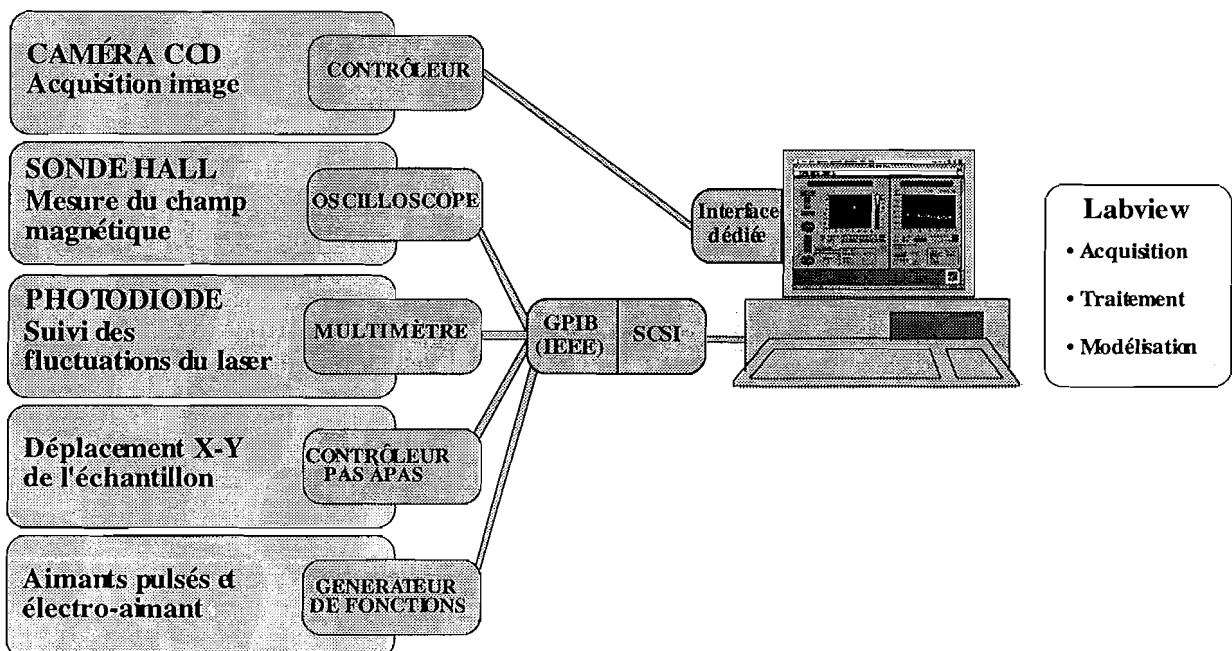


Figure (3.13): Automatisation du montage: schéma global.

Le montage comprend trois capteurs principaux: la caméra, la sonde Hall et la diode à avalanche servant à la normalisation, et deux appareils asservis: les platines de translation et les électroaimants. L'acquisition est assurée par l'intermédiaire du contrôleur pour la caméra, d'un oscilloscope pour la sonde Hall et d'un multimètre pour la photodiode. Le pilotage des moteurs pas à pas et des aimants s'effectue respectivement grâce à un contrôleur et à un générateur de fonctions. Tous ces instruments sont munis d'une sortie au standard de communication GPIB (ou encore IEEE). Ils sont reliés, en «étoile», à une interface permettant la connexion à un port SCSI.

En termes d'acquisition de données, la caméra est très contraignante, puisque la carte d'acquisition qui lui est dédiée bloque toute utilisation de l'ordinateur tant que l'obturateur est ouvert. Toute instruction envoyée aux instruments doit l'être avant ou après l'exposition du capteur CCD. Les signaux issus de la sonde Hall et de la photodiode sont donc stockés dans la mémoire de l'oscilloscope et du multimètre numérique, puis envoyés en bloc à l'ordinateur à la fin de l'exposition de la caméra.

Nous avons développé plusieurs programmes pilotant ces divers appareils en fonction du type de mesures à effectuer.

1.3.3. Principaux logiciels développés.

Le langage graphique Labview se prête particulièrement bien à l'automatisation des mesures. Les sous programmes (ou VIs pour Virtual Instruments) développés pour piloter un instrument en utilisant le jeu d'instructions qui lui est spécifique peuvent rapidement être intégrés à divers programmes, sous forme d'icônes. Ce travail initial étant effectué, le développement d'un logiciel complet devient très rapide. À partir des VIs que nous avons conçus pour piloter les instruments cités plus haut, nous avons ainsi réalisé plusieurs dizaines de programmes répondant à des besoins très spécifiques. Il s'agit de programmes effectuant les mesures proprement dites, mais aussi l'analyse et le traitement des données recueillies, et enfin la modélisation ou la simulation des phénomènes.

Les programmes de mesures peuvent effectuer les opérations suivantes, ou une combinaison de ces opérations:

- acquisition répétitive d'images de durée d'exposition et de fréquence de répétition variable. Ceci permet par exemple d'étudier un phénomène en fonction du temps, ou d'obtenir un contrôle visuel du doublage de fréquence pendant un réglage,

-
- acquisition d'images en fonction du sens de l'aimantation. Des impulsions de signe et d'amplitude choisis sont envoyés aux générateurs de champ magnétique (bobines de Helmholtz ou aimant à noyau de fer) de manière à retourner l'aimantation, puis une ou plusieurs acquisition sont effectuées,
 - acquisition d'images pour un champ magnétique croissant ou décroissant entre deux valeurs, pour permettre par exemple l'observation de l'évolution des domaines magnétiques en fonction du champ appliqué,
 - acquisition de cycles d'hystérésis: une séquence donnée de champs magnétiques est appliquée, selon des procédures décrites plus loin, puis une acquisition est prise. Cette séquence est répétée pour acquérir le point suivant. Il est possible de resserrer ou d'espacer de manière dynamique les écarts de champ magnétique entre deux mesures en fonction de leur intérêt,
 - mesures (avec ou sans champ magnétique) en diverses positions prédéfinies des platines X-Y: ce type de programme peut être utilisé afin d'effectuer une ou plusieurs mesures sur chacune des marches d'un échantillon comprenant des zones d'épaisseurs différentes,
 - mesures (avec ou sans champ magnétique) pour des positions des platines X-Y variant régulièrement, de manière à décrire un quadrillage sur l'échantillon. Il est ainsi possible d'obtenir une «cartographie» d'un échantillon.

Dans tous les cas, il est possible de visualiser ou de sauvegarder les images acquises, la valeur de certains pixels, les tensions appliquées aux générateurs de champ, les valeurs du champ magnétique, les variations du signal mesuré par la photodiode (ou sa moyenne), ou la position des moteurs. Certaines données (sens de l'aimantation, facteur de normalisation ou champ magnétique) peuvent être automatiquement intégrées au nom du fichier pour en permettre un traitement rapide et automatique. Les paramètres de mesure et la visualisation des résultats est modifiable à tout instant à l'aide de la souris (sauf en cours d'acquisition de la caméra). La figure (3.14) présente la face avant (c'est à dire l'interface utilisateur) de l'un de ces programmes.

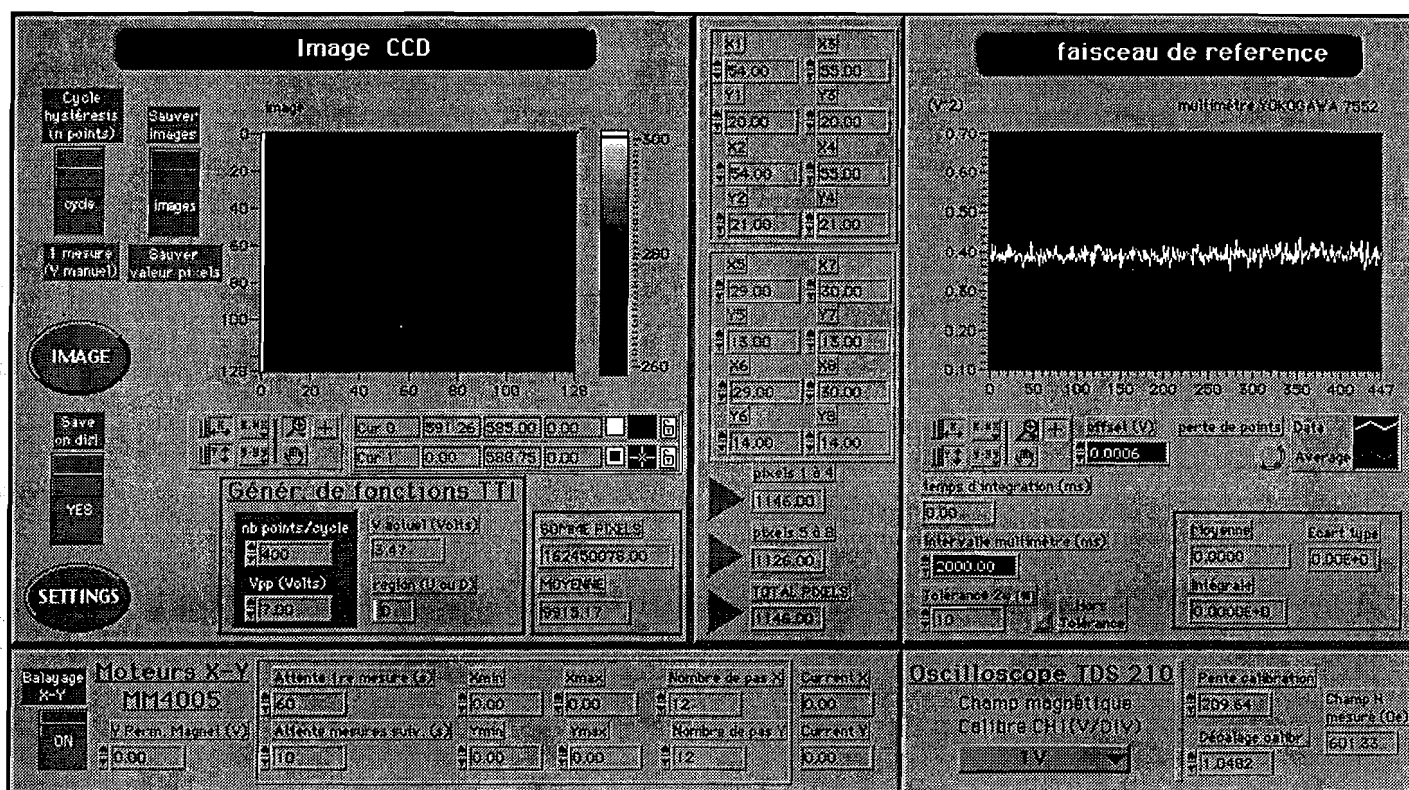


Figure (3.14): Face avant d'un programme de mesure. À gauche, l'image recueillie sur la caméra. Le graphe de droite présente les fluctuations du laser en fonction du temps au cours de l'acquisition. En bas à gauche, les réglages relatifs au déplacement des platines. En bas à droite, les réglages relatifs à la mesure du champ magnétique.

Nous avons également développé plusieurs programmes d'analyse et de traitement des images et des données. Le principal programme d'analyse des images permet de charger plusieurs images à partir de fichiers et d'en modifier les paramètres d'affichage. Il est ensuite possible d'évaluer le bruit de fond de la caméra, de définir une zone d'intérêt (celle où se trouve le faisceau doublé) sur laquelle la valeur des pixels sera intégrée. On peut alors calculer les contrastes magnétiques entre diverses images et évaluer le bruit de mesure. Une version de ce programme permet également d'effectuer ces analyses de manière automatique sur tous les fichiers d'un répertoire.

Un programme permettant de calculer la moyenne de plusieurs cycles d'hystérésis a également été conçu. Le développement d'un programme robuste permettant de résoudre ce problème est moins simple qu'il ne le semble a priori, puisqu'il faut par exemple être capable de distinguer les deux branches de l'hystérésis pour leur faire subir un traitement distinct. Il est ainsi possible d'utiliser un pas d'échantillonnage variable et de calculer la moyenne des points situés dans cet intervalle.

En guise de conclusion à cette partie relative au système expérimental, et afin d'illustrer l'amélioration du rapport signal à bruit apportée par les procédés expérimentaux que nous avons peu à peu mis au point, la figure (3.15) présente un cycle d'hystérésis obtenu sur une structure Pt / Co (20plans atomiques) / Pt. On a pour cela utilisé une lentille de focalisation du faisceau sur l'échantillon de distance focale $f=55\text{mm}$ (soit un diamètre à mi-hauteur théorique de la tache de focalisation de $35\ \mu\text{m}$), le faisceau à la fréquence double étant focalisé sur environ 300 pixels (8 super-pixels constitués de 36 pixels chacun). Pour un temps d'intégration de $t=5\text{s}$ par point seulement, ce cycle présente un très bon rapport signal à bruit .

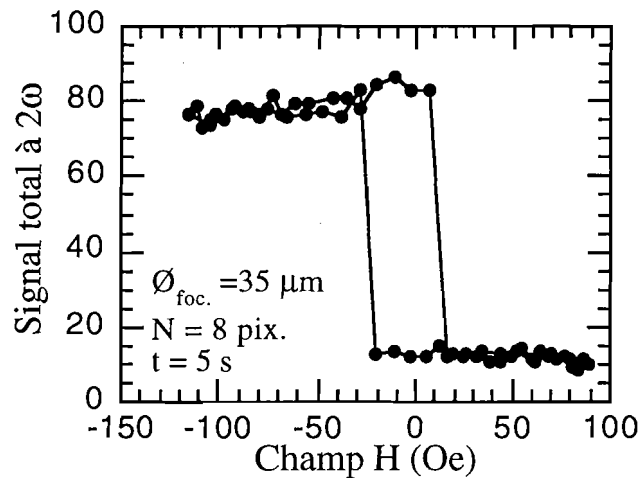


Figure (3.15): Cycles d'hystérésis obtenus sur une structure Pt / Co (20plans atomiques) / Pt en configuration longitudinale. Le diamètre de la tache de focalisation à mi-hauteur, le nombre de super-pixels utilisé sur la caméra et le temps d'intégration par point sont respectivement indiqués par $\text{Ø}_{\text{foc.}}$, N et t .

Tout au long de ce mémoire sont présentés des résultats qui ont été obtenus à divers stades de ce processus d'amélioration de la sensibilité du montage. En conséquence, les temps d'intégration utilisés et le nombre de moyennes nécessaire à l'obtention d'un signal exploitable varient beaucoup. Il faut donc se garder de tirer des conclusions sur l'efficacité du doublage de fréquence sur un échantillon en considérant uniquement ces temps d'intégration.

1.4 Mesures fondamentales et validations.

À l'aide du montage que nous venons de décrire, nous sommes à présent capables de détecter des signaux très faibles, et nous avons pris toutes les précautions pour que ce signal soit effectivement un signal à la fréquence double.

Nous allons dans un premier temps nous attacher à montrer expérimentalement que les signaux que nous détectons ont effectivement un comportement quadratique avec l'éclairement incident à la fréquence fondamentale, ce qui est caractéristique d'un effet non linéaire du deuxième ordre comme le doublage de fréquence.

Avant d'aborder le problème complexe des interfaces magnétiques enterrées, il est nécessaire d'étudier un système le plus simple possible. Nous avons donc examiné les propriétés non linéaires de simples films d'or et de platine d'épaisseurs variables. Une bonne connaissance de l'interface or/air ou platine /air est un préalable indispensable à l'étude de structures plus complexes dans la mesure où ces métaux constituent les couches de couverture de la plupart des structures multicouches que nous avons étudiées. Par ailleurs, il est possible d'extraire de cette étude des informations nouvelles et intéressantes sur le problème fondamental de la corrélation entre rugosité et doublage de fréquence.

Enfin, nous démontrerons la sensibilité de notre technique à l'aimantation d'interface à travers un exemple simple.

1.4.1 Démonstration du caractère quadratique en éclairissement

Nous avons utilisé ici un échantillon simple, constitué d'une couche d'or déposé sur une couche de Si_3N_4 , recouvrant un substrat de silicium. Le montage utilisé est celui décrit par la figure (3.7). La puissance moyenne reçue par l'échantillon est alors de 30 mW au maximum. Nous avons placé devant l'échantillon différents filtres neutres calibrés à $\lambda=800$ nm afin de faire varier de manière connue la puissance moyenne incidente à la fréquence fondamentale. En réflexion, le faisceau recueilli après élimination du fondamental est mesuré à l'aide du capteur CCD, dont la linéarité a été démontrée précédemment sur une large gamme de rendements de conversion. On négligera ici l'influence du léger étirement temporel des impulsions à travers les filtres neutres sur le doublage de fréquence.

Comme l'indique l'équation (2.20), le signal doublé en fréquence doit être proportionnel au carré de l'éclairement à la fréquence fondamentale, donc au carré de la puissance moyenne.

Le signal mesuré par la caméra en fonction de l'éclairement, présenté en échelle logarithmique sur la figure (3.16), est bien modélisé par une droite de pente 2 (c'est à dire de la forme $y=ax^2$). On a donc bien un comportement quadratique du signal doublé en fréquence en fonction de l'éclairement, caractéristique d'un phénomène non linéaire du second ordre [SHE81].

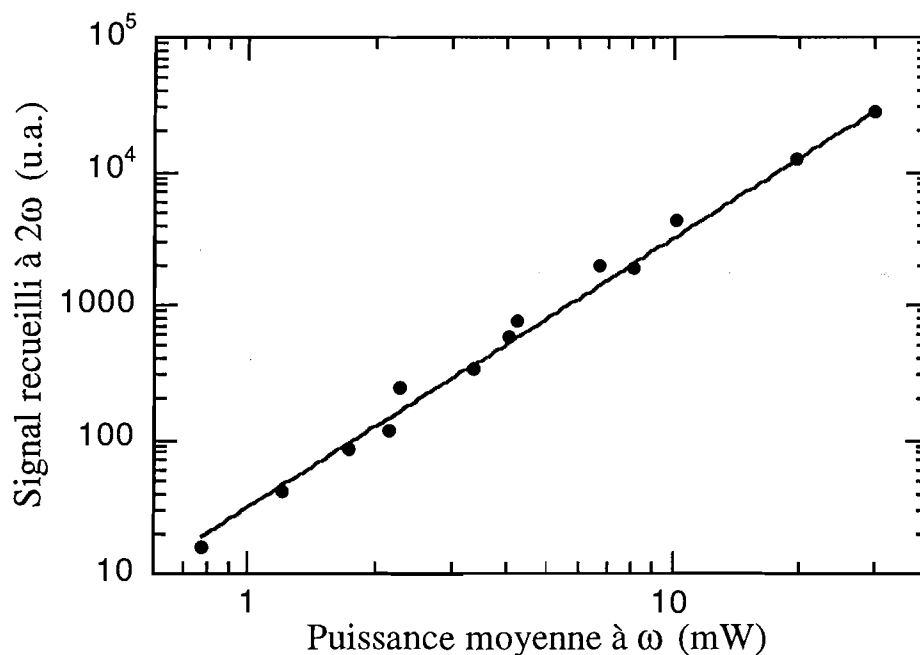


Figure (3.16): Variations du signal mesuré en réflexion à 2ω en fonction de la puissance moyenne à la fréquence fondamentale. Les points représentent les mesures expérimentales, la droite un ajustement quadratique de la forme $y=ax^2$.

1.4.2 Interfaces non magnétiques: films d'or. Influence de la rugosité.

Introduction

L'étude d'interfaces non magnétiques constitue pour nous un préalable à des études plus complexes. Il faut néanmoins noter que l'étude par doublage de fréquence de surfaces non magnétiques, et même de surfaces métalliques, constitue un sujet d'étude extrêmement vaste, déjà abordé par de nombreux auteurs. En particulier, les interfaces enterrées ou non des semi-conducteurs et des dérivés du silicium ont fait l'objet de très nombreuses études. Ceci est principalement dû à l'excellente maîtrise que l'on a de ces matériaux et à leur intérêt technologique. Les chapitres 7 et 8 de l'ouvrage [GIL95] constituent une bonne introduction au doublage de fréquence sur les interfaces des semi-conducteurs. L'autre grand domaine d'applications ayant motivé ce type d'étude est celui des catalyseurs solides, qui sont d'une importance industrielle majeure. L'étude de la rugosité, des adsorbats et de leurs influences sur le doublage de fréquence est donc d'une grande importance [HEI83], [SCH93].

Comme nous l'avons montré au chapitre II, c'est la brisure de symétrie à l'interface qui donne lieu au doublage de fréquence. On peut donc intuitivement supposer qu'il existe un

lien direct entre la rugosité d'une interface, qui va augmenter cette brisure de symétrie, et le doublage de fréquence.

Expérimentalement, on a observé assez tôt qu'une surface métallique rugueuse pouvait mener à des augmentations considérables de certains effets non linéaires par rapport à une surface lisse. Ainsi, le rendement de diffusion Raman de certaines molécules peut être augmentée d'un facteur 10^5 à 10^6 lorsqu'elles sont déposées sur une couche d'argent rugueux par rapport aux valeurs mesurées en solution [FLE74]. L'idée qu'une augmentation similaire du doublage de fréquence puisse être attendue sur des surfaces métalliques rugueuses a donc rapidement été confirmée [CHE81], [WOK81].

Il faut pourtant noter que si la rugosité peut être modélisée par de petites particules ou des agrégats sphériques, le doublage de fréquence devrait être nul. Comme nous l'avons vu au chapitre II, deux interfaces symétriques ont en effet des contributions de phases opposées au doublage de fréquence. Dans un petit agrégat sphérique, la rupture de symétrie est donc éliminée. Si son absorption est négligeable, il n'existe donc aucun doublage de fréquence. Évidemment, cet argument perd de son poids si l'on a affaire à des agrégats non sphériques.

Plusieurs explications sont avancées pour expliquer l'exaltation du doublage de fréquence observée dans ce cas. D'une part, il peut s'agir, comme nous l'avons dit, d'un effet intrinsèque: plus de rugosité, c'est une rupture de symétrie accrue, donc plus de doublage de fréquence. Il est également possible que l'augmentation de la surface équivalente due à la rugosité soit responsable d'une augmentation du doublage de fréquence [KIR98].

Cependant, ces idées ne permettent pas d'expliquer certaines exaltations importantes, et il a été suggéré très tôt que des résonances plasmon localisées pouvaient être à l'origine de fortes exaltations locales des champs électriques ce qui expliquerait les augmentations observées de la diffusion Raman [EES79], [WEI80], ou du doublage de fréquence [CHE81]. Dans ce dernier cas, les forts champs électriques entraînent une exaltation du doublage de surface (dipolaire). La contribution quadrupolaire (doublage en volume), qui est habituellement négligeable (car d'ordre supérieur), peut également devenir importante, particulièrement lorsque la contribution de surface est interdite par la forme des particules. Depuis, la question des plasmons de surface localisés a été l'objet d'importants travaux théoriques et expérimentaux [SHA98], [AKT95], [ANT98], [GAD98].

Dans la plupart des cas, il est cependant probable que c'est une combinaison de ces trois phénomènes qui est à l'origine des exaltations du doublage de fréquence observées.

Alors qu'il existe un traitement microscopique du phénomène de doublage de fréquence pour des interfaces parfaites, la compréhension des phénomènes mis en jeu pour des interfaces réelles reste phénoménologique. La mise en évidence expérimentale de tels effets est donc d'une grande importance. Des travaux récents de Kirilyuk et al. [KIR98] ont montré l'existence d'une corrélation entre la pression d'argon dans l'enceinte de dépôt de couches minces CoNi/Pt et les propriétés optiques non linéaires de ces couches. En effet, l'augmentation de la pression d'argon perturbe la croissance des couches, en désorientant légèrement les cristallites (sans changer leur taille) [BIJ96]. L'augmentation

de la rugosité interfaciale qui en résulte se traduit par une augmentation de la composante non magnétique du doublage de fréquence d'un facteur 2 entre des pressions partielles de 0,3 Pa et 3,5 Pa d'argon. Les auteurs attribuent ce phénomène à une extension de la surface effective de l'interface. Cette approche demeure cependant très qualitative, puisqu'aucune indication n'est précisée quant à la rugosité réelle de cette interface.

Une idée intéressante en vue d'établir une relation *quantitative* entre la rugosité et le doublage de fréquence consiste à utiliser des surfaces vicinales. On désigne ainsi des surfaces de monocristaux taillés suivant des plans dont la normale n'est alignée avec aucun des axes cristallins. Ces surfaces comportent alors des «terrasses» planes et des «marches» hautes de un plan atomique. La densité des marches augmente donc avec l'angle entre la normale au plan de la surface et l'un des axes cristallins. La connaissance de cet angle permet de remonter à la densité de marches. On dispose ainsi en quelque sorte d'une rugosité à l'échelle atomique, régulière et parfaitement connue, c'est-à-dire d'un système a priori idéal. Nous avons étudié une surface vicinale d'argent réalisée par l'équipe de Z.Q.Qiu [CHE99], mais il est encore trop tôt pour donner à ces résultats une interprétation en termes de rugosité. En fait, le doublage de fréquence sur ce type de système présente d'importantes difficultés d'interprétation, et a fait l'objet d'un grand nombre d'études théoriques [PET95, PET96, ISH94] et expérimentales [JAN91, FRIE93, JAK94, LUP94, CHE99]. En particulier, le doublage de fréquence sur des surfaces vicinales présente une anisotropie de rotation encore mal expliquée. La rupture de la symétrie dans les plans atomiques situés sous la surface pourrait être responsable de ces phénomènes.

De ce fait, il n'existe à ce jour et à notre connaissance aucun travail permettant d'établir de manière simple une corrélation entre la rugosité et le doublage de fréquence sur une surface métallique.

Couche d'or d'épaisseur variable.

Nous avons travaillé sur une structure (réalisée dans l'équipe de P.Beauvillain) composée d'un substrat de silicium de 0,4 mm d'épaisseur, sur lequel est déposée une couche de Si_3N_4 de 350 Å. Une couche d'or (111) est alors déposée, avec une épaisseur variant entre 0 et 80 plans atomiques. Dans tout ce qui suit, on parlera d'épaisseurs en plans atomiques par souci de simplification. Cependant, il faut bien noter qu'il s'agit d'une épaisseur moyenne de métal déposée. Ceci ne préjuge en rien de l'uniformité des couches atomiques réelles.

Deux caches mobiles perpendiculaires ont permis de réaliser une structure en damier où chacune des cases a une épaisseur différente. La géométrie de l'échantillon est représentée schématiquement sur la figure (3.17). On dispose ainsi en quelque sorte de plusieurs échantillons sur un même substrat, ce qui permet d'éviter toute perturbation des conditions expérimentales dues aux changements d'échantillons et à l'influence des conditions expérimentales. Bien plus, il est alors possible d'être certain que l'orientation cristalline est rigoureusement la même pour chacune des marches.

La totalité de cette étude a été effectuée en utilisant un faisceau laser incident polarisé p.

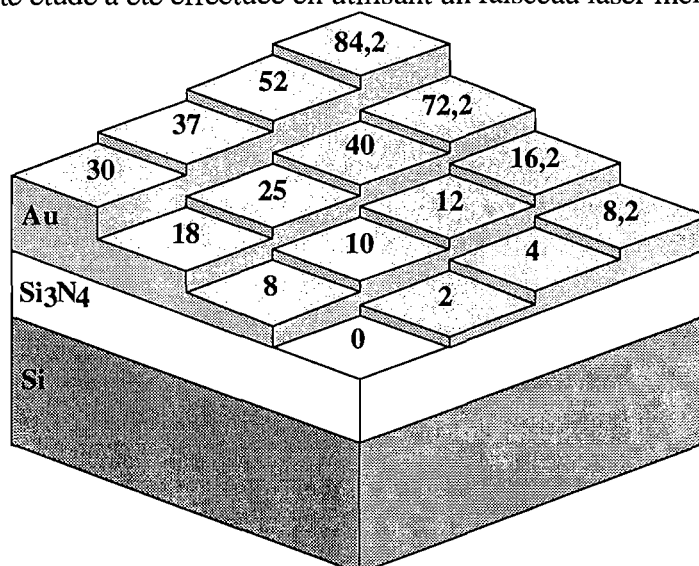


Figure (3.17): Géométrie de l'échantillon d'or (111) en couche mince. Les épaisseurs de la couche sont indiquées en Plans Atomiques (PA) ($1 \text{ PA} = 2,35 \text{ \AA}$). L'extension latérale de chaque marche est d'environ 3 mm.

Mesures à la fréquence fondamentale

Nous avons dans un premier temps étudié le coefficient de réflexion à la fréquence fondamentale de cet échantillon. Pour cela, les filtres bleus BG40 ont été enlevés (voir figure (3.7)). Des filtres neutres (densité optique de 14 environ) ont été disposés avant l'échantillon afin d'éviter de saturer le détecteur. On mesure alors simplement à l'aide de la caméra le flux réfléchi par la surface d'or. 64 mesures (8x8 mesures séparées de 250 μm) ont été réalisées en des endroits différents sur chaque marche afin de vérifier leur homogénéité. Les valeurs obtenues varient de 5% au plus à l'intérieur de chaque marche, ce qui permet de conclure à une bonne homogénéité de la couche d'or à l'échelle macroscopique. De plus, la différence entre le signal réfléchi par les différentes marches est distincte, et les frontières sont (comme on le verra au paragraphe consacré à l'imagerie) abruptes à l'échelle de notre faisceau. Ces mesures ont ensuite été moyennées sur chaque marche, pour obtenir le graphique de la figure (3.17). Les valeurs absolues du

coefficient de réflexion ont été obtenues en recalibrant ces valeurs à l'aide d'un mesureur de puissance avant (faisceau incident) et après (faisceau réfléchi) l'échantillon.

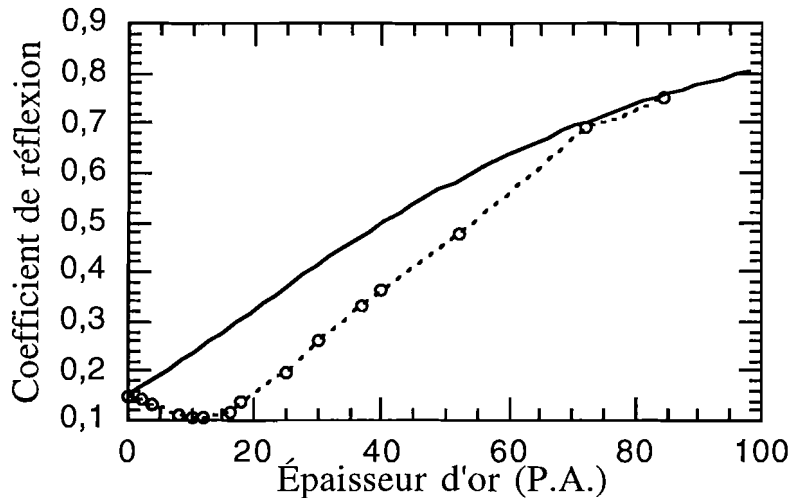


Figure (3.18): Coefficient de réflexion à ω d'une couche d'or d'épaisseur variable (épaisseurs en Plans Atomiques). Les cercles représentent les mesures expérimentales, la courbe en trait plein un calcul théorique effectué sans ajustement.

Globalement, on constate un accroissement du coefficient de réflexion avec l'épaisseur d'or, ce qui paraît logique: on passe progressivement du coefficient de réflexion du substrat (Si et Si_3N_4) qui est de 0,15 environ, vers celui de l'or massif, proche de 1. Afin d'expliquer ce comportement, nous avons utilisé le modèle présenté au chapitre II pour calculer le coefficient de réflexion de ce système. Le calcul a été effectué en prenant les indices complexes de l'or (massif), du Si_3N_4 , et du silicium disponibles dans la littérature pour une longueur d'onde de 800 nm, soit respectivement: $n_{\text{Au}}=0,19+ i.5,23$, $n_{\text{Si}_3\text{N}_4}=2,008$ et $n_{\text{Si}}=3,69+i.0,0007$ [PAL85]. La courbe obtenue sans ajustement est présentée sur la figure (3.18) (trait plein).

L'accord avec les données expérimentales est bon lorsque le substrat est nu, et pour les fortes épaisseurs d'or. Entre les deux, précisément pour les épaisseurs où l'on s'attend à la formation d'îlots, l'accord est médiocre. En effet, nous avons considéré une couche d'or continue, et dont les propriétés optiques seraient celles du matériau massif. Plusieurs auteurs ont déjà signalé des différences, et notamment une augmentation de la partie imaginaire de l'indice complexe des matériaux lorsque ceux-ci sont sous forme granulaire [ANT98]. Des phénomènes de diffusion sur les petites particules (diffusion Rayleigh) doivent permettre d'expliquer un tel comportement dans le cas d'une croissance en îlots et pour de faibles épaisseurs d'or.

Mesures à la fréquence double

Nous avons ensuite étudié ce même échantillon à la fréquence double. Le substrat de Si_3N_4 est un mauvais conducteur thermique. De plus, la présence supposée de petits îlots d'or se prête assez mal à la dissipation de la chaleur. Il est donc à craindre que l'énergie apportée par le laser puisse échauffer fortement l'échantillon. Le faisceau incident a donc été atténué à l'aide d'un filtre neutre de densité de 1. Le signal doublé en fréquence est important (un temps d'intégration de 2 s par mesure est suffisant). Une étude de la dépendance temporelle du signal doublé en fréquence sur 10 minutes n'a pas permis de déceler de variation du signal doublé en fréquence, indiquant que l'échauffement apporté par le laser est raisonnable.

Comme précédemment, 64 mesures ont été effectuées en des endroits différents de chaque marche. L'homogénéité des mesures est légèrement moins bonne que dans le cas des mesures à ω (fluctuations de 8 % au maximum) en raison d'un rapport signal à bruit inférieur. La moyenne des signaux recueillis sur chacune des marches est présentée sur la figure (3.19).

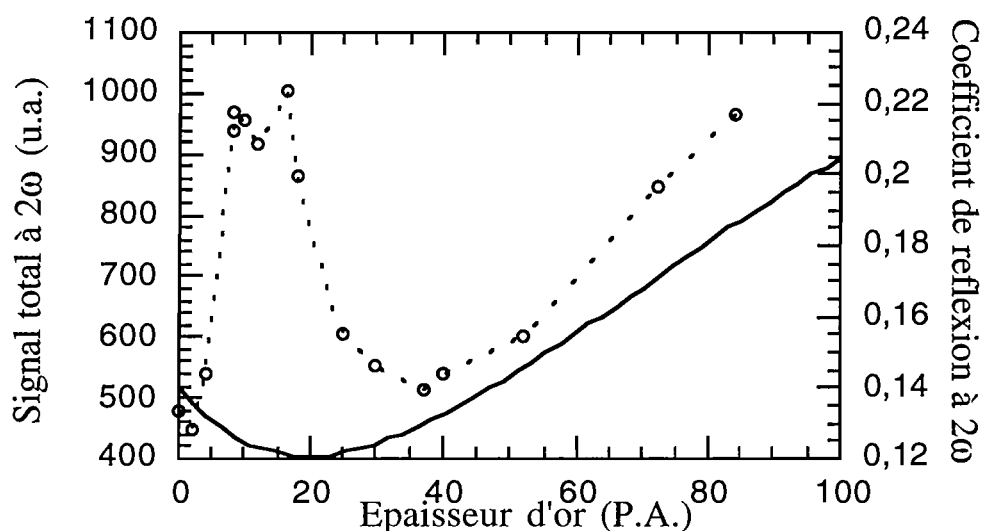


Figure (3.19): Signal doublé en fréquence mesuré (cercles) et coefficient de réflexion à la fréquence double (trait plein) en fonction de l'épaisseur d'or en plans atomiques. Le coefficient de réflexion de la structure multicouche a été calculé pour les valeurs des indices à $\lambda=400$ nm: $n_{\text{Au}}=1,614+i.1,94$, $n_{\text{Si}_3\text{N}_4}=2,07$ et $n_{\text{Si}}=3,57+i.0,387$.

Ce comportement est très similaire à celui observé par A.Wokaun et al. [WOK81]. En étudiant le doublage de fréquence d'une couche d'or déposée sur du silicium à l'aide d'un laser Nd:YAG à $1,06 \mu\text{m}$, ces auteurs observent un pic de doublage très étroit vers 17 P.A. d'or, puis un minimum vers 28 P.A. et enfin une augmentation du doublage saturant vers 50 P.A. à une valeur proche de deux fois celle du pic. Il est possible que les différences observées soient essentiellement dues à des différences entre les structures et les longueurs d'onde utilisées. Wokaun et al. attribuent la présence du pic de doublage de fréquence observé vers 17 P.A. à l'excitation de plasmons localisés. Le renforcement du doublage aux fortes épaisseurs est attribuée à l'excitation d'un plasmon, cette fois non local, favorisé par l'augmentation de la rugosité de la surface.

Cette dernière idée semble cependant discutable dans notre cas, vu les faibles rugosités mesurées aux fortes épaisseurs (voir plus loin). En fait, on peut proposer un argument beaucoup plus simple, en tenant compte du fait que l'on a ici une structure multicouche dont le coefficient de réflexion à la fréquence double augmente avec l'épaisseur d'or, comme le montre la courbe en trait plein sur la figure (3.19). Or, le doublage de fréquence s'effectue en réflexion à la première interface mais aussi, rappelons le, dans le sens de la transmission. On peut schématiquement dire que ce dernier faisceau à 2ω est mieux réfléchi par la structure multicouche, ce qui se traduit par une augmentation du signal mesuré à la fréquence double. Cet argument qualitatif est confirmé par des calculs plus rigoureux effectués à l'aide de notre modèle de doublage de fréquence dans les multicouches (cf. chap. II) pour différentes valeurs arbitraires des éléments du tenseur susceptibilité non linéaire.

On peut ainsi expliquer le comportement du système pour de fortes épaisseurs mais, comme dans le cas linéaire, on est confronté à ce stade à une difficulté d'interprétation pour la gamme d'épaisseurs allant de 2 à 50 plans atomiques.

Mesures par Microscopie à Force Atomique (AFM)

Afin d'expliquer ce comportement, des mesures ont été effectuées à l'Institut d'Électronique Fondamentale à l'aide d'un Microscope à Force Atomique (AFM). Une zone choisie de chacune des marches de l'échantillon a fait l'objet d'une cartographie. La figure (3.20) présente certaines des images obtenues pour différentes épaisseurs de la couche d'or.

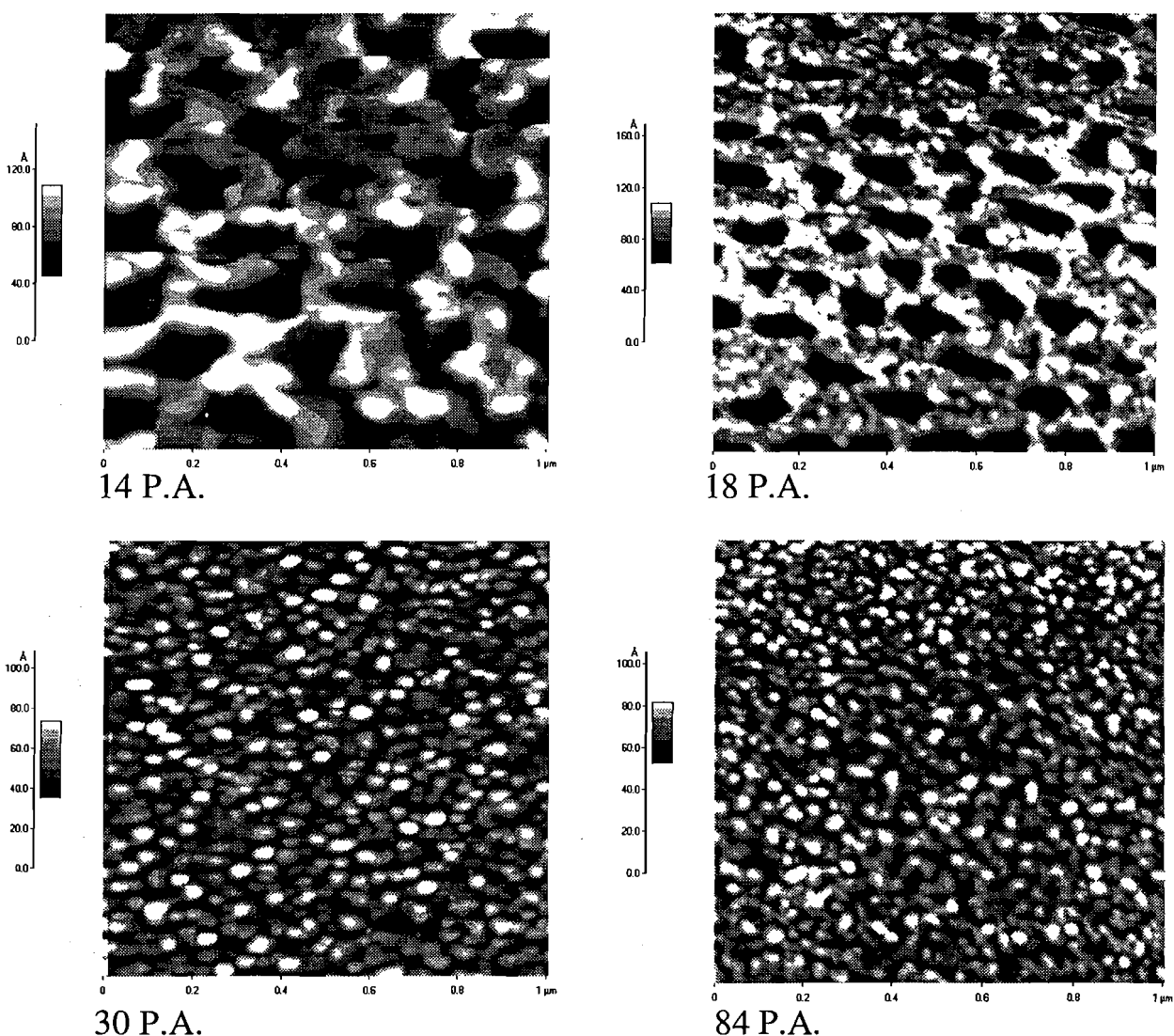


Figure (3.20): Images par AFM de quatre zones d'épaisseur d'or différentes de l'échantillon ($1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$). Les épaisseurs d'or correspondant aux zones imagées sont indiquées sous les images. Noter que les échelles de couleurs sont différentes pour chaque image.

L'or mouille assez mal le Si_3N_4 et, comme on peut le vérifier sur ces images, ceci conduit à la formation d'îlots d'or. Pour de faibles quantités d'or déposées (jusqu'à 20-25 P.A. environ), on distingue nettement des îlots, le substrat étant encore visible entre ceux-ci (larges zones noires sur les deux images du haut. Ces îlots croissent à mesure que l'on dépose de l'or et, à partir de 20 P.A., ils coalescent pour recouvrir totalement le substrat. Après cette coalescence rapide (30 P.A.), on obtient un film continu d'or qui présente une rugosité assez faible. Pour des épaisseurs d'or plus importantes, on conserve un état de surface similaire (84 P.A.).

À partir de ces images, un traitement statistique permet d'obtenir des rugosités moyennes dites RMS pour «Root Mean Square». La description quantitative des rugosités est un sujet délicat, tant il existe des formes diverses de rugosité (on pourra par exemple

consulter [SPA94], à propos de la «dimension fractale» des rugosités). Le critère RMS d'évaluation de la rugosité présente l'avantage d'être simple et (sans doute de ce fait) d'être l'un des plus largement utilisés.

La figure (3.21) présente la rugosité RMS mesurée pour chacune des épaisseurs d'or.

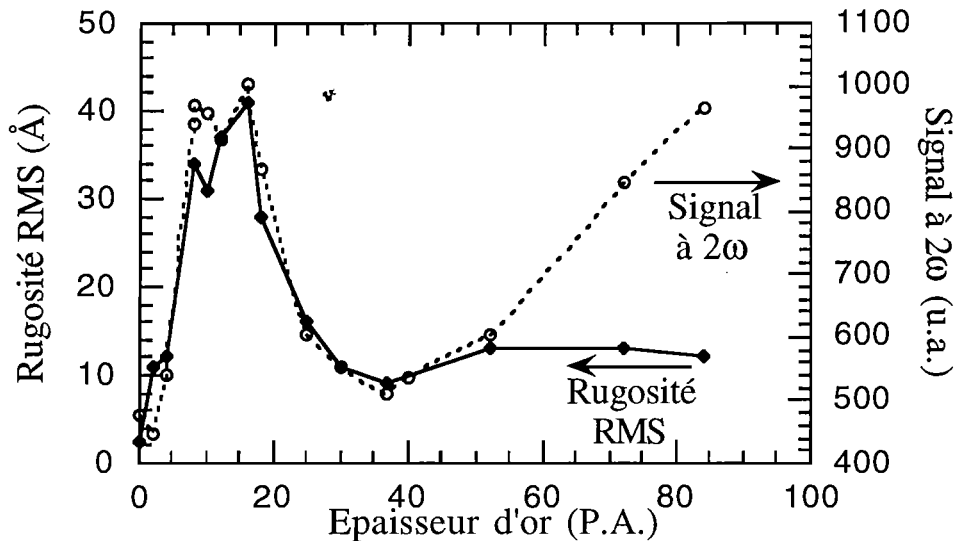


Figure (3.21): Rugosité RMS (en Å) mesurée par AFM de la surface en fonction de l'épaisseur d'or (losanges et traits pleins). Les cercles représentent le signal total à la fréquence double (mêmes données qu'à la figure (3.19)).

Comme on peut le constater, la coïncidence entre les comportements du signal à 2ω et de la rugosité RMS est excellente, particulièrement pour les épaisseurs situées entre 0 et 50 Å. On est clairement en présence, entre 5 et 25 P.Å. d'or, d'une exaltation du signal doublé en fréquence liée à la rugosité de la surface. Au delà de 50 Å, le signal doublé en fréquence augmente, tandis que la rugosité reste constante. Cette augmentation s'explique, comme nous l'avons vu précédemment, par un meilleur coefficient de réflexion de la structure à la fréquence double.

Ces mesures permettent donc de mettre en évidence un lien direct entre la rugosité de surface de l'or et le doublage de fréquence. La cause directe de ce phénomène n'est pas explicitement mise en évidence ici. Il peut s'agir d'un phénomène intrinsèque au doublage de fréquence (augmentation de la surface effective ou augmentation de la valeur des éléments du tenseur susceptibilité non linéaire). Cependant, l'existence d'un phénomène de résonance plasmon localisée pour l'une des fréquences (fondamentale et et ou doublée) est une hypothèse très vraisemblable. Il importe d'effectuer dans le futur des mesures similaires sur d'autres matériaux, afin de déterminer si un tel comportement est général.

Quoi qu'il en soit, on dispose ainsi dans le cas de l'or d'une sonde de mesure de rugosité globale sur une surface de l'ordre de la taille de la tache de focalisation (30 μm). Les

difficultés éventuelles d'interprétation des données sont largement compensées par la rapidité (le temps d'acquisition à la fréquence double est de l'ordre de la seconde), la sensibilité (des variations de rugosité RMS de l'ordre de l'Angström sont détectées), et le caractère non destructif et non contaminant de ces mesures effectuées sans contact.

1.4.3 Interfaces magnétiques enterrées

La première preuve expérimentale du phénomène de doublage de fréquence induit par l'aimantation à la surface d'un matériau centrosymétrique (et de sa sensibilité à l'interface) a été donnée par Reif et al. en 1991 sur une surface de fer (110) [REI 91]. Le montage utilisait alors un laser Nd:YAG doublé ($\lambda=532$ nm), avec une fréquence de répétition de 20 Hz, une durée d'impulsion de 6 ns, et un éclairement crête d'environ 5.10^6 W cm⁻² au niveau de l'échantillon. Il a ainsi été possible de détecter en réflexion à 45°, malgré la faiblesse du signal et grâce au moyennage de nombreuses mesures, une faible différence entre le signal doublé en fréquence réfléchi par la surface de fer suivant le sens de l'aimantation (transverse). De plus, une décroissance de cette différence a été observée au cours du temps, et attribuée à l'adsorption de CO à la surface dans la chambre de croissance.

Par la suite, la première détection d'un signal doublé en fréquence provenant d'une interface magnétique enterrée a été démontrée par Spierings et al. en 1993 ([SPI93a] et [SPI93b]) sur une structure Co/Au. Cette équipe pionnière dirigée par Th. Rasing a dans un premier temps travaillé essentiellement sur de tels échantillons à base d'or et de cobalt. D'intéressantes observations ont ainsi pu être faites, résultant d'effets dus aux puits quantiques formés par certaines de ces couches extrêmement minces. Ces états de puits quantiques sont responsables des oscillations récemment observées dans le couplage d'échange entre couches ferromagnétiques en fonction de l'épaisseur de la couche intercalaire, et interviennent donc dans des mécanismes intéressants. Les puits quantiques dans les semi conducteurs sont dus à des différences entre les bandes interdites des matériaux (une couche de faible bande interdite, le puits, est prise entre deux couches de grande bande interdite, les barrières) et à l'effet de confinement qui en résulte. Dans les métaux, ils sont dus à des différences entre les densités d'états, qui suscitent des sauts de potentiels aux interfaces. Les électrons incidents sur une telle interface sont partiellement réfléchis, et la structure se comporte en quelque sorte comme un interféromètre de Fabry -Perot pour les électrons [BRU94]. Dans le cas d'une interface entre métaux magnétiques et non magnétiques, la différence entre les densités d'états, donc le saut de potentiel, dépend du spin. Les états de puits quantiques peuvent alors être polarisés en spin.

Des oscillations du contraste magnétique et du signal total doublé en fonction de l'épaisseur de la couche de couverture ont ainsi été observées dans des structures Au/Co/Au ou Cu/Co/Cu, et ont donné lieu à une abondante littérature (voir par exemple [WIE95], [KIR96], [GRO96], [LUC96], [KIR97]).

Nous avons utilisé l'un des échantillons élaborés par le laboratoire de P.Beauvillain à l'IEF et testés par l'équipe de T. Rasing [KIR96] afin de valider le fonctionnement de notre système de mesure. Dans un premier temps, nous nous sommes aussi attachés à montrer qu'un effet d'origine magnétique est observable à l'aide de notre système de mesure. Nous avons ensuite tenté d'établir une comparaison avec les résultats obtenus par cette équipe afin de valider nos méthodes de mesure.

La structure est constituée d'une couche tampon d'or (111), sur laquelle est déposée une couche de cobalt hcp (0001) de 20 Plans Atomiques, puis une couche de couverture en cuivre (111) d'épaisseur variant entre 3 et 17 P.A. et enfin une couche d'or (111) de protection de 10 P.A.. Pour ces épaisseurs, l'aimantation de la couche de cobalt est dans le plan de l'échantillon. L'échantillon est constitué de marches de cuivre d'épaisseur variant par pas de 1 P.A.. Nous avons appliqué un champ magnétique à l'aide de bobines de Helmholtz en configuration longitudinale (≈ 1000 Oe, ce qui, d'après [KIR96], suffit largement à retourner l'aimantation).

La présence d'un signal doublé en fréquence d'origine magnétique est clairement mise en évidence, par exemple sur la zone de l'échantillon correspondant à 4 P.A. de cuivre. Les conditions expérimentales sont strictement identiques entre les mesures notées I^+ et I^- , à ceci près qu'elles ont été effectuées après saturation de l'aimantation en sens inverse par application de courants de signes opposés dans les bobines de Helmholtz. Comme on peut le voir à la figure (3.22), la différence entre les signaux I^+ et I^- mesurés pour les deux sens de l'aimantation est notable, et correspond à un contraste magnétique (défini par $\rho = (\langle I^+ \rangle - \langle I^- \rangle) / (\langle I^+ \rangle + \langle I^- \rangle)$) de 3,7%.

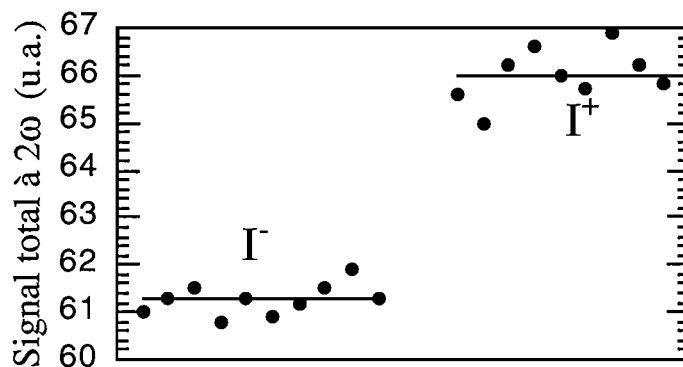


Figure (3.22): Signaux I^+ et I^- mesurés à la fréquence double pour deux sens opposés de l'aimantation planaire dans la structure Au / Co (20 PA)/Cu (4 PA)/Au (10 PA). Les traits pleins indiquent la moyenne des dix mesures effectuées dans chaque cas. Le contraste magnétique correspondant est de 3,7%.

Le graphe de gauche de la figure (3.23) présente les variations du signal moyen $(I^+ + I^-)/2$ à la fréquence double, en fonction de l'épaisseur de cuivre. Ce signal est engendré par

toutes les interfaces du système, et particulièrement par l'interface supérieure Au / air, puisque les autres interfaces reçoivent un faisceau atténué par l'absorption des couches supérieures. Comme on peut le constater, ce signal total subit d'assez fortes fluctuations, probablement liées à la surface de l'échantillon, qui est soumise à des pollutions diverses. Par contre, le contraste magnétique (figure de droite) mesuré en fonction de l'épaisseur de cuivre (aux mêmes endroits que le signal total) varie de manière régulière. En effet, le contraste magnétique n'est lié qu'aux interfaces magnétiques, c'est à dire enterrées. Celles-ci ne sont soumises à aucune pollution, et sont a priori plus homogènes que la surface. Leurs propriétés présentent donc moins de variations selon l'endroit où est effectuée la mesure. On démontre ainsi que l'on peut s'affranchir des effets non linéaires présentés par les interfaces non magnétiques et isoler une contribution issue d'une interface enterrée.

La comparaison de nos résultats (présentés sur la figure (3.22), à droite) avec ceux de Kirilyuk et al. sur le même échantillon n'est pas évidente, puisque leurs mesures ont été effectuées aux longueurs d'onde de 720, 850, 1020 et 1170 nm alors que nous travaillons à 800 nm. En effet, les variations du contraste magnétique avec l'épaisseur obtenues pour ces longueurs d'ondes diffèrent nettement, comme on peut le vérifier à la figure (3.24). Cependant, les ordres de grandeur du contraste magnétique et la période d'oscillation que nous observons est tout à fait comparable avec les résultats de [KIR96]. On retrouve en particulier à $\lambda=800$ nm un maximum dans le contraste autour de 8 à 10 plans de cuivre qui est également présent dans les mesures effectuées à 720 nm et 850 nm.

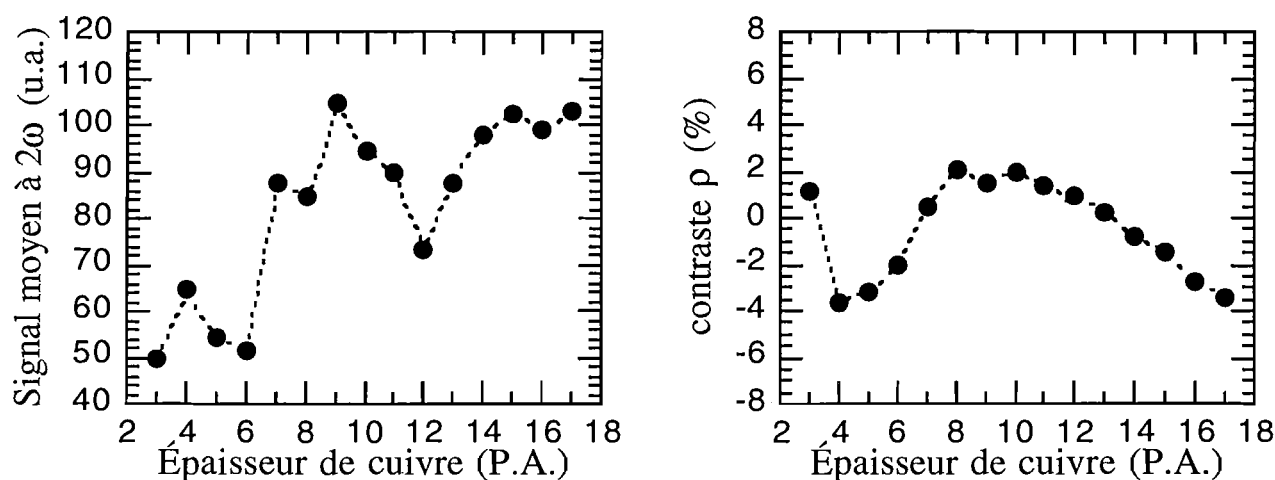


Figure (3.23): Signal total moyen doublé en fréquence (à gauche) et contraste magnétique (à droite) en fonction de l'épaisseur de cuivre.

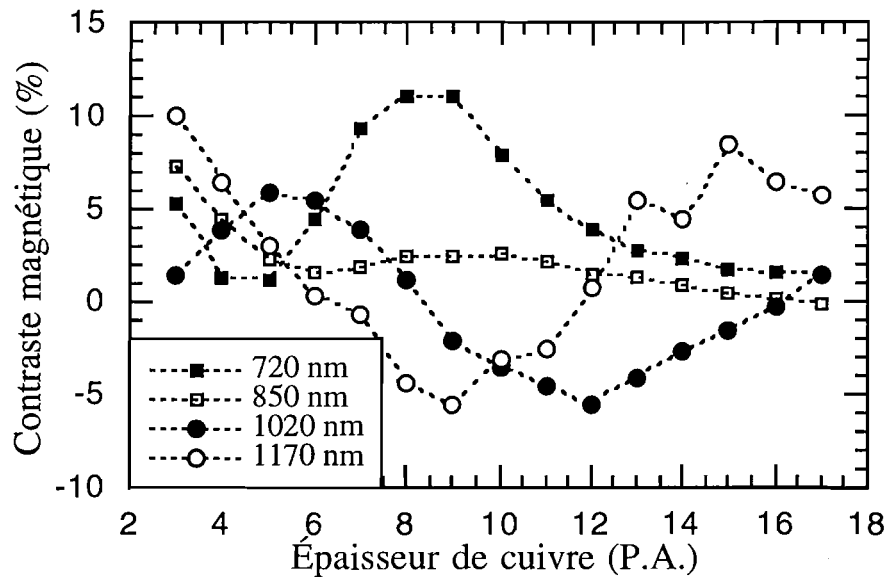


Figure (3.24): *Contraste magnétique en fonction de l'épaisseur de cuivre mesuré pour 4 longueurs d'onde différentes du faisceau fondamental. D'après [KIR96].*

Nous ne détaillerons pas ici les mécanismes physiques induisant ces oscillations du contraste magnétique, qui sont très bien décrits dans les articles cités plus haut. Indépendamment de ces phénomènes, nous avons pu grâce à cet échantillon mettre en évidence la sensibilité du doublage de fréquence à des phénomènes d'origine magnétique. De plus, on l'a vu qualitativement, ces phénomènes permettent d'isoler des contributions issues de couches enterrées (ici sous une couche de cuivre et une couche d'or). Enfin, la comparaison avec des mesures effectuées sur le même échantillon sur le banc de l'équipe expérimentée de T. Rasing nous ont permis, au cours de la phase de démarrage de nos travaux, de comparer les performances de nos bancs de mesure.

La première partie de ce chapitre nous a permis de décrire le montage et les processus expérimentaux utilisés dans la configuration en réflexion. Celle-ci est de loin la plus couramment employée pour le doublage de fréquence. Nous avons également exposé quelques mesures élémentaires qui nous ont permis de valider et d'illustrer certains concepts expérimentaux importants sur lesquels reposent notre technique.

D'une part, nous avons montré que le doublage de fréquence en réflexion peut être étudié sur des surfaces métalliques non magnétiques (de l'or, en l'occurrence). Une grande sensibilité à la rugosité des surfaces a ainsi été mise en évidence, permettant d'obtenir rapidement des informations pertinentes sur l'état de surface.

D'autre part, nous avons montré sur une structure multicouche comportant au moins une couche magnétique que le doublage de fréquence présente une bonne sensibilité à l'aimantation des interfaces. Ceci permet bien sûr d'obtenir des informations sur ces aimantations, mais aussi d'isoler les contributions issues des interfaces magnétiques, même enterrées sous d'autres couches non magnétiques.

Dans toute cette partie, nous avons été confrontés à des rendements de doublage faibles. Même si ces signaux à la fréquence double sont parfaitement détectables, comme nous l'avons vu, il serait intéressant de pouvoir diminuer les temps nécessaires à leur mesure, ou même de pouvoir les détecter avec un appareillage plus simple. Nous avons donc été amenés à réfléchir à des moyens d'augmenter les rendements de conversion, tout d'abord évidemment en optimisant les conditions de mesure.

Une autre idée nous a amenés à mettre au point une configuration de mesure plus originale en vue d'obtenir une exaltation de la réponse à la fréquence double d'origine magnétique ou non magnétique. C'est cette idée, basée sur l'utilisation de plasmons de surface, que nous allons à présent décrire et exploiter expérimentalement.

2. Configuration Plasmons de surface

2.1 Introduction

Tout corps solide est constitué d'atomes entourés de nuages électroniques. Ces électrons déterminent les propriétés optiques et électriques du matériau. Qu'ils soient libres ou liés, ces électrons sont excitables, par exemple au moyen de faisceaux lumineux ou électroniques. Lorsqu'un grand nombre d'électrons est excité, cette excitation peut se propager. De même que l'on parle de phonons (associés aux vibrations de réseau cristallin), ou d'excitons (associés à des paires électrons-trous), on associe aux oscillations de plasma le terme de plasmon. Ces plasmons correspondent donc à une variation locale de la densité électronique. Il existe des plasmons de volume ou des plasmons de surface, selon qu'ils sont localisés ou non à la surface du matériau [BUR74]. Nous allons ici nous intéresser exclusivement aux plasmons de surface, auxquels est associée une onde électromagnétique évanescente (c'est à dire non radiative).

La présence d'une telle onde évanescente suppose en effet l'existence de champs électromagnétiques très intenses au niveau de l'interface. On entrevoit dès lors l'intérêt d'une telle configuration: ces champs électromagnétiques intenses vont permettre d'obtenir des rendements de doublage accrus.

Il est en effet depuis longtemps prouvé théoriquement et expérimentalement que le doublage de fréquence est fortement exalté, sur des surfaces métalliques, par les plasmons de surface [SIM74], [MAR76], [SIM77], [CHE79], [COU87]. Par ailleurs, concernant les matériaux

magnétiques, il a été montré récemment que les plasmons de surface augmentaient également l'effet Kerr Magnéto-Optique (voir [SAF94] pour une étude en fonction de l'angle d'incidence, [GEE94] pour une étude spectroscopique, et [RIC99] pour un traitement théorique basé sur la technique dyadique de Green). On peut donc légitimement s'attendre à ce que les effets optiques non linéaires induits par l'aimantation soient exaltés. Cette idée avait déjà été envisagée théoriquement par V.A. Kosobukin [KOS86], [KOS96], mais n'avait jamais été démontrée expérimentalement.

Cette étude a été réalisée en collaboration avec V.Pavlov, et a fait l'objet de publications ([TES99], [PAV99]). L'objectif est en premier lieu de vérifier que la présence d'un plasmon de surface conduit à une exaltation de la réponse doublée en fréquence d'origine non magnétique et magnétique. Nous verrons également que cette méthode autorise la détermination d'un grand nombre de paramètres des systèmes multicouche.

Pour cela, nous étudierons dans un premier temps le coefficient de réflexion linéaire du système en fonction de l'angle d'incidence afin de mettre en évidence le plasmon. Une modélisation simple permet d'en déduire par ajustement les valeurs des épaisseurs et indices des couches métalliques.

Dans un second temps, une étude du signal doublé en fréquence en fonction de l'angle d'incidence et de la polarisation émergente permet l'observation de l'exaltation attendue. Un modèle mathématique utilisant les données précédemment déterminées permet une très bonne description du doublage de fréquence d'origine magnétique et non magnétique observé en prenant pour paramètres les éléments du tenseur susceptibilité non linéaire de chaque interface.

2.2. Conditions d'existence d'un plasmon de surface

La description mathématique des plasmons de surface date du début du siècle, et est fondée sur l'utilisation des équations de Maxwell. Nous allons ici utiliser un formalisme et des notations identiques à ceux du paragraphe II.4 (Doublage de fréquence dans les multicouches), et envisager successivement les configurations de polarisation s (TM) et p (TE). La dépendance temporelle des champs est supposée de la forme $\exp(-i\omega t)$. Si l'on suppose que des plasmons de surface sont excités, on doit avoir (voir figure (3.25)) une onde évanescente suivant la direction z, se propageant suivant la direction x. Les champs (\mathbf{E} ou \mathbf{H}) prennent alors respectivement dans les milieux 1 et 2 les formes:

$$F_1(x, z) = F_1 e^{(i\alpha_1 x + \beta_1 z)} \quad (3.1a) \quad \text{et} \quad F_2(x, z) = F_2 e^{(i\alpha_2 x - \beta_2 z)}. \quad (3.1b).$$

Les constantes de propagation α_j et β_j doivent avoir une partie réelle positive, de manière à ce que les champs soient décroissants lorsque l'on s'éloigne de la surface, et que la propagation se fasse vers les valeurs de x croissantes (voir figure (3.25)). En écrivant que F_j est solution

de l'équation de propagation $\Delta F_j + k_j^2 F_j = 0$ (avec $k_j = \omega^2 \epsilon_j / c^2$), on obtient $\alpha_j^2 = k_j^2 + \beta_j^2 > k_j^2$. La constante de propagation longitudinale du plasmon de surface est donc plus grande que celle d'une onde plane incidente sur la surface métallique.

Par conséquent, il est impossible d'exciter des plasmons de surface en éclairant directement le métal avec une onde plane. On doit donc avoir recours à un dispositif (un prisme ou un réseau le plus souvent) permettant d'accroître le vecteur d'onde de la lumière incidente afin qu'il puisse exister un couplage entre la lumière excitatrice et le plasmon de surface. Lorsque ce couplage est optimal, un maximum d'énergie est transmis aux plasmons de surface. On parle alors de couplage résonnant. Trois méthodes sont principalement utilisées:

- Le prisme de couplage en configuration d'Otto [OTT65], dans laquelle un prisme est approché à quelques micromètres de la surface métallique
- Le prisme de couplage en configuration de Kretschmann [KRE71], dans laquelle le prisme est accolé à la surface métallique. C'est la méthode que nous avons choisie d'utiliser, et qui est représentée par la figure (3.25).
- Les réseaux de diffraction.

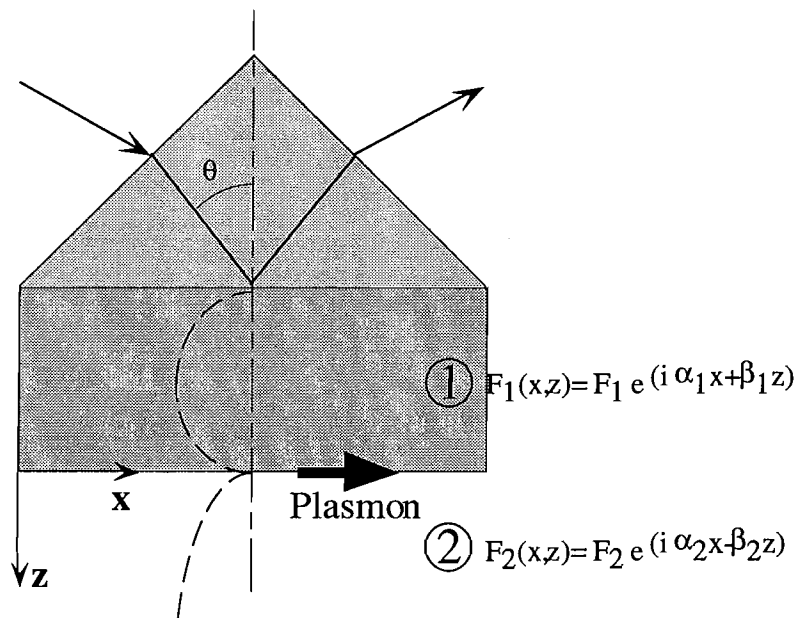


Figure (3.25): Dispositif de Kretschmann. Le milieu 1 est métallique, le milieu 2 est l'air. Le profil schématisé de la répartition des champs électriques dans la structure est donné en pointillés. A droite, les expressions des champs dans les milieux 1 et 2.

• Cas s (T.E.).

On a alors $E_{xj} = E_{zj} = H_{yj} = 0$, et $F_j(x, z) = E_{yj}(x, z)$. Les conditions aux limites en $z=0$ imposent la conservation des composantes tangentielles, soit $H_{1x} = H_{2x}$ et $E_{1y} = E_{2y}$.

On en déduit que $-\beta_1 E_{1y} = \beta_2 E_{2y}$, donc $\beta_1 = -\beta_2$. Or, β_1 et β_2 ont été définis comme positifs. Par conséquent, il est impossible d'avoir des solutions de forme (3.1a) et (3.1b) dans le cas T.E. Les plasmons de surface ne peuvent donc pas être excités en polarisation T.E.

• **Cas p (T.M.).**

On a dans ce cas $H_{xj} = H_{zj} = E_{yj} = 0$, et $F_j(x, z) = H_{yj}(x, z)$. Les conditions aux limites en $z=0$ s'écrivent alors: $H_{1y} = H_{2y}$ et $E_{1x} = E_{2x}$. On peut ici supposer, pour simplifier, que ϵ_1 et ϵ_2 sont réels (ceci est vrai pour l'air, et est une approximation raisonnable dans de nombreux matériaux. Pour l'or, par exemple, on a à 800 nm $\epsilon = -11,7 + 1,23i$). On obtient ainsi $\beta_1/\beta_2 = -\epsilon_1/\epsilon_2$. Puisque β_1 et β_2 sont positifs, il faut nécessairement que l'une des permittivités ϵ_1 ou ϵ_2 soit négative (et si le milieu 1 est l'air, la seule possibilité est $\epsilon_2 < 0$).

Les matériaux présentant une permittivité de partie réelle négative sont:

- les diélectriques ou les semi-conducteurs, lorsque la fréquence de l'onde lumineuse se trouve dans leur bande d'absorption,
- les métaux, lorsque la fréquence de l'onde lumineuse est inférieure à la fréquence plasma du métal.

C'est évidemment le second cas qui nous intéresse ici.

Tout au long de cette section, nous allons donc considérer des plasmons de surface excités dans des couches métalliques à l'aide d'un prisme en configuration de Kretschmann et pour une polarisation p.

2.3 Caractérisation à la fréquence fondamentale.

2.3.1 Système et résultats expérimentaux

La configuration que nous venons de décrire est très simple, mais il est également possible d'obtenir des plasmons de surface lorsque le milieu métallique 1 est remplacé par une structure plus complexe, y compris lorsque certains des matériaux présents ne remplissent pas les conditions énoncées précédemment. Les caractéristiques physiques de chacune des couches (indices et épaisseurs) influent alors beaucoup sur les propriétés de l'ensemble. Ceci est à la base de capteurs très sensibles (voir par exemple [LON88]).

Afin de pouvoir réaliser une étude du phénomène en fonction de l'angle d'incidence sur la structure, nous avons remplacé le prisme classique à base triangulaire représenté sur la figure (3.25) par un demi cylindre de verre. L'utilisation d'une telle lentille cylindrique ne modifie en rien les conditions d'existence du plasmon, mais permet d'obtenir un angle d'incidence nul sur la surface du verre quel que soit l'angle d'incidence sur l'échantillon. Les pertes par réflexion sur la surface du verre sont ainsi minimisées.

L'échantillon que nous avons utilisé ici a été réalisé par évaporation sous ultravide, selon une procédure décrite dans [REN87]. Sur un substrat de verre (float glass) plan et épais de 1 mm, est déposée une couche tampon d'or de 25 nm d'épaisseur, permettant d'obtenir de grands

crystallites de structure cubique à face centrée et de réduire la rugosité. Une couche de cobalt d'épaisseur 3 nm (soit 15 plans atomiques), de structure hexagonale compacte et dont les plans (0001) sont parallèles à la surface du film est ensuite déposée. Enfin, cette couche de cobalt est protégée par une couche d'or de 3 nm d'épaisseur. Pour ces épaisseurs de cobalt, l'axe de facile aimantation est parallèle au plan des films.

L'utilisation de la configuration de Kretschmann nécessite que la couche soit déposée sur le prisme. Nous avons donc collé l'échantillon au dos du prisme (verre contre verre) à l'aide d'une huile d'indice adapté. De cette manière, l'interface entre le substrat et le prisme est optiquement «effacée», et l'on peut considérer l'ensemble prisme et substrat comme une seule lentille cylindrique sur laquelle sont déposées les couches métalliques. La couche d'or de protection (3 nm) se trouve alors sur la face extérieure de la structure, comme représenté sur la figure (3.26).

Il est alors possible de mesurer le coefficient de réflexion du système, dans la configuration dite ATR (Réflexion Totale Atténuée). Le faisceau, polarisé T.M. est focalisé sur la surface de l'échantillon, puis recueilli après réflexion sur celui-ci. Ce signal est mesuré à l'aide de la caméra (après atténuation par des filtres neutres pour éviter la saturation). Les instruments (en particulier la caméra) sont trop lourds pour être posés sur une platine goniométrique standard. Seul l'échantillon est fixé sur une monture rotative graduée. La caméra et la lentille sont fixés sur une plaquette qui est déplacée pour être alignée avec le faisceau.

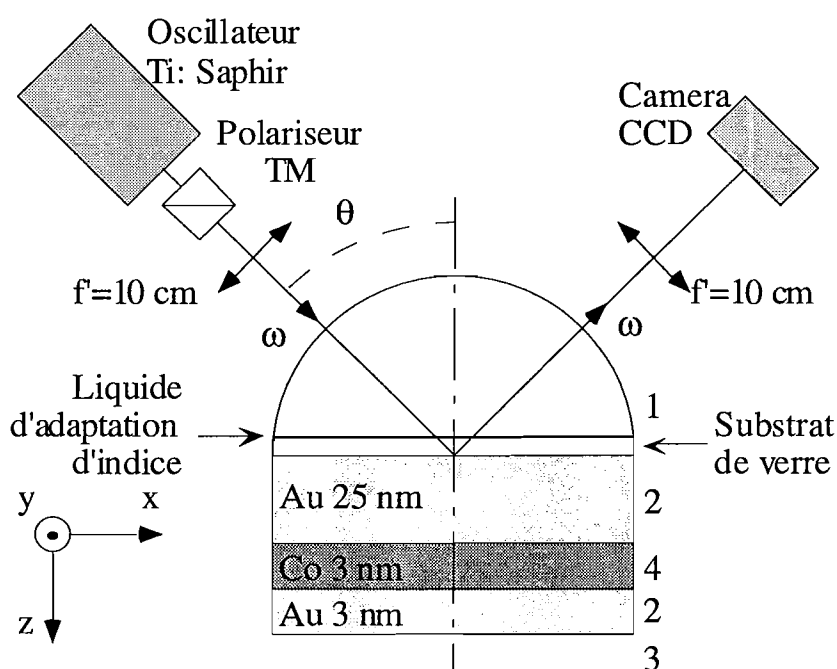


Figure (3.26): Montage expérimental pour la caractérisation linéaire du plasmon de surface en configuration ATR.

Nous avons ainsi mesuré le coefficient de réflexion de l'ensemble (rapport du flux réfléchi par le système au flux envoyé sur celui-ci) en fonction de l'angle d'incidence. Les résultats expérimentaux sont représentés par des cercles sur la figure (3.27). Le coefficient de réflexion du système augmente jusqu'à l'angle de réflexion totale $\theta_t \approx 43,5^\circ$, puis décroît fortement jusqu'à des valeurs proches de zéro pour $\theta_p \approx 45^\circ$. Ce minimum est caractéristique de l'excitation de plasmons de surface: la quasi totalité de la lumière est alors couplée à l'interface. Le même type de comportement a été observé par Safarov [SAF94] dans une structure Au/Co/Au, à la longueur d'onde de 632,8 nm.

D'après [AGR82], les plasmons de surface sont excités pour un vecteur d'onde k_p qui vérifie l'équation : $k_p = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}}$, où ϵ_1 et ϵ_2 sont les parties réelles des constantes diélectriques des deux milieux à l'interface desquels le plasmon est excité. Le plasmon est alors excité autour d'un angle θ_p tel que:

$$\theta_p = \arcsin\left(\frac{k_p c}{\omega \sqrt{\epsilon}}\right), \quad (3.2)$$

où ϵ est la constante diélectrique du demi-cylindre de verre.

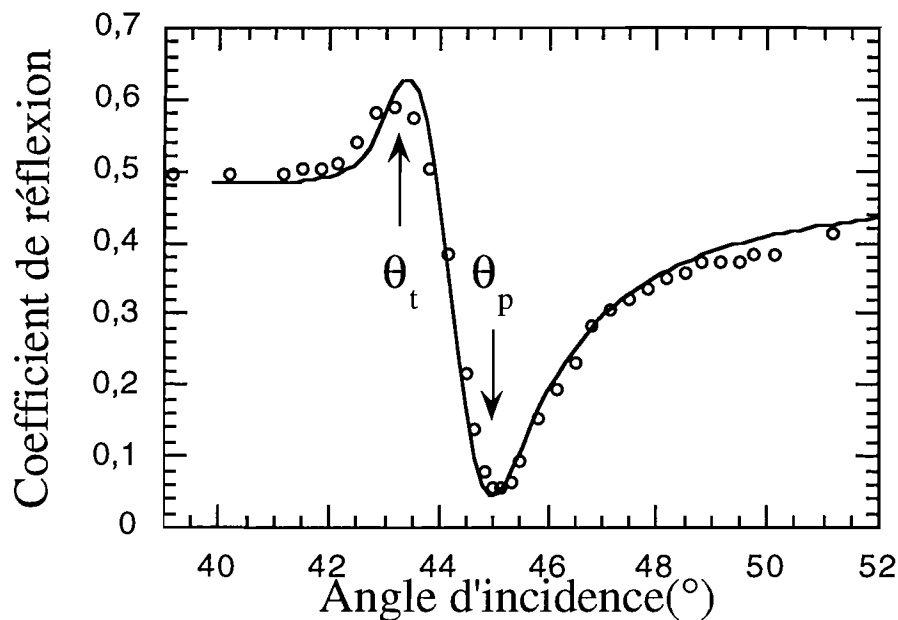


Figure (3.27): Coefficient de réflexion du système étudié en fonction de l'angle d'incidence. Les cercles correspondent aux mesures expérimentales, la ligne continue à l'ajustement décrit plus loin. θ_t est l'angle de réflexion interne totale sur le prisme et θ_p l'angle autour duquel est couplé le plasmon de surface.

2.3.2 Modélisation du phénomène. Détermination des indices et des épaisseurs

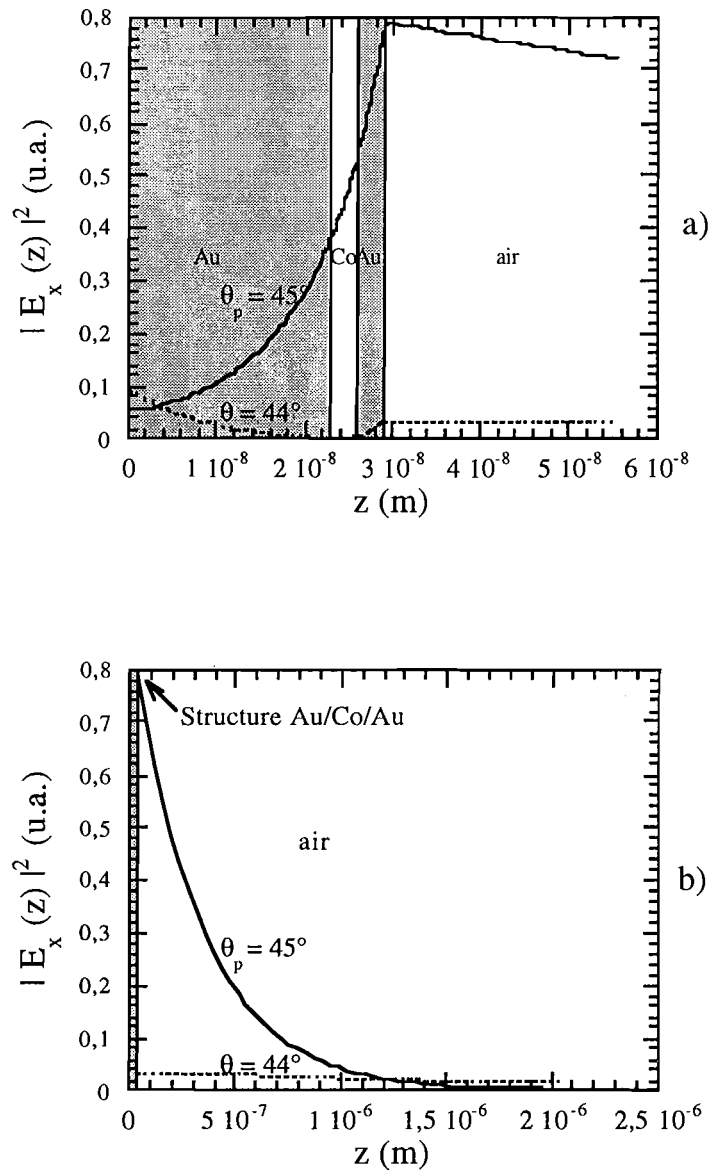
Le phénomène de plasmon de surface peut être entièrement décrit à l'aide des équations de Maxwell et des conditions de continuité dans un système multicouche. Le modèle développé au paragraphe 4 du chapitre précédent est donc directement applicable pour calculer le coefficient de réflexion du système en fonction de l'angle d'incidence sur un système multicouche. Nous avons adjoint à ce modèle un calcul permettant de tenir compte du léger étalement angulaire du faisceau introduit par la présence de la lentille de focalisation (il suffit d'effectuer pour chaque angle θ la moyenne des résultats obtenus pour les angles $\theta \pm \text{Arctan}(f/r)$, où $f = 100$ mm est la distance focale de la lentille et $r \approx 0,5$ mm le rayon du faisceau). Les pertes introduites par les réflexions sur la surface du prisme ont également été prises en compte.

Les paramètres de cette modélisation sont les épaisseurs des couches et leurs indices. Il est alors possible d'obtenir par ajustement des évaluations expérimentales précises de certains de ces paramètres. Ainsi, en choisissant à 800 nm les indices $n_{\text{verre}} = 1,511$, $n_{\text{Au}} = 0,195 + i.5,230$ et $n_{\text{Co}} = 2,480 + i.4,788$ (indices de l'or et du cobalt d'après [JOH74]), on obtient la courbe continue de la figure (3.27) pour une épaisseur du substrat d'or de 23 nm (au lieu de 25 nm prévus). L'accord avec les données expérimentales est alors assez bon. Nous adopterons donc cette valeur de l'épaisseur de la couche d'or par la suite.

Il est également possible d'utiliser ce modèle pour calculer la répartition des champs électriques dans la structure, comme sur les figures (3.28 a) et (3.28 b). Le module de la composante continue du champ électrique y est représenté pour les angles θ_p et $\theta = 44^\circ$, près de la résonance plasmon. La différence entre ces deux cas est radicale. Dans le dernier cas, on a dans la couche d'or une décroissance progressive du champ, due essentiellement à l'absorption. Dans l'air, la figure (3.28 b) montre que la décroissance de la composante transmise est très lente (et serait nulle plus loin de la résonance plasmon).

Par contre, dans le cas où $\theta = \theta_p = 45^\circ$, un plasmon est couplé sur la dernière interface. Le champ électrique y est fortement exalté, ainsi qu'aux interfaces de la couche de cobalt proche. Dans l'air, la décroissance du champ est rapide, ce qui est caractéristique de telles ondes évanescentes: à 2 micromètres de la structure, le champ est déjà quasiment nul.

Comme on peut le voir sur la figure (3.28 a), le champ électrique au niveau de l'interface Co / Au est augmenté de près de deux ordres de grandeur par rapport à la situation hors résonance. Le doublage de fréquence sera donc très efficace à cette interface ainsi qu'à l'interface Au / air (et ce d'autant plus que l'efficacité de conversion dépend du carré du champ électrique). Même si l'absorption à la fréquence double dans la couche tampon d'or est loin d'être négligeable, on peut donc s'attendre à une augmentation du signal à la fréquence double.



Figures (3.28 a) et (3.28 b): Normes du champ électrique E_x dans la structure et dans l'air en fonction de la coordonnée z pour deux angles d'incidence θ distincts. $\theta=45^\circ$ correspond à l'angle pour lequel un plasmon de surface est couplé. À $\theta=44^\circ$, on se situe hors de la résonance plasmon. Les graphes a et b correspondent à deux échelles différentes en z .

2.4 Caractérisation à la fréquence double

2.4.1 Système et résultats expérimentaux

Le système de mesure utilisé ici, très similaire à celui que nous avons utilisé jusqu'à présent, est représenté sur la figure (3.29). À nouveau, la caméra, l'analyseur et les filtres BG40 sont fixés sur une plaque mobile permettant un alignement rapide avec le faisceau fondamental lorsque l'angle d'incidence est changé.

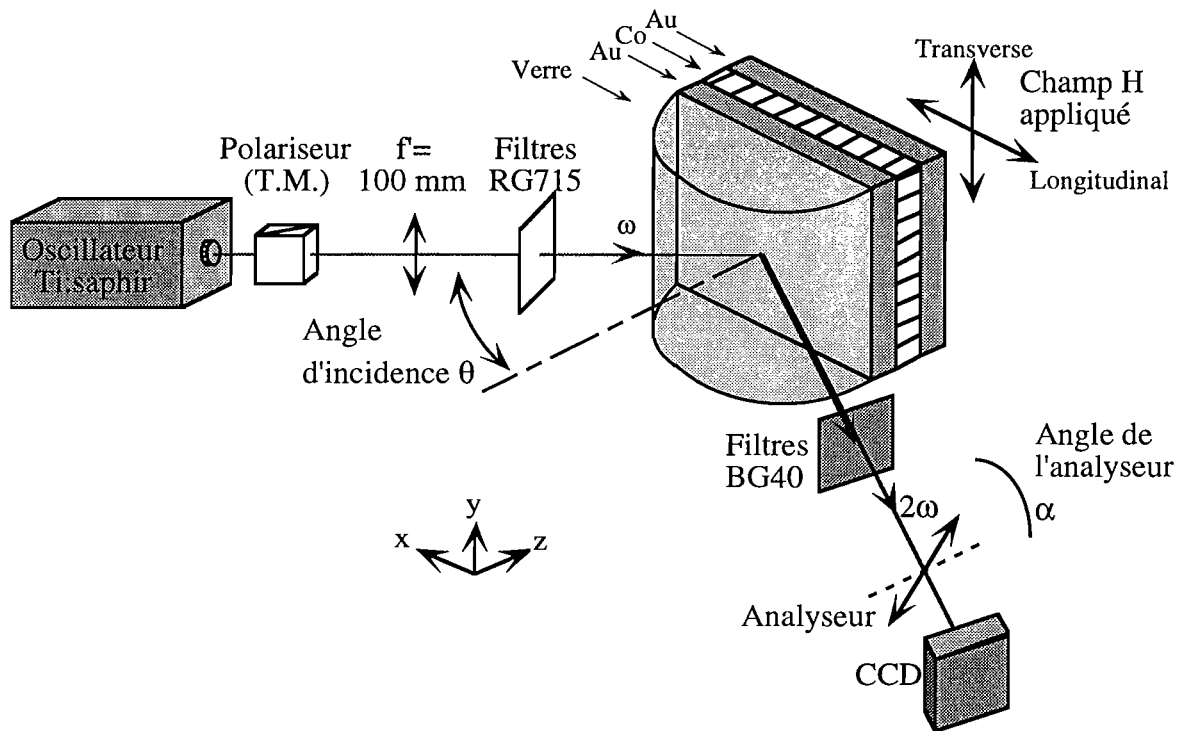


Figure (3.29): Schéma du montage pour la mesure du doublage de fréquence. L'angle de l'analyseur est défini par rapport à la polarisation p , associée à $\alpha=0$.

Des bobines de Helmholtz associées à un générateur d'impulsions permettant d'obtenir des champs de l'ordre de 1 kOe pendant une centaine de millisecondes ont été utilisées, en configuration longitudinale et transverse, pour retourner l'aimantation de ce film.

Mesures polarimétriques en configuration longitudinale

Pour un angle d'incidence donné, il est possible, en faisant varier l'angle de l'analyseur, de réaliser une étude similaire à celle décrite au paragraphe II.3.1.2. La polarisation incidente est

p et le champ appliqué est longitudinal. On a alors, d'après la table (2.2), une polarisation non linéaire de la forme:

$$\begin{pmatrix} \mathbf{P}_x^{(2\omega)} \\ \mathbf{P}_y^{(2\omega)} \\ \mathbf{P}_z^{(2\omega)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \chi_{xxz}^+ & 0 \\ \chi_{yxx}^- & 0 & \chi_{yzz}^- \\ \chi_{zxx}^+ & 0 & \chi_{zzz}^+ \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2 \\ 2E_x E_z \\ E_z^2 \end{pmatrix}. \quad (3.3)$$

Il est alors possible d'exprimer le contraste magnétique sous la forme donnée par (2.18):

$$\rho(\alpha) = \frac{I(\alpha, +M) - I(\alpha, -M)}{I(\alpha, +M) + I(\alpha, -M)} = 2 \frac{\Phi_k \tan \alpha \cos \varphi}{1 + \Phi_k^2 \tan^2 \alpha},$$

où Φ_k est le rapport et φ la différence de phase entre les susceptibilités magnétique et non magnétique données dans (3.3). Ces paramètres sont liés à la rotation et à l'ellipticité non linéaire ([KOO95], [STR96]).

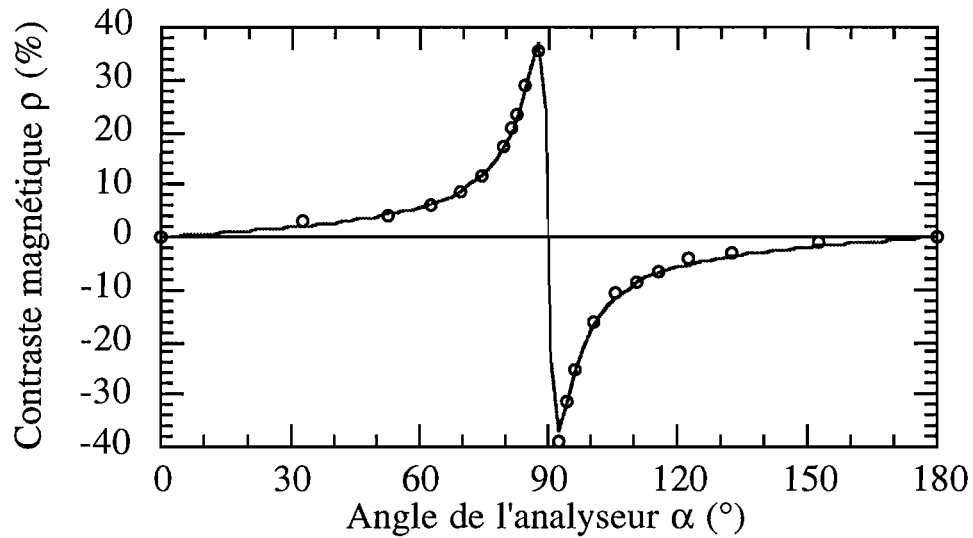


Figure (3.30): Contraste magnétique en fonction de l'angle de l'analyseur par rapport à la polarisation p . L'angle d'incidence θ est de $45,2^\circ$. La courbe en trait plein est obtenue avec l'équation (2.18) par ajustement.

Nous avons choisi ici l'incidence $\theta=45,2^\circ$, proche de la résonance plasmon, pour effectuer ces mesures (figure (3.30)). Il est alors possible d'obtenir, par ajustement sur ces valeurs expérimentales de l'expression (2.18), les valeurs des paramètres $\Phi_k = 0,045 \pm 0,001$ et $\varphi = 68,2^\circ \pm 0,3^\circ$. Ces paramètres seront exploités par la suite.

Mesures en fonction de l'angle d'incidence.

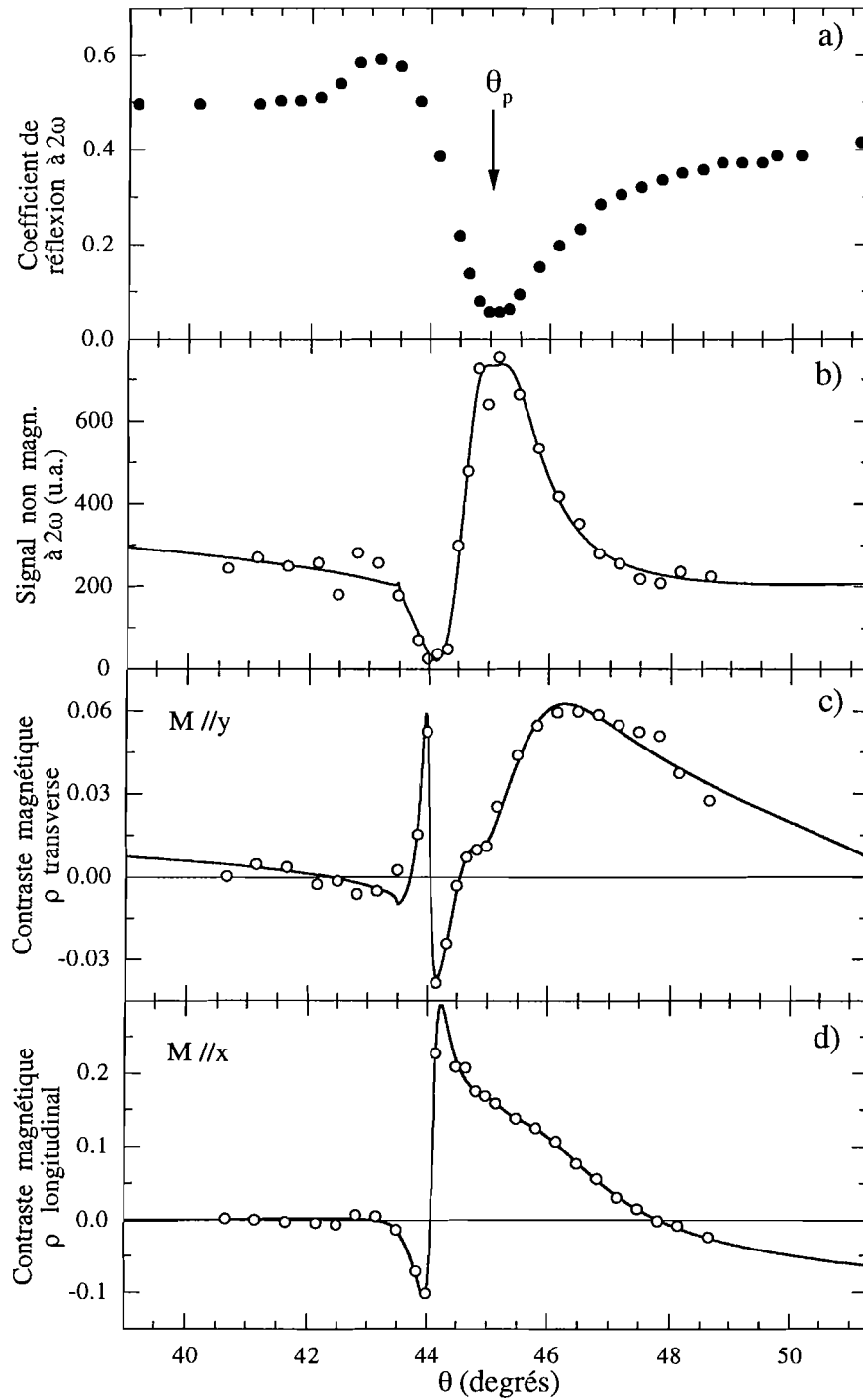


Figure (3.31a-d): Variations avec l'angle d'incidence θ du coefficient de réflexion à la fréquence fondamentale (a), du signal total non magnétique à la fréquence double (b) et du contraste magnétique en configuration transverse (c), et longitudinale d).

Les variations du signal doublé en fréquence pour des valeurs de l'angle d'incidence variant entre $40,5^\circ$ et $48,5^\circ$, c'est à dire $\pm 4^\circ$ environ autour de θ_p , sont présentées sur la figure (3.31), dans trois configurations différentes (3.31b, c et d).

- La figure (3.31a) rappelle les variations du coefficient de réflexion linéaire, déjà présentées à la figure (3.27).
- La figure (3.31b) présente les variations du signal total doublé en fréquence en fonction de θ_p , pour une polarisation incidente p et un analyseur également en polarisation p ($\alpha=0^\circ$). Dans cette configuration, seules les composantes $P_x^{(2\omega)}$ et $P_z^{(2\omega)}$ de la polarisation non linéaire interviennent. Comme le montre l'expression (3.3), il n'y a alors aucune contribution impaire (donc magnétique) au doublage de fréquence. Nous avons vérifié expérimentalement que ce signal ne dépend pas de l'aimantation. Ce signal total non magnétique a un minimum autour de $\theta \approx 44^\circ$, un maximum près de l'angle θ_p , puis est constant pour des angles supérieurs à 47° .

On a donc bien, en conséquence du fort champ électrique suscité par le plasmon de surface (voir Fig. (3.28)), une exaltation du signal doublé en fréquence autour de l'angle θ_p .

Nous avons alors changé la position de l'analyseur et mesuré le signal doublé en fréquence pour deux sens opposés de l'aimantation, en configuration longitudinale et transverse.

- Le contraste magnétique, mesuré en configuration d'aimantation transverse, pour un polariseur p et un analyseur s, est donné par la figure (3.31c). L'analyseur a été fixé dans la position $\alpha=80^\circ$, pour laquelle nous avons obtenu un bon rapport signal à bruit (cf. figure (3.30) et la discussion § II.3.1.2). Le contraste magnétique change de signe trois fois dans un intervalle d'angle réduit, puis augmente fortement et a un maximum large à $\theta \approx 46,5^\circ$.
- Le contraste magnétique en configuration longitudinale est donné par la figure (3.31d). Le contraste magnétique présente deux extrema aigus pour $\theta \approx 44^\circ$, décroît rapidement près de l'angle θ_p , puis change de signe à $\theta \approx 48^\circ$.

L'explication des changements de signe du contraste magnétique découle des remarques formulées au paragraphe II.2.2.4 concernant les interfaces symétriques: les interfaces Au/Co et Co/Au présentes dans notre système sont associées à des éléments de tenseur de signes opposés. Dès lors, le signe du contraste magnétique va se trouver inversé suivant que le doublage s'effectue préférentiellement à une interface ou à l'autre. Comme on peut le constater sur la figure (3.28a), l'interface Co/Au la plus extérieure est soumise à un champ électrique plus élevé que l'interface Au/Co lorsqu'un plasmon est excité. Au contraire,

lorsque l'on se situe loin de la résonance plasmon, c'est l'interface Au/Co qui, en raison de l'absorption, reçoit le champ électrique le plus fort. Les changements de signe subis par le contraste magnétique dépendent donc essentiellement des changements de la répartition du champ électrique entre les interfaces.

Il est ainsi possible, suivant que l'on se trouve à θ_p ou hors de la résonance plasmon, d'«éclairer» préférentiellement une interface ou l'autre à la fréquence fondamentale, donc de sélectionner celle des interfaces que l'on va observer préférentiellement à la fréquence double.

2.3.2 Modélisation

Afin de mieux comprendre et d'expliquer les phénomènes observés, nous avons développé deux modèles qui, même s'ils utilisent des principes différents, ont donné sensiblement les mêmes résultats.

Modèle basé sur la propagation dans les multicouches

Le premier est une application directe du modèle développé au paragraphe II.4 sous l'environnement LabView. Divers sous-programmes ont été adjoints à ce modèle afin de tenir compte des spécificités du problème des plasmons de surface.

La «face avant» de ce programme est montrée sur la figure (3.32). Il permet de faire varier chacun des paramètres que nous avons mentionnés (indices aux deux fréquences, épaisseurs des couches, susceptibilités non linéaires), et de visualiser instantanément et simultanément (le calcul complet dure moins de 0,5 s) leur influence sur les variations:

- du coefficient de réflexion à la fréquence fondamentale en fonction de θ .
- du signal total non magnétique en fonction de θ .
- du contraste magnétique en fonction de θ .
- du contraste magnétique en fonction de l'angle de l'analyseur.

Dans chaque cas, il est possible d'effectuer la comparaison avec les données obtenues expérimentalement.

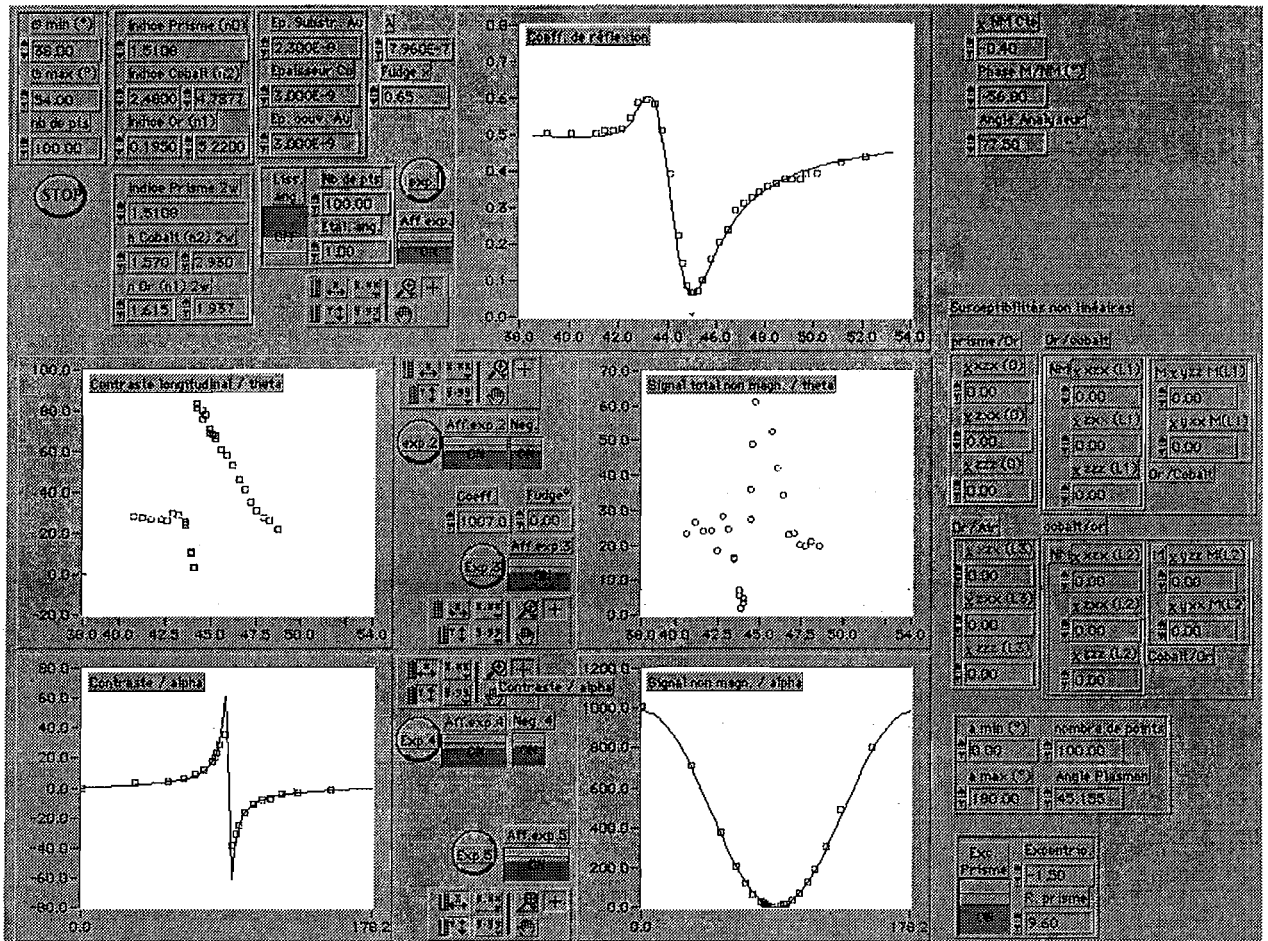


Figure (3.32): Face avant du programme de simulation développé sous l'environnement LabView.

Nous avons donc utilisé les épaisseurs et les indices à la fréquence fondamentale validés expérimentalement au paragraphe 2.3.2. Les indices à la fréquence double ont été pris dans [JOH74].

Dès lors, comme décrit précédemment, on peut calculer les champs au fondamental à chaque interface en fonction de l'angle d'incidence. En prenant pour paramètres les valeurs complexes des éléments du tenseur susceptibilité, il est possible de calculer les éclairagements $I(+M)$ et $I(-M)$, donc le contraste magnétique, en fonction de θ . Les paramètres Φ_k et φ (rapport et différence de phase entre les composantes magnétiques et non magnétiques) obtenus au paragraphe 2.3.1 sont également pris en compte dans la détermination des éléments du tenseur $\chi^{(2)}_{ijk}$, ce qui diminue notablement les degrés de liberté sur leur détermination. Afin de diminuer le nombre de paramètres libres, les susceptibilités non linéaires des interfaces Au / Co et Co / Au sont supposées égales en module mais de signes opposés.

Malgré cela, le nombre de paramètres libres reste important pour les 4 interfaces:

- en configuration longitudinale, pour un faisceau incident polarisé p, on a, d'après la table (2.2), 5 paramètres complexes indépendants: χ^+_{xxz} , χ^+_{zxx} , χ^+_{zzz} , χ^-_{yxx} et χ^-_{yzz} ,
- en configuration transverse, pour un faisceau incident polarisé p, on a, d'après la table (2.3), 6 paramètres complexes indépendants: χ^+_{xxz} , χ^+_{zxx} , χ^+_{zzz} , χ^-_{zxx} , χ^-_{xxx} et χ^-_{xzz} ,
- pour chaque interface non magnétique, toujours pour un faisceau incident polarisé p, on a 3 éléments de tenseur non nuls: χ_{xxz} , χ_{zxx} , χ_{zzz} .

Au total, on a donc en configuration longitudinale 11 paramètres complexes indépendants (3 pour les interfaces verre / or et or / air, et 5 pour l'interface Co/Au) et deux conditions (sur Φ_k et φ) liant ces paramètres. En configuration transverse, le nombre de paramètres complexes s'élève à 12.

Dans chaque cas, l'ajustement se fait simultanément sur deux courbes: le signal total non magnétique (courbe (3.31b)) et le contraste magnétique longitudinal (3.31c) ou transverse (3.31d), ce qui améliore la précision du calcul.

Le résultat des ajustements obtenus est représenté par les courbes continues de la figure (3.31). On peut constater que l'accord avec les résultats expérimentaux est bon.

Évidemment, le nombre élevé de paramètres nous interdit de prétendre donner des valeurs expérimentales fiables pour les susceptibilités non linéaires. Il apparaît en effet que plusieurs paramètres (certains éléments pairs du tenseur susceptibilités en particulier) jouent des rôles très similaires, voire interchangeable, sur le comportement du système. Plusieurs jeux de paramètres permettent donc une description acceptable du système. Mais toutes ces solutions sont très proches et satisfont quelques règles de vraisemblance: les valeurs des susceptibilités sont toutes du même ordre de grandeur, et les interfaces verre / or et or / air ont des susceptibilités proches mais opposées (il s'agit dans les deux cas d'interfaces entre l'or et un milieu amorphe).

On a donc, grâce à ce modèle, une bonne description qualitative des phénomènes observés.

Le modèle non local

Dans le modèle que nous venons d'utiliser, les indices et certaines composantes des champs sont considérées comme discontinus aux interfaces. Pourtant, ces grandeurs varient physiquement, c'est à dire continûment, à l'échelle microscopique. Dans la mesure où nous nous intéressons justement à ces interfaces, il peut être intéressant d'utiliser une théorie dite non locale. Il s'agit là d'utiliser pour les champs électriques des fonctions variant abruptement mais de manière continue aux interfaces, et de considérer des susceptibilités non localisées (c'est à dire considérer que la réponse non linéaire a lieu sur une certaine étendue

spatiale suivant la coordonnée z). Ce type de théorie a été développé dans le cas d'une structure métallique tricouche près de la résonance plasmon par V.A. Kosobukin dans [KOS86] et [KOS96]. Nous avons simplement adapté cette théorie à notre cas de figure. V. Pavlov a développé un programme en langage C permettant le calcul du contraste magnétique et du signal total en prenant à nouveau pour paramètres les valeurs des indices, des épaisseurs et des susceptibilités non linéaires.

Nous allons ici donner les grandes lignes de ce modèle, détaillé dans [KOS86] et [KOS96]. L'onde monochromatique incidente, à la pulsation fondamentale ω est associée à un champ électrique $\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r})$ et à une polarisation $\mathbf{P}(\omega, \mathbf{r})$ dans le milieu. Ces champs vérifient l'équation :

$$\text{rot rot} \mathbf{E}(\omega, \mathbf{r}) - k_0^2 \varepsilon(z, \omega) \mathbf{E}(\omega, \mathbf{r}) = 4\pi k_0^2 \mathbf{P}(\omega, \mathbf{r}) \quad (3.4)$$

où $k_0 = \omega/c$ et $\varepsilon(z, \omega)$ prend les valeurs ε_{Au} , ε_{Co} , $\varepsilon_{\text{verre}}$ ou ε_{Air} suivant le milieu considéré. D'après [KOS96], cette équation peut être résolue pour la composante de Fourier $\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r}) = \mathbf{E}(z; \omega, \mathbf{k}) \exp(i\mathbf{k}\mathbf{x})$ correspondant au vecteur d'onde $\mathbf{k} = \mathbf{x}k_0 \sqrt{\varepsilon_1(\omega)} \sin \theta$. Lorsque la non linéarité est faible, et c'est notre cas, la composante de Fourier de la polarisation $\mathbf{P}^{2\omega}(z; 2\omega, 2\mathbf{k})$ peut s'écrire :

$$P_i(z; 2\omega, 2\mathbf{k}) = (2\pi)^3 \iint \chi_{ijk}^{(2)}(z, z_1, z_2; \omega, 2\omega, \mathbf{k}, 2\mathbf{k}) E_j(z_1; \omega, \mathbf{k}) E_k(z_2; \omega, \mathbf{k}) dz_1 dz_2.$$

Ici, la susceptibilité non linéaire $\chi^{(2)}_{ijk}$ est supposée non locale en z . Les fonctions E_j et E_k sont discontinues aux interfaces, et nous utiliserons donc, suivant l'approche non-locale, les fonctions continues F_j et F_k pour décrire le champ électrique à la pulsation fondamentale. Ces fonctions sont des solutions de l'équation (3.4), calculées à l'aide de fonctions de Green, et sont données dans [KOS96] pour les interfaces d'une structure tricouche. On peut alors écrire le champ électrique à la fréquence double:

$$E_i^{(2\omega)}(z; 2\omega, 2\mathbf{k}) = A_{ijk}(z; \omega, 2\omega, \mathbf{k}, 2\mathbf{k}) F_j(z; \omega, \mathbf{k}) F_k(z; \omega, \mathbf{k}),$$

où le tenseur A_{ijk} est une fonction intégrale de la susceptibilité non linéaire χ_{ijk} . Afin de calculer le champ électrique total généré à la fréquence double par la structure Au/Co/Au, il est nécessaire de prendre en compte les interférences multiples entre les différentes contributions au doublage de fréquence. Le champ électrique à la fréquence double dans le prisme de verre peut alors s'écrire comme la somme des contributions de chacune des interfaces, pondérées par les facteurs de Fresnel associés à l'interface ab pour la fréquence double, notés T^{ab} . En sommant successivement les contributions des interfaces air/Au, Au/Co, Co/Au et air/Au, on obtient:

$$E_i^{(2\omega)} = A_{ijk}^{21} F_j^{21} F_k^{21} f(\theta) - T^{21} A_{ijk}^{42} F_j^{42} F_k^{42} f(\theta) e^{2iK_2 d_2} + T^{42} T^{21} A_{ijk}^{42} F_j^{24} F_k^{24} f(\theta) e^{2i(K_4 d_4 + K_2 d_2)} \\ + T^{24} T^{42} T^{21} A_{ijk}^{32} F_j^{32} F_k^{32} f(\theta) e^{2i(K_2 d'_2 + K_4 d_4 + K_2 d_2)}$$

Les exposants font ici références aux interfaces, suivant la numérotation des milieux donnée sur la figure (3.26): 21 désigne l'interface Au/verre, 24 Au/Co, 42 Co/Au et 32 l'interface air/Au. d_2 , d'_2 et d_4 sont les épaisseurs respectives de la couche tampon d'or, de la couche de couverture d'or, et de la couche de cobalt. La fonction $f(\theta)$ doit être prise égale à $\cos\theta$ ou $\sin\theta$ suivant la polarisation considérée pour le faisceau doublé en fréquence.

Le programme développé pour ce modèle utilise les éléments du tenseur A_{ijk} comme paramètres pour calculer, à l'aide de cette dernière expression, le champ électrique à la fréquence double, puis le signal total non magnétique et le contraste magnétique.

Il faut noter que le modèle non local utilise également les susceptibilités non linéaires comme paramètres.

Les deux modèles permettent donc d'obtenir des susceptibilités effectives. Même s'ils diffèrent dans l'approche formelle, ces modèles n'ont finalement qu'une différence fondamentale: le modèle non local utilise des fonctions continues F_j^{ab} calculées à partir de fonctions de Green, alors que le modèle basé sur la propagation dans les multicouches utilise le champ au niveau de l'interface physique (ou la moyenne des champs de chaque côté de l'interface si ce champ est continu, voir §II.4).

De fait, les ajustements obtenus avec ces deux méthodes diffèrent au plus de 5%. Outre une bonne description des résultats expérimentaux, ces deux modèles nous ont permis de valider les idées qui les fondent. En particulier, l'approche non locale développée par Kosobukin pour le calcul du doublage de fréquence n'avait, à notre connaissance, jamais été l'objet d'une validation expérimentale.

2.5 Possibilités de la méthode

Nous l'avons vu, l'utilisation des plasmons de surface et d'un modèle approprié permet (au moins en théorie) la détermination des éléments de tenseur associés à chaque interface. Ceci n'est pas spécifique à l'utilisation des plasmons: c'est plus particulièrement l'étude en fonction de l'angle d'incidence qui, en permettant de solliciter différents éléments du tenseur, en autorise la détermination.

Une telle étude vient d'être réalisée par A.Kirilyuk et al. [KIR98] sur le système CoNi/Pt. Cette étude est considérablement simplifiée par l'utilisation d'un faisceau incident polarisé s, puisque le nombre d'éléments de tenseur qui interviennent est alors réduit à un élément pair χ_{zyy} , et un élément impair, χ_{xyy} , pour une interface magnétique (et un élément seulement, χ_{zyy} , pour une interface non magnétique). Malheureusement, cette polarisation ne permet pas, comme nous l'avons vu, l'excitation de plasmons de surface. Dans le cadre de l'utilisation de plasmons, nous sommes donc condamnés à employer, comme nous l'avons fait, la configuration plus complexe où le faisceau incident est polarisé p.

Cependant, comme nous l'avons mentionné à la fin du paragraphe 2.3.1, la méthode que nous venons d'exposer présente un avantage intéressant: elle permet de favoriser le doublage de fréquence à une interface plutôt qu'à une autre. Comme on peut le vérifier sur la figure (3.28a), le champ électrique est très intense sur les interfaces les plus éloignées du prisme lorsque le plasmon de surface est excité. À l'opposé, lorsque l'on s'éloigne de l'angle θ_p , ce sont les interfaces situées à proximité du prisme qui reçoivent les plus forts champs électriques, en raison de la forte absorption qui a lieu dans les couches métalliques. Suivant que l'on se place dans l'une ou l'autre de ces situations, on va donc favoriser le doublage de fréquence sur ces interfaces. On a donc là un moyen de sélectionner, par un choix approprié de l'angle d'incidence, l'interface que l'on va préférentiellement sonder par doublage de fréquence.

Enfin, et c'est sans doute le principal intérêt de la technique, il est possible d'obtenir grâce à l'utilisation de plasmons de surface une exaltation du signal doublé en fréquence. Compte tenu de la faiblesse des signaux que nous avons généralement à détecter, ceci constitue un avantage certain.

Afin d'évaluer le gain ainsi obtenu, nous avons calculé à l'aide de notre modèle, avec les mêmes paramètres que ceux que nous avons déterminés précédemment, le signal qu'il est possible d'attendre de la même structure Au/Co/Au utilisée dans la configuration de réflexion «classique». Pour cela, la structure a été retournée (voir les inserts de la figure (3.33)), c'est à dire illuminée par la couche d'or la plus fine, ce qui constitue la configuration la plus favorable.

Comme on peut l'observer sur la figure (3.33), l'excitation de plasmons de surface permet, pour l'angle θ_p , d'obtenir un signal doublé en fréquence environ *dix fois plus grand*.

Une perspective de recherche intéressante dans la prolongation de ce travail consiste à optimiser la structure multicouche afin d'exciter le plasmon de surface non pas, comme c'est le cas ici, à l'interface Au/air, mais plutôt à l'interface Co/Au. Le programme que nous avons développé est en effet tout à fait adapté à la conception d'une structure dans laquelle les champs électriques seraient optimaux aux interfaces magnétiques et pour laquelle le doublage induit par l'aimantation serait plus grand encore.

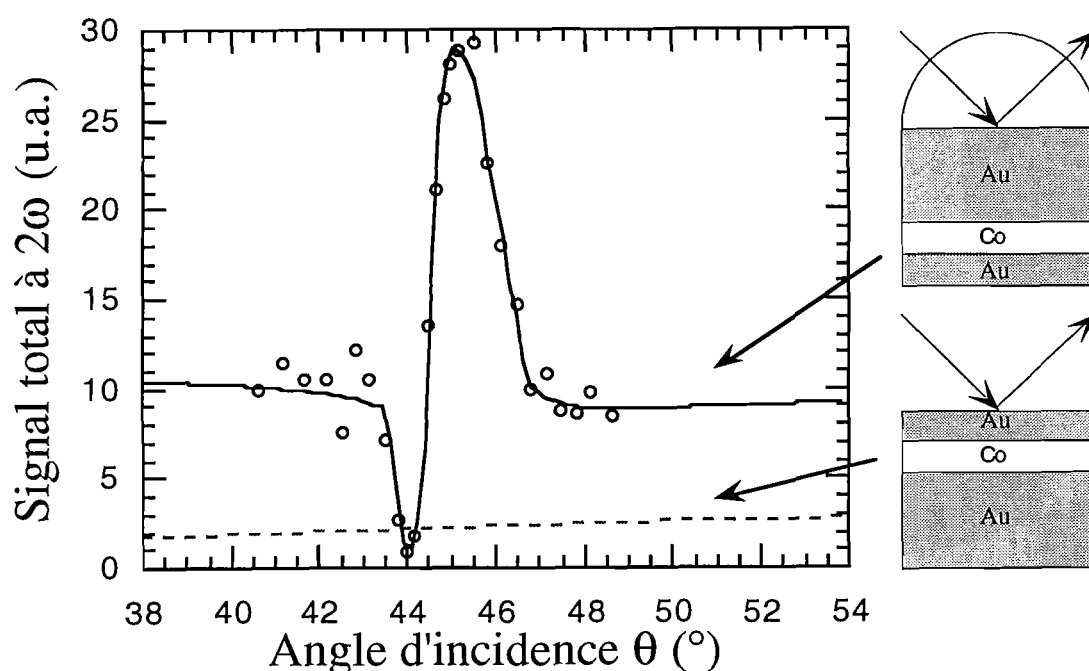


Figure (3.33): Comparaison entre le signal doublé en fréquence engendré par une structure Au/Co/Au, d'une part en configuration plasmons de surface (cercles: points expérimentaux, courbe continue: modélisation), et d'autre part en configuration «classique» en réflexion (ligne interrompue: calcul effectué en utilisant le même modèle). En insert, un schéma de chacune des configurations. Noter que la structure a été retournée.

3. Imagerie par doublage de fréqn de mieux interpréter les résultats obtenus par doublage de fréquence sur des interfaces, il est nécessaire d'avoir recours à des techniques d'imagerie. Si l'on envisage par exemple l'usage du doublage de fréquence pour la caractérisation de la rugosité, il semble indispensable de connaître la structure de l'interface et la répartition des inhomogénéités physico-chimiques à une échelle macroscopique voire microscopique.

Dans le cas d'échantillons magnétiques, la connaissance des inhomogénéités de l'aimantation et de leur structure en domaines est nécessaire à la compréhension de nombreux phénomènes. Dans les cas les plus simples, l'aimantation a un sens bien défini au sein de ces domaines. Plusieurs domaines où l'aimantation a des orientations différentes coexistent généralement en champ nul sur un même échantillon. L'étude micromagnétique de leurs caractéristiques (taille, forme, orientation et sens de l'aimantation) requiert évidemment des images «magnétiques». En particulier, on peut espérer mettre en évidence des différences entre l'allure des domaines magnétiques dans le volume de l'échantillon et aux interfaces des couches, ce qui pourrait par exemple permettre d'observer l'ancrage ou la nucléation de domaines au niveau des interfaces. L'objectif est donc, pour des échantillons magnétiques ou non magnétiques, d'avoir une image de la répartition spatiale de la susceptibilité non linéaire du second ordre. Deux techniques d'imagerie peuvent être proposées.

La solution la plus évidente, que nous nommerons *imagerie par balayage*, consiste à balayer le faisceau fondamental, étroitement focalisé, sur la surface de l'échantillon. Il suffit alors d'effectuer la mesure sur le faisceau doublé en fréquence, à l'aide des méthodes que nous avons décrites précédemment, en déplaçant le faisceau sur l'échantillon. On obtient alors une cartographie point par point de l'échantillon, chaque point étant lui même une moyenne effectuée sur la surface éclairée par le faisceau. Bien sûr, il n'est pas utile dans ce cas de disposer d'un détecteur offrant l'accès à la résolution spatiale (matrice de détecteurs): un simple photomultiplicateur peut convenir. Cette technique, que nous désignerons par les termes de *microscopie par balayage*, ne nécessite finalement, par rapport au montage que nous avons utilisé jusqu'ici, que l'utilisation de platines permettant un déplacement précis de l'échantillon.

La seconde méthode d'imagerie, que nous désignerons par les termes d'*imagerie parallèle* (par opposition à la méthode précédente, qui est séquentielle), consiste à réaliser l'image de la partie éclairée de l'échantillon sur une matrice de détecteurs (notre caméra CCD). Chaque point de cette zone illuminée par le faisceau incident se comporte alors comme une source de lumière à la fréquence double. Il est donc possible de distinguer, dans la zone éclairée, les régions de l'échantillon qui, pour quelque raison que ce soit, ont des efficacités de doublage locales différentes. L'image est obtenue en une seule fois sur la caméra. Nous appellerons par la suite cette technique *microscopie* ou *imagerie parallèle* (par opposition au caractère séquentiel de la microscopie par balayage). Il est dans ce cas nécessaire de modifier le montage, et d'utiliser une optique adaptée afin d'obtenir une image de bonne qualité.

3.1.1 État de l'art

L'imagerie par balayage a été employée avec succès sur divers types de matériaux [BOY86], [CHE91], [TAN96]. En particulier, l'imagerie à la fréquence double est aujourd'hui utilisée sur des milieux biologiques, où elle permet d'obtenir des informations inaccessibles par des méthodes classiques, tout en profitant de l'amélioration de résolution autorisée par la diminution de la longueur d'onde. Sur des surfaces métalliques, le seul exemple d'utilisation de cette technique est à notre connaissance l'image d'une structure Au/Co/Au en damier donnée dans [RAS96]. En dépit de la présence d'une couche de cobalt, cette image ne donne aucune information quant à l'aimantation du film, et il semble en fait qu'il n'existe aucune image réalisée par balayage donnant ce type d'information, pourtant accessible en théorie.

Plus récemment, des images ont été obtenues à 2ω en microscopie parallèle sur divers matériaux. Flörscheimer et al. ont ainsi réalisé des images de monocouches dites couches de Langmuir-Blodgett [FLO94], [FLO97]. Smilowitz et al. ont utilisé la même technique sur des monocouches auto-assemblées (Self Assembled Monolayers, ou SAMs) afin d'obtenir des images de gravures effectuées dans ces couches. C.E. Allen et al. ont quant à eux utilisé la technique pour étudier la diffusion du germanium sur des surfaces de silicium (111) [ALL97]. Dans le cas de couches de Langmuir-Blodgett non centrosymétriques, le rendement de conversion est si élevé ($3 \cdot 10^7$ photons à 2ω par impulsion), qu'en utilisant un simple laser Nd:YAG, il est possible d'observer une image à la fréquence double à l'œil nu ou à l'aide d'une caméra vidéo [FLO94].

Concernant les matériaux magnétiques, des résultats intéressants ont été récemment obtenus dans des échantillons massifs antiferromagnétiques [FIE94, FRO99]. En raison de l'absence de champ magnétique macroscopique suffisamment fort dans ces matériaux, rares sont les techniques permettant l'observation de domaines magnétiques (dont l'existence a été prévue par L. Néel en 1953). La microscopie en lumière polarisée et la topographie par diffraction de rayon X sont des méthodes indirectes, dans la mesure où elles ne sont sensibles qu'à des distorsions de la maille cristalline dues à la magnétostriction. Ces méthodes ne permettent donc pas de distinguer des aimantations de sens opposés. La topographie par diffraction de neutrons permet cette distinction, mais demande des temps d'exposition de plusieurs heures, et ne permet pas de résoudre moins de $70 \mu\text{m}$. Dans la mesure où ces échantillons ont une structure non centrosymétrique, le doublage n'est plus spécifique aux interfaces, et s'effectue dans tout le volume (les rendements de conversion sont alors bien supérieurs). La sensibilité à l'aimantation reste cependant intacte, et il est possible d'obtenir rapidement et relativement simplement des images de domaines antiferromagnétiques. Dans le même esprit, des domaines et des parois de domaines ont été observés dans des films de grenat. Alors que les cristaux de grenat parfaits sont centrosymétriques, les couches minces cristallines réalisées sur des substrats où l'accord de maille est imparfait ne le sont plus. Le doublage devient alors

possible en volume, ainsi que la détermination de l'orientation de l'aimantation dans les domaines et leurs parois [KIR97, RAS98].

Dans des couches métalliques centrosymétriques, on a par contre une sensibilité sélective à l'aimantation d'interface, et l'on peut obtenir des images de la distribution spatiale de l'aimantation ou «domaines magnétiques» au niveau de l'interface. Les images que nous avons obtenues sur des échantillons Co/Pt et Fe/Pd [TES98, TES99] sont, avec celles réalisées sur un échantillon de Co/NiPt dans l'équipe de T. Rasing [RAS99], les premières images de ce type.

3.1.2 Comparaison des méthodes d'imagerie par balayage et parallèle

L'estimation des résolutions accessibles par ces méthodes est légèrement modifiée par rapport au cas «linéaire», du fait que l'on a affaire ici à un phénomène non linéaire quadratique en éclairage et à deux longueurs d'onde distinctes λ et $\lambda/2$.

Dans le cas d'une imagerie par balayage, il est possible de donner une estimation de la résolution spatiale en supposant un profil Gaussien de faisceau fondamental. En raison de la dépendance quadratique du phénomène par rapport à l'éclairage, la réponse engendrée à la fréquence double par un point dont le $\chi^{(2)}$ est non nul est également une Gaussienne, mais dont la largeur est réduite d'un facteur $\sqrt{2}$.

Dans le cas où l'on utilise l'imagerie parallèle, la résolution maximale est limitée par la diffraction. Pour un système à ouverture circulaire, cette résolution est liée à la fonction d'Airy, qui est proportionnelle à $1/\lambda$. La résolution maximale du système est donc 2 fois meilleure à la fréquence double qu'au fondamental.

Pour comparer les performances des deux méthodes, nous allons supposer que les lentilles utilisées pour focaliser le faisceau fondamental sur l'échantillon et pour imager la zone illuminée, dans les cas respectifs de l'imagerie par balayage et de l'imagerie parallèle, ont le même rapport f/D , où f est la distance focale et D l'ouverture de la lentille. Si λ est la longueur d'onde fondamentale ($\lambda/2$ à la fréquence double), le rayon de la plus petite tache qu'il est possible d'obtenir avec une telle lentille est donné par $w_0 = 2\lambda f / \pi D$. La résolution accessible en microscopie par balayage est donc de $\sqrt{2}\lambda f / \pi D \approx 0,45 \lambda f / D$. En microscopie parallèle, on travaille à la fréquence double, et la résolution vaut $1,22 f (\lambda/2) / D = 0,61 \lambda f / D$.

Les deux méthodes permettent donc des résolutions théoriques très similaires.

En pratique, la résolution de la microscopie par balayage est fortement limitée par le faible diamètre du faisceau qui interdit d'utiliser l'optique de focalisation de manière optimale. Avec un faisceau de rayon $680 \mu\text{m}$, et une lentille de longueur focale 55 mm , on a une résolution maximale de l'ordre de $15 \mu\text{m}$. L'amélioration de cette résolution nécessite alors l'utilisation d'un dispositif optique permettant d'augmenter le diamètre du faisceau avant sa focalisation. La limite de résolution ultime de l'imagerie par balayage est alors fixée par le seuil de dommage du matériau, qui interdit une focalisation trop aiguë.

Une autre limitation importante de ces deux méthodes découle de la géométrie en réflexion à 45° utilisée ici. L'encombrement des optiques interdit d'approcher ces dernières de la zone imagée à moins de 1 fois leur rayon, .

Il est donc nécessaire d'utiliser des optiques autorisant de longues distances de travail (au moins de l'ordre du centimètre). De faibles diamètres et des distances de travail importantes sont évidemment difficilement compatibles avec de bonnes ouvertures numériques. Ce problème est donc très limitant, pour la focalisation du faisceau comme pour l'optique servant à imager la zone éclairée.

Enfin il faut noter que l'imagerie parallèle, du fait que l'on travaille à une incidence de 45° , s'accompagne d'une anamorphose d'un rapport $\sqrt{2}$ suivant l'axe situé dans le plan d'incidence, comme on peut le voir sur le schéma (3.34) . L'image obtenue sur la caméra est bien circulaire, mais la zone de l'échantillon qui est imagée est elliptique.

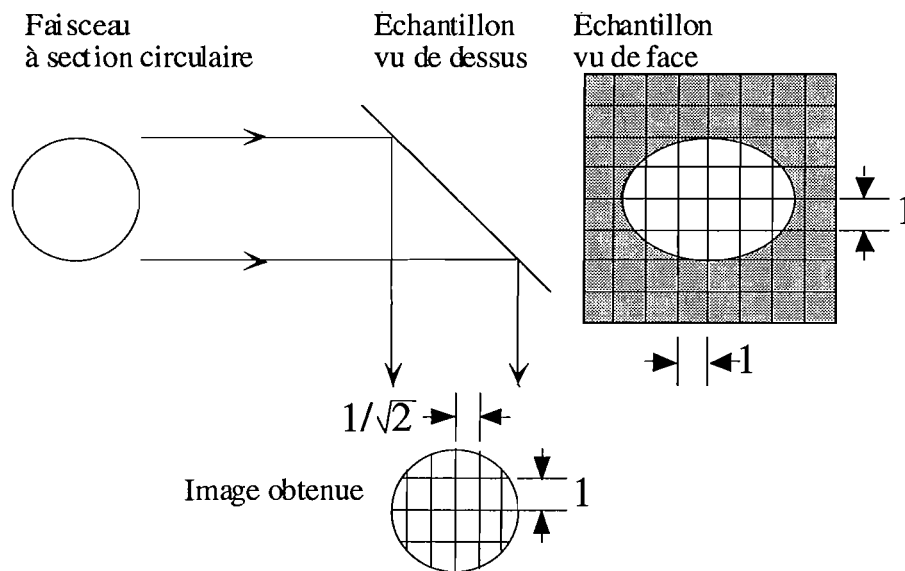


Figure (3.34): L'échantillon est éclairé par un faisceau à section circulaire (supposé collimaté dans ce cas). La tache obtenue sur l'échantillon est elliptique, de petit côté 1 et de grand côté $\sqrt{2}$. Si l'on suppose l'échantillon couvert par un quadrillage carré, la forme de l'image obtenue en réflexion est circulaire mais le damier est déformé d'un rapport $\sqrt{2}$ suivant l'axe situé dans le plan d'incidence.

Dans le cas de l'imagerie par balayage, cette anamorphose n'est pas présente à l'image, puisque la position de la mesure est repérée grâce aux platines, dont la translation s'effectue dans le plan de l'échantillon. Par contre, elle se traduit par une diminution de la résolution suivant l'axe situé dans le plan d'incidence d'un facteur $\sqrt{2}$, puisque la tache éclairée sur l'échantillon est élargie d'un facteur $\sqrt{2}$ suivant cet axe. Suivant l'axe perpendiculaire au plan d'incidence, la résolution reste évidemment inchangée.

Dans les paragraphes qui vont suivre, nous allons nous efforcer de décrire les méthodes utilisées pour obtenir des images par balayage et de manière parallèle dans le cas où les échantillons sont non magnétiques ou magnétiques. Ces méthodes seront illustrées par des exemples de résultats expérimentaux. Nous n'insisterons pas trop pour l'instant sur les interprétations physiques des phénomènes magnétiques impliqués dans de telles observations.

3.2 Imagerie par balayage

Le montage utilisé ici est simple, dans la mesure où il est identique à celui qui a été décrit précédemment. Le faisceau issu de l'oscillateur (rayon à $1/e^2$ de $680 \mu\text{m}$) est focalisé sur l'échantillon à l'aide d'une lentille de longueur focale 55 mm , d'où une résolution théorique maximale de $15 \mu\text{m}$. Le déplacement de l'échantillon est assuré par deux moteurs pas à pas, assurant une précision meilleure que $15 \mu\text{m}$, et ne sont donc pas limitants en terme de résolution spatiale.

La durée d'intégration utilisée pour la caméra CCD est généralement de l'ordre de la seconde par point. Cependant, il est nécessaire d'ajouter à ce temps celui nécessaire au déplacement des moteurs, au transfert des données avec l'ordinateur, et au fonctionnement du programme de pilotage des instruments. L'intervalle de temps séparant typiquement deux mesures est alors de l'ordre de 5 à 10 s suivant le temps d'intégration utilisé et la distance à parcourir entre deux points de mesure. La cartographie complète d'un échantillon de 1 cm^2 avec une résolution de $15 \mu\text{m}$ (soit 444×444 mesures) nécessiterait alors, à raison de 5 s par point, près de 620 heures. En pratique, afin de maintenir le temps d'acquisition nécessaire à l'imagerie d'échantillons étendus (de l'ordre du cm^2) dans des limites raisonnables, nous n'avons donc jamais utilisé ce montage au maximum de sa résolution.

3.2.1 Imagerie non magnétique par balayage

L'image présentée sur la figure (3.35) a été réalisée sur une couche d'or d'épaisseur variable (0 à $84,2$ Plans Atomiques) déposée sur une couche de 350 \AA de Si_3N_4 et sur substrat de silicium. Cet échantillon a déjà été décrit et analysé en détail au paragraphe 1.4.2. de ce chapitre. La structure est représentée sur la figure (3.17). L'échantillon a été déplacé sous le faisceau fondamental, polarisé p , par pas de $250 \mu\text{m}$. Aucun analyseur n'est utilisé pour le faisceau doublé. Le temps d'exposition de la caméra est de 2 s par mesure, et le temps entre deux mesures est de 8 s environ. Cette image d'une définition de 36×44 points nécessite donc environ $3,5$ heures de mesure (ces mesures sont entièrement automatisées).

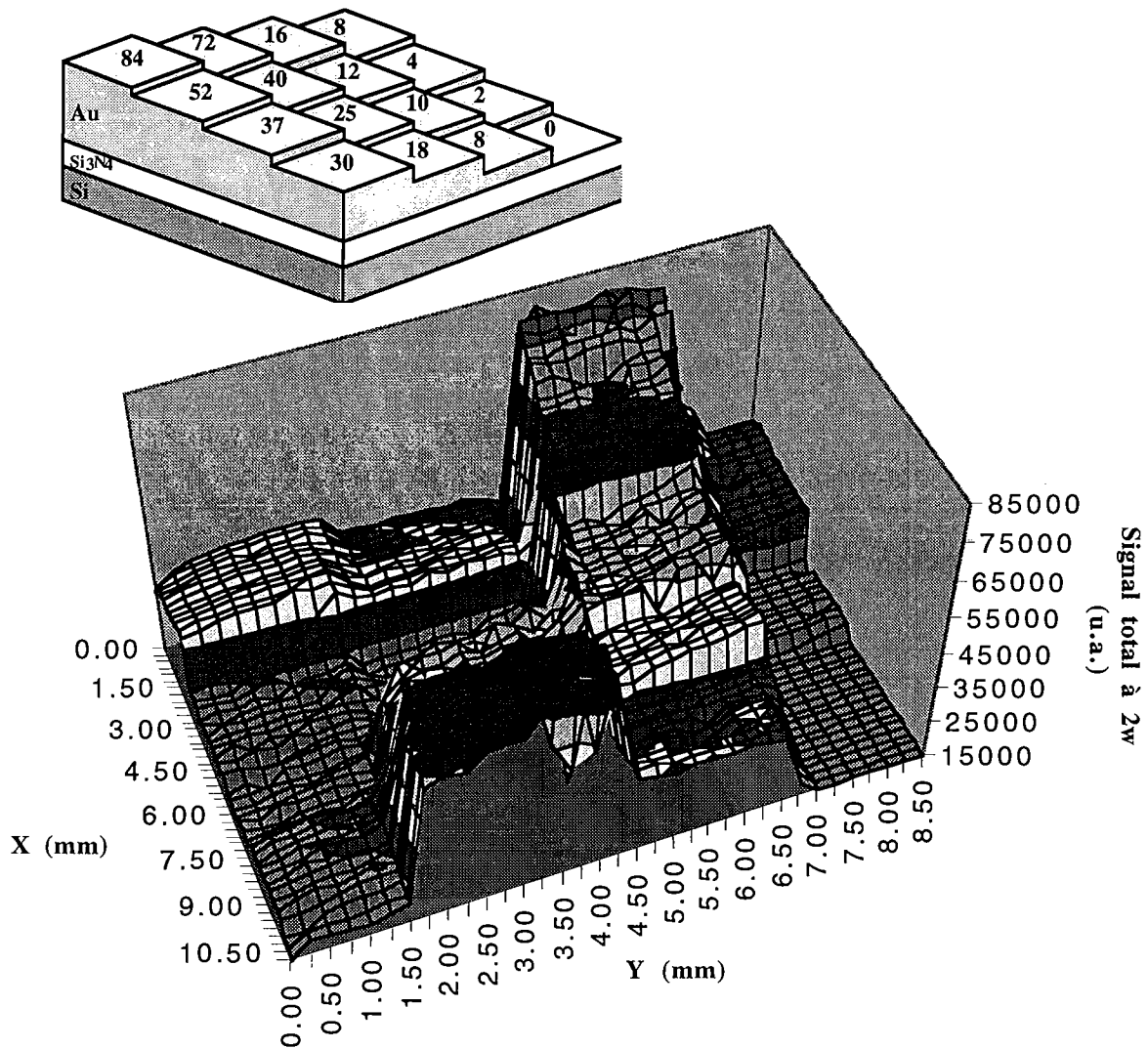


Figure (3.35): Représentation «en 3 dimensions» de l'image obtenue à la fréquence double par balayage sur un échantillon Au/Si₃N₄/Si pour des épaisseurs d'or variables. L'axe vertical donne l'amplitude du signal doublé en fréquence correspondant à une position sur l'échantillon repérée suivant les axes horizontaux X et Y (en mm). Au dessus, une représentation schématique de la structure, suivant la même orientation que celle utilisée pour l'image (épaisseurs d'or indiquées en Plans Atomiques).

Comme on peut le constater sur la figure (3.35), les marches sont relativement homogènes, et tout à fait distinctes à l'image (N.B.: la qualité de l'échantillon est sans doute meilleure que ne peut le laisser supposer cette image, le doublage de fréquence étant très sensible aux impuretés déposées sur la surface à l'air libre). Il est évidemment possible d'utiliser les informations contenues dans ce type d'image pour en faire une analyse quantitative. En fait,

c'est à partir d'une telle image, en calculant la moyenne des mesures prises sur chaque marche, qu'ont été obtenues les mesures présentées à la figure (3.19).

On peut utiliser le même principe de balayage pour effectuer des mesures à la fréquence fondamentale (mesure du coefficient de réflexion). La résolution limite est alors inférieure, comme nous l'avons vu, mais ceci n'affecte pas nos mesures, effectuées bien en dessous de ce seuil. La figure (3.36) présente deux images, obtenues sur ce même échantillon à la fréquence fondamentale (à gauche) et à la fréquence double (à droite). Note: il s'agit des mêmes mesures que celles de la figure (3.35), présentées sous une autre forme).

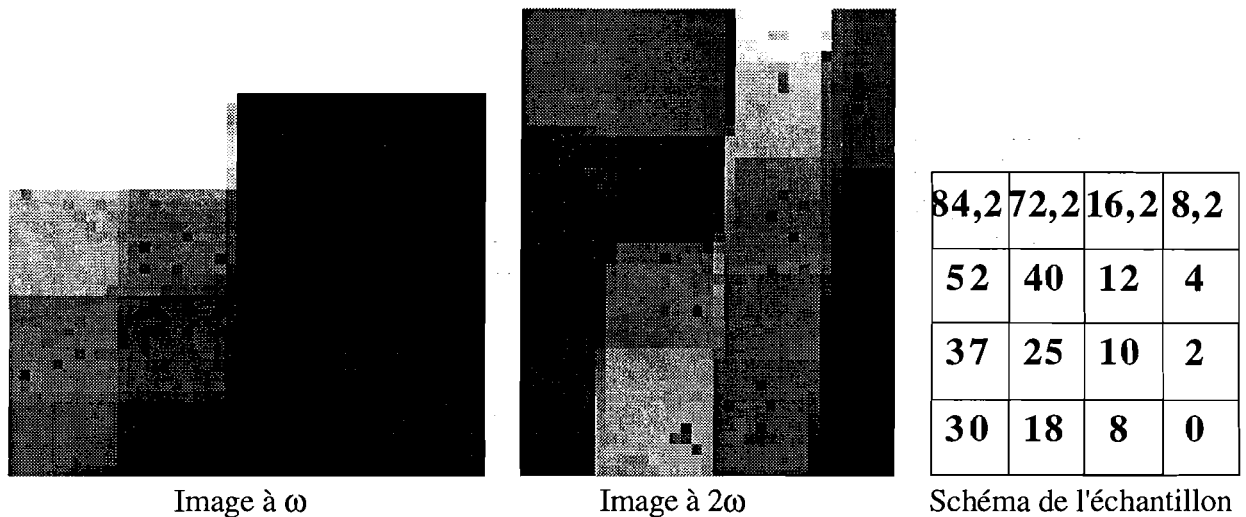


Figure (3.36): Coefficient de réflexion à ω (à gauche, 44x36 pixels) et signal total à 2ω (à droite, 36x44 pixels) en fonction de la position sur l'échantillon, par pas de 250 μm . Images obtenues sur le même échantillon, orienté comme représenté sur le schéma de droite (les épaisseurs sont indiquées en Plans Atomiques). Les signaux mesurés sont codés en niveaux de gris, le noir correspondant à un signal faible et le blanc à un signal fort. Note: l'échantillon a légèrement tourné entre les deux mesures, d'où le décalage sur la seconde image.

Les images obtenues à ω et à 2ω diffèrent fortement, l'information contenue dans chacune étant tout à fait différente. Comme on l'a montré au paragraphe 1.4.2. de ce chapitre, l'image de gauche représente le coefficient de réflexion de l'échantillon, tandis que l'image de droite reflète sa rugosité locale.

3.2.2 Imagerie magnétique par balayage

L'imagerie par balayage se prête assez mal, telle que nous l'utilisons, à la caractérisation d'échantillons magnétiques. La résolution maximale offerte par la méthode (15 μm) est en effet trop faible pour permettre d'obtenir des images de domaines magnétiques, qui sont, dans la plupart des cas que nous avons abordés, de taille inférieure à 20 μm .

Nous avons utilisé un échantillon tricouche Au (280 Å) / Co (2 à 9 P.A.) / Au (15 P.A.), la variation d'épaisseur de la couche de cobalt permettant, en modifiant les caractéristiques de l'aimantation, d'offrir un contraste observable entre les différentes zones de l'échantillon. Pour cette gamme d'épaisseurs de cobalt, l'aimantation est, comme nous le verrons au chapitre suivant, perpendiculaire au plan des couches. On effectue donc les mesures magnéto-optiques à 2ω en configuration polaire (aimantation perpendiculaire au plan des couches), ce qui est particulièrement défavorable puisque le contraste magnétique est alors environ dix fois plus faible qu'en configuration longitudinale ou transverse.

Afin de mettre en évidence le signal magnétique, nous avons réalisé deux balayages de l'échantillon, aux mêmes coordonnées (à la précision des platines de translation près), pour deux sens de l'aimantation différents. Une différence effectuée point par point entre ces deux images permet alors d'isoler la contribution d'origine magnétique. L'image correspondante est présentée à la figure (3.37).

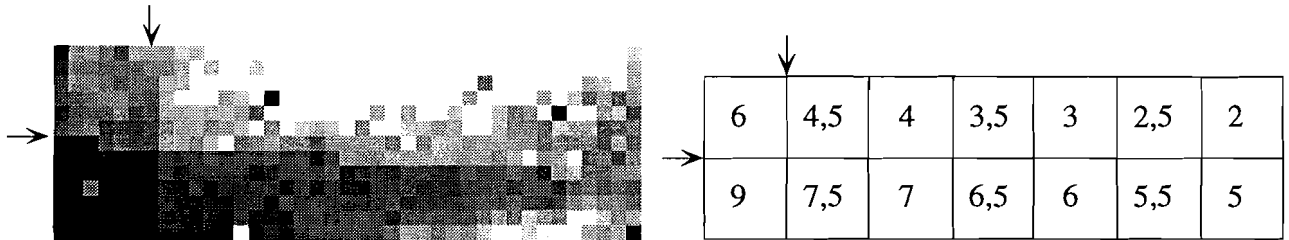


Figure (3.37): Image obtenue par soustraction de deux images réalisées pour deux sens opposés de l'aimantation, en configuration polaire. Le noir correspond à une «faible» différence entre les images, le blanc à une différence plus forte. Les mesures sont réalisées par pas de 250 μm . À droite, un schéma de l'échantillon indiquant les épaisseurs de cobalt (en P.A.) sur chacune des marches. Les flèches indiquent les frontières visibles

On distingue bien sur cette image l'une des frontières verticales correspondant à un saut de 1,5 P.A. seulement, mais les frontières verticales entre marches dont l'épaisseur ne diffère que de 0,5 P.A. ne sont pas claires. La décroissance du signal magnétique avec l'augmentation de l'épaisseur de cobalt est cependant visible (passage du sombre au clair de la gauche vers la droite).

Ceci est dû, comme nous le verrons plus en détail au chapitre suivant, au basculement de l'aimantation de perpendiculaire aux couches pour de faibles épaisseurs de cobalt à parallèle aux couches pour de fortes épaisseurs. Puisque nous avons appliqué un champ perpendiculaire au plan, nous n'avons théoriquement retourné que la composante de l'aimantation qui est perpendiculaire au plan. Pour les fortes épaisseurs (9 P.A.), lorsque l'aimantation est presque entièrement parallèle au plan, l'aimantation n'a donc pas changé entre les deux images, et la différence est quasi nulle (blanc, sur l'image).

Une telle image peut sembler peu spectaculaire, mais il faut réaliser que le contraste magnétique n'est ici que de 4% tout au plus (pour les faibles épaisseurs de cobalt), ce qui est typique de la configuration d'aimantation polaire considérée ici. À notre connaissance aucune image n'avait encore été réalisée dans cette configuration jusqu'à présent. En raison de ces faibles contrastes, la configuration polaire, qui est pourtant d'un grand intérêt technologique et théorique, n'a pour l'instant été que très peu utilisée pour des études en doublage de fréquence. Avec l'augmentation des sensibilités et l'amélioration des techniques de mesures, il est à présent envisageable d'effectuer des études dans cette direction d'aimantation encore peu exploitée.

D'une manière générale, la microscopie par balayage est particulièrement adaptée à l'obtention d'images de grande dimension avec une faible résolution, et permet l'analyse globale de la rugosité locale et plus généralement de l'homogénéité physico-chimique des interfaces d'une structure multicouche.

3.3 Imagerie parallèle

3.3.1 Dispositif expérimental

Dans cette configuration, on utilise un objectif permettant d'imager la zone éclairée par le laser sur la caméra. La plupart de nos images ont été obtenues à l'aide d'un objectif de microscope Melles Griot de grandissement 6,3, d'ouverture numérique $N=0,2$, et de distance de travail 21 mm. À la tache éclairée par le laser sur l'échantillon correspond typiquement sur la caméra une zone circulaire d'environ 45 pixels de diamètre sur laquelle une information pertinente est obtenue (c.à.d. au dessus du seuil de bruit). L'extension de cette zone augmente naturellement avec le temps d'exposition de la caméra. Le profil de la réponse mesurée sur la caméra couvre environ 25 pixels à mi hauteur, soit environ 600 μm . Le diamètre de la tache lumineuse sur l'échantillon ayant un diamètre de 35 μm , on a donc dans notre configuration un grandissement de 17,1 environ (et non 6,3, puisque l'objectif n'est pas utilisé pour le tirage de 195 mm spécifié par le constructeur). Les pixels étant séparés de 24 μm sur le capteur, chaque pixel correspond pour ce grandissement à 1,4 μm sur l'échantillon.

La résolution limite due à la diffraction est, pour $\lambda=400$ nm de $1,22\lambda/2=0,24$ μm . Avec l'objectif que nous utilisons, on atteint une résolution maximale de $1,22 \lambda /2N= 1,2$ μm .

On a donc ici une assez bonne adéquation entre la taille des pixels et la résolution optique. Il serait évidemment possible d'utiliser un plus fort grandissement (avec une meilleure ouverture numérique, sans quoi c'est inutile), mais la même quantité de lumière générée à la fréquence double serait alors répartie sur un plus grand nombre de pixels, ce qui nécessiterait l'augmentation des temps d'intégration du CCD. Le choix du grandissement (et de l'ouverture numérique) résulte donc d'un compromis entre temps de pose et résolution. Expérimentalement, la phase de mise au point est critique. Elle s'effectue sur un défaut reconnaissable, ou sur un bord de l'échantillon. Les longs temps de pose nécessaires à l'obtention d'une image à la fréquence double (de l'ordre de 10 min) interdisent d'effectuer cette mise au point de manière directe. On peut utiliser le faisceau fondamental pour éclairer l'échantillon, mais la précision est alors insuffisante lorsque l'on passe à la fréquence double avec des objectifs ayant une mauvaise correction chromatique (c'est le cas de certaines lentilles asphériques). Pour cette mise au point, nous utilisons une petite diode électroluminescente à puits quantiques, dont le spectre d'émission est, d'après nos mesures, centré autour de 450 nm et large de 40 nm à mi hauteur. Il est ainsi possible d'éclairer largement l'échantillon et d'effectuer aisément la mise au point pour une longueur d'onde proche de notre longueur d'onde de travail de 400 nm.

3.3.2 Imagerie non magnétique

L'imagerie parallèle non magnétique est assez anecdotique pour nous. En effet, la zone qu'il est possible d'imager ainsi est réduite (de l'ordre de la taille de la tache de focalisation, soit 35 μm). À cette échelle, les couches minces métalliques sont relativement homogènes, et il y a pour nous peu à attendre de telles images.

Les images qui suivent ont été obtenues sur le bord d'une couche d'or, à la fréquence fondamentale (à gauche) et à la fréquence double (à droite), pour un faisceau incident polarisé p et un analyseur également polarisé p, pour des temps d'intégration différents. Le bord de la couche ayant été obtenu à l'aide d'un cache découpé mécaniquement, il est irrégulier à l'échelle de quelques micromètres.

Comme on peut le voir, la couche d'or réfléchit bien mieux la lumière que le substrat à la fréquence fondamentale (N.B. les inhomogénéités visibles sont dues à des pollutions). À droite, l'image obtenue à la fréquence double met essentiellement en évidence le bord de la couche, sans doute parce que la rugosité et les dislocations y sont plus importantes que sur la couche elle-même.

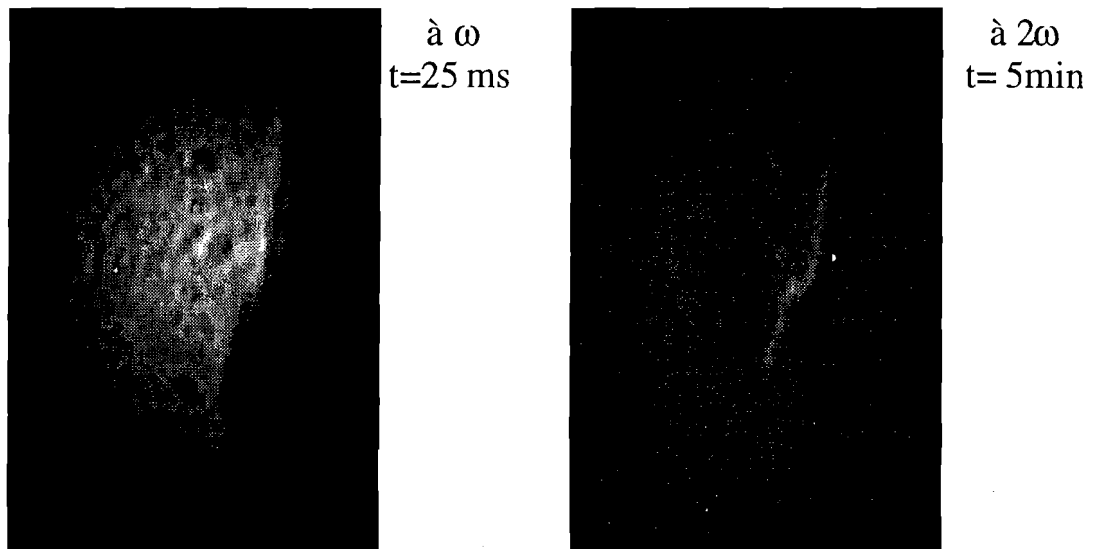


Figure (3.38): Images du bord d'une couche d'or sur substrat de verre obtenue à la fréquence fondamentale (à gauche) et à la fréquence double (à droite). Sur chaque image, la couche d'or se trouve à gauche et le substrat à droite. La taille de la zone imagée est d'environ 40 μm (verticalement) par 60 μm (horizontalement). Analyseur et polariseur sont orientés p.

3.3.3 Imagerie magnétique

Échantillon Fe/Pd

L'imagerie parallèle se prête particulièrement bien à l'obtention d'images de «domaines magnétiques» aux interfaces enterrées. Nous avons dans un premier temps travaillé sur un échantillon présentant une structure en domaines simple: MgO (001)/Fe (50 Å) / Pd (15Å) (réalisé par l'équipe de A.Schuhl au LCR Thomson). Les paramètres de maille du MgO, du palladium et du fer valent respectivement 4,21 Å, 3,89 Å et 2,87 Å. Pour permettre une bonne croissance du fer sur le MgO(001), la maille du fer est donc tournée de 45° par rapport à celle du MgO et du palladium. Le produit du paramètre du fer par $\sqrt{2}$ donne 4,06, et on est ainsi ramené à un désaccord de maille de 4% [CHI94]. En conséquence, deux axes de facile aimantation (à priori équivalents) sont présents dans ces couches, suivant la direction (100) du fer, c'est à dire dans le plan des couches, à 45° de l'axe (001) du MgO [KER94].

Pour un premier test, un tel échantillon est un bon candidat, car il a été montré que le fer permet d'obtenir des contrastes magnétiques très importants à la fréquence double [KOO95]. D'autre part, l'aimantation du fer étant dans le plan des couches, on doit pouvoir obtenir un bon contraste. Il a de plus été montré par imagerie Kerr magnéto-optique que les domaines magnétiques sont de très grande taille dans ce système. En fait, le retournement de l'aimantation se fait très brutalement, par propagation d'un faible nombre de parois de domaines à travers la surface de l'échantillon. Le cycle d'hystérésis mesuré à la fréquence double (figure (3.39)) est très carré en raison de ce basculement brutal. En appliquant un champ approprié pendant un court instant (environ 13 Oe, indiqué par la flèche sur la figure (3.39)), on peut créer cette paroi, puis en «geler» la position en ramenant le champ magnétique à zéro. L'aimantation se réoriente alors suivant l'axe de facile aimantation. En l'occurrence, l'axe (001) du MgO étant dans le plan d'incidence, l'aimantation doit être à 45° de ce plan. On obtient alors une paroi de domaine non chargée également orientée à 45° . La tâche de loin la plus difficile est alors de parvenir à localiser cette paroi, sur un échantillon d'environ 1 cm^2 , à l'aide de notre sonde qui ne permet d'obtenir une image que sur un disque de $40 \mu\text{m}$ de diamètre.

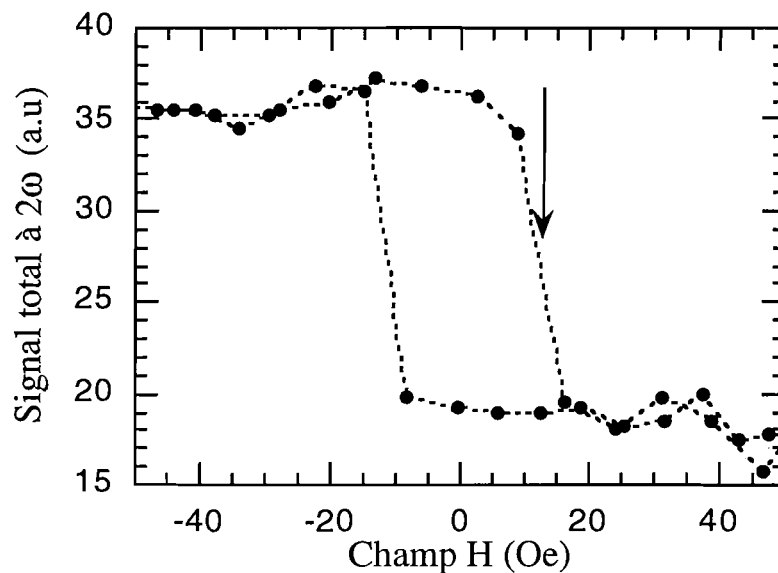


Figure (3.39): cycle d'hystérésis obtenu sur un échantillon Fe/Pd, pour un faisceau incident polarisé p , l'analyseur formant un angle de 45° avec la polarisation p . Le temps d'intégration est de 5 s par mesure.

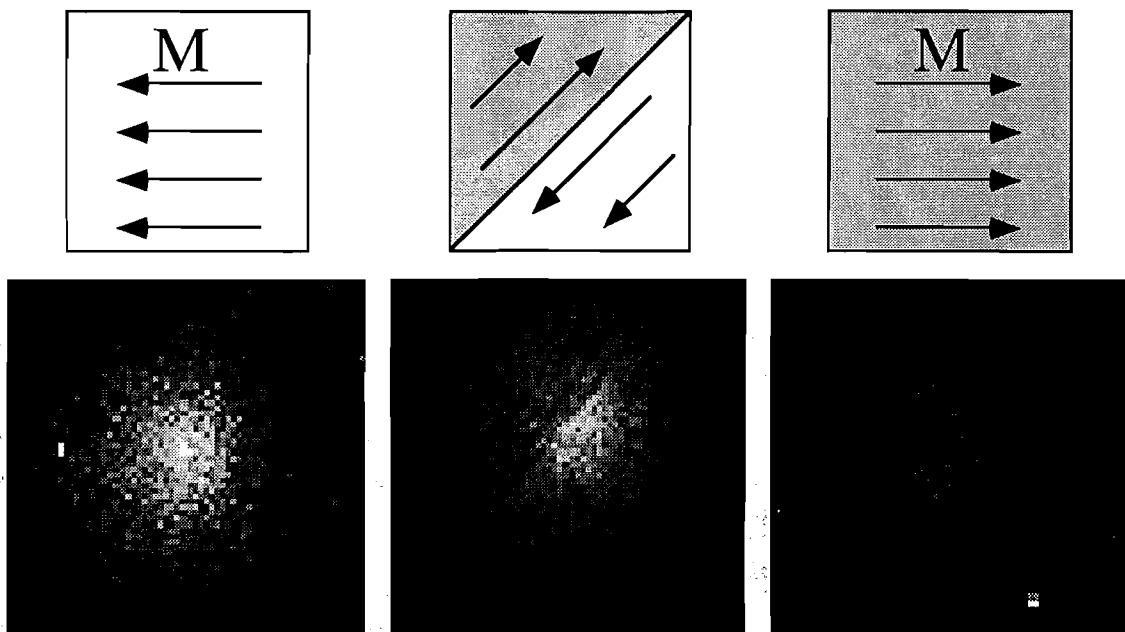


Figure (3.40): Images obtenues sur un échantillon Fe/Pd, pour un faisceau incident polarisé p . L'analyseur forme un angle de 60° avec la polarisation p . Le temps d'intégration est de 10 min par image. L'image de gauche correspond à un champ de -40 Oe, celle de droite à un champ de $+40$ Oe. Au milieu, une image obtenue sous champ nul, après application d'un champ de 13 Oe. La frontière à 45° (angle imposé par l'orientation du substrat) entre les deux domaines est clairement visible.

Les images présentées sur la figure (3.40) (à gauche et à droite) ont été réalisées sur un échantillon soumis à des champs saturants de -40 et $+40$ Oe, c'est à dire pour des échantillons monodomaines. On remarque clairement le contraste entre les deux images: l'image la plus claire correspond bien à la partie de l'hystérésis où le signal à 2ω est le plus fort, et l'image sombre à la partie basse (fig. (3.39)). En champ nul, après application d'un champ de 13 Oe, et en se plaçant au niveau de la paroi, on obtient l'image du milieu, sur laquelle les deux domaines sont clairement discernables, séparés par une paroi à 45° du sens d'application du champ. Ceci correspond bien aux prédictions théoriques ainsi qu'aux observations faites en imagerie Kerr ([KER94]).

Dans un tel échantillon, aucune différence particulière n'est attendue entre les propriétés du volume et celles des interfaces, et le doublage de fréquence n'apporte pas d'information nouvelle par rapport à l'imagerie Kerr. Il s'agit cependant d'un excellent départ pour l'obtention d'images de domaines par doublage de fréquence.

Échantillon Co/Pt

Après le cas relativement simple du fer / palladium, nous avons étudié une structure qui s'est révélée plus complexe, Pt (15 P.A.) / Co (20 P.A.) / Pt (40 Å) / Al₂O₃ [TRA98]. Pour cette épaisseur de cobalt, l'aimantation est dans le plan des couches. L'échantillon a donc été étudié, à nouveau, en configuration longitudinale. La procédure d'application du champ magnétique est tout à fait similaire à celle que nous venons de décrire. Comme on peut le constater sur la figure (3.41), la structure en domaines obtenue pour des champs d'environ 25 Oe est plus complexe et fait apparaître des structures en «flammèches». Nous étudierons le magnétisme de ce système plus en détail au chapitre suivant. De manière exactement similaire à ce qui précède, la figure (3.41) présente deux images obtenues pour un champ saturant appliqué dans des sens opposés, et une image obtenue en champ nul, après application d'un champ de 20 Oe.

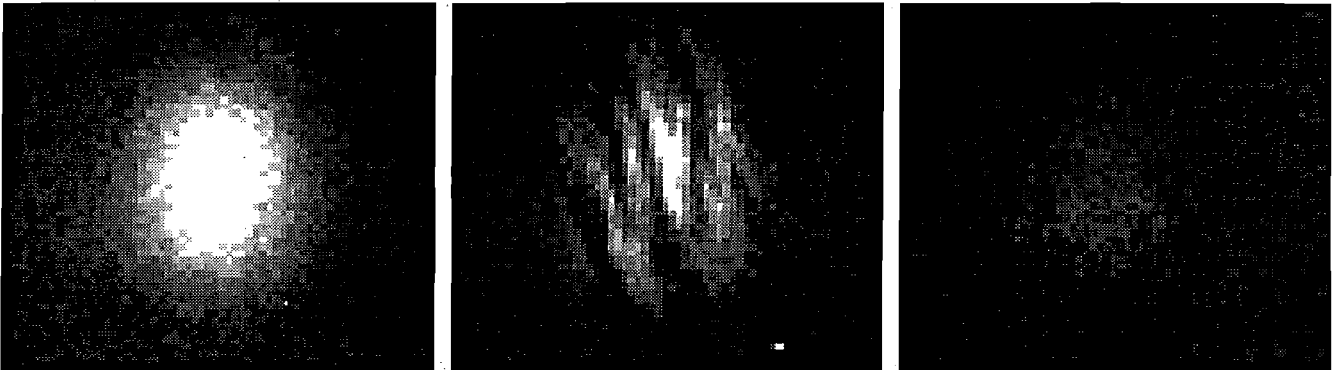


Figure (3.41): Images obtenues sur un échantillon Pt/Co/Pt, pour un faisceau incident polarisé p. le temps d'intégration est de 10 min par image. L'image de gauche correspond à un champ de - 50 Oe, celle de droite à un champ de + 50 Oe. Au milieu, une image obtenue en champ nul, après application d'un champ de 20 Oe.

Sur cette image, des structures en domaines sont bien résolues. Ces «flammèches» larges de 2 à 5 pixels environ permettent de vérifier visuellement que la résolution obtenue est, conformément à nos calculs, de l'ordre du pixel (un pixel correspond à 1,4 µm sur l'échantillon).

Nous avons également utilisé ce système afin d'illustrer l'influence de la position de l'analyseur sur le contraste magnétique des images. La figure (3.42) donne le contraste magnétique mesuré sur le même échantillon, en fonction de l'angle de l'analyseur (90° correspond à un analyseur croisé par rapport au polariseur, qui est en position p). Comme nous l'avons déjà vu, le contraste est opposé, suivant que l'on se trouve à la position 90°+α

ou $90^\circ - \alpha$. Ceci se traduit, par une inversion du contraste des images, comme on peut le voir sur ces deux images complémentaires obtenues sur la même structure en domaines, pour des orientations respectives de l'analyseur de 60° et 120° . Un phénomène strictement analogue a récemment été observé par D.Fröhlich et al. sur des domaines antiferromagnétiques dans YMnO_3 [FRO98] (notons que ce dernier matériau est non centrosymétrique. Il s'agit donc de doublage de fréquence en volume).

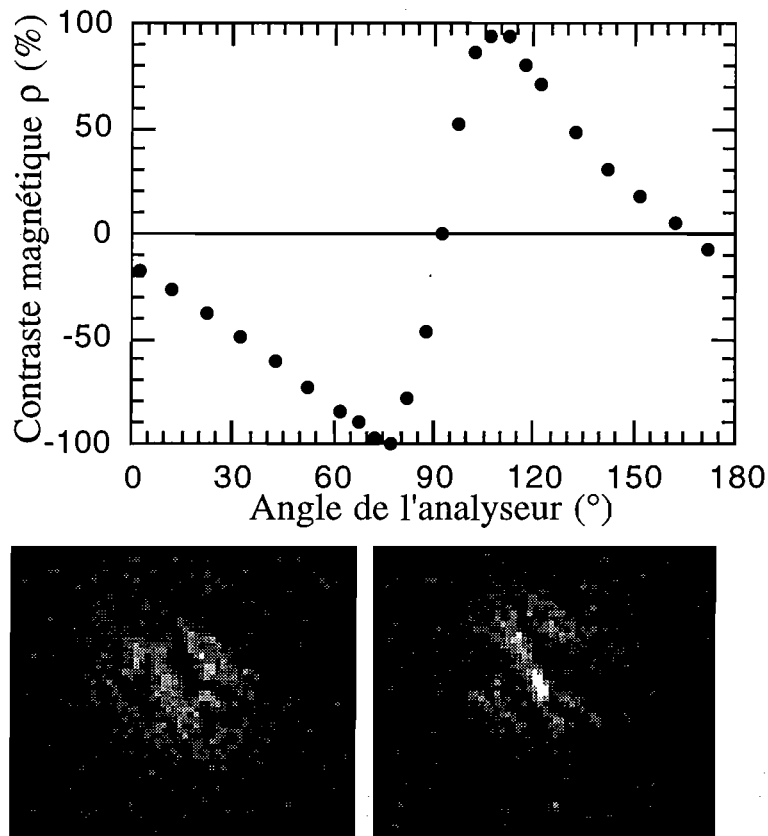


Figure (3.42): *Contraste magnétique en fonction de l'angle de l'analyseur et images complémentaires obtenues en champ nul après application d'un champ de 20 Oe, pour des angles de l'analyseur valant respectivement 60° (à gauche) et 120° (à droite).*

Nous venons d'illustrer au cours de ces paragraphes la possibilité d'utiliser deux méthodes pour l'imagerie d'interfaces par doublage de fréquence.

Il faut signaler que, contrairement à l'imagerie par balayage, l'imagerie parallèle peut présenter certains des défauts de l'imagerie en lumière cohérente, en particulier des «anneaux» dus aux oscillations de la fonction d'Airy, et éventuellement des tavelures

résultant d'interférences entre des contributions provenant de zones différentes de l'échantillon. La microscopie par balayage ressemble beaucoup plus à de l'imagerie incohérente avec, en raison de son caractère séquentiel, une longueur de cohérence latérale faible déterminée par la largeur de la tache de focalisation. L'interprétation de ce type d'images est donc plus directe. Notons toutefois que les impulsions ultrabrèves que nous utilisons, en raison de leur grande largeur spectrale, ont une faible longueur de cohérence. Les effets d'interférences en sont donc fortement diminués. On pourra se reporter à [REI99] et [BER89] pour une description plus complète et des méthodes de correction de ces effets parasites en imagerie cohérente.

D'une manière générale, l'imagerie par balayage semble plus indiquée pour l'obtention d'images sur des zones étendues, en choisissant un pas de balayage long. En contrepartie, telle que nous l'avons utilisée, cette technique ne permet pas d'obtenir une très bonne résolution. Pour l'imagerie à haute résolution, on préférera donc la méthode parallèle.

L'une des principales limitations de la technique d'imagerie parallèle est la faible dimension de la zone qu'il est possible d'observer (légèrement supérieure à la taille de la tache de focalisation, soit environ 40 μm). L'élargissement du diamètre de cette tache se traduirait par une diminution du rendement de conversion de manière *quadratique* avec la surface éclairée, donc par des temps d'intégration beaucoup plus longs. Un compromis est donc nécessaire entre la taille de l'image et le rendement de conversion.

3.4 Développements de la technique d'imagerie

Un objectif important est donc d'augmenter la taille de la zone imagée sans perte de résolution tout en maintenant les temps d'intégration dans des limites raisonnables. Pour cela, il est nécessaire de disposer d'une technique permettant que le temps global nécessaire à l'acquisition d'une image dépende linéairement de la surface de l'image (et non quadratiquement, comme c'est le cas si l'on se contente d'élargir la tache de focalisation). Afin de résoudre ces problèmes, diverses solutions ont été envisagées.

3.4.1 Assemblage d'images

La méthode la plus simple consiste en quelque sorte à combiner l'imagerie parallèle et par balayage en réalisant séquentiellement plusieurs images en des endroits différents de l'échantillon. On assemble ensuite ces images comme un puzzle à l'aide d'un logiciel de manipulation d'images (de type Photoshop). L'image résultante conserve la résolution d'une image parallèle classique, pour un temps d'intégration global qui croît linéairement avec la surface imagée. Il est important de ménager un pas entre deux images inférieur à la taille de la zone imagée, afin de disposer d'un recoupement pour l'assemblage. Pour reprendre

l'exemple précédent, un pas de 20 μm entre deux images convient bien à notre cas où la taille de la zone imagée est de 35 μm . Le principal inconvénient de cette méthode est que l'assemblage des images doit être fait manuellement, ce qui est long et fastidieux.

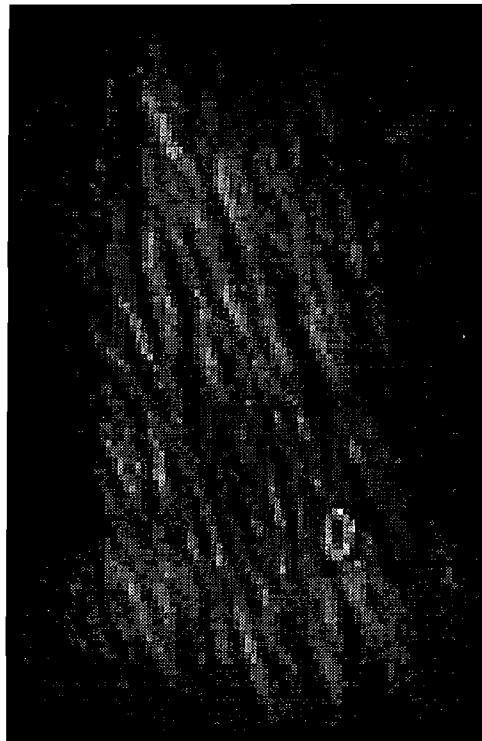


Figure (3.43): Image obtenue par assemblage de 25 images (5x5) obtenues par translation suivant deux axes orthogonaux, par pas de 20 μm . L'image représente donc 100 x 100 μm^2 sur l'échantillon. La forme rectangulaire (rapport $\sqrt{2}$) dérive de la configuration en réflexion à 45°. Les conditions de réalisation de cette images sont strictement identiques à celles de la figure (3.41).

Une solution est envisageable afin de résoudre ce problème, et consiste à maintenir l'échantillon fixe, et à balayer le faisceau fondamental sur l'échantillon de manière uniforme. Pendant toute la durée de ce balayage, la caméra intègre une image sans interruption. Ainsi, on dispose en une fois d'une image couvrant la totalité de la zone sur laquelle le faisceau fondamental est passé. Puisque le faisceau reste étroitement focalisé, les rendements de doublage restent identiques, et on a toujours une dépendance linéaire du temps d'intégration par rapport à la surface de la zone éclairée. Le principal avantage de cette méthode est qu'elle évite toute manipulation: l'image est obtenue directement, en une seule intégration. Vu la forte fréquence de répétition du laser, la fréquence de balayage importe peu, et peut très bien varier entre plusieurs kilohertz et le millihertz.

Expérimentalement, ce concept n'a pas pu être validé, à cause de difficultés rencontrées dans la mise au point de la mécanique nécessaire au balayage uniforme du faisceau (deux miroirs à 45° oscillant suivant des axes perpendiculaires). Un effort de conception mécanique devrait cependant permettre de résoudre ce problème dans un avenir proche.

Pour prendre une analogie en photographie, on peut comparer l'image obtenue par la première méthode à un panorama assemblé à partir de plusieurs photos à faible champ collées côte à côte. La deuxième méthode correspondrait plutôt à utiliser un appareil muni d'un objectif à très grand angle, dont l'obturateur serait ouvert (en «pose B»). Le photographe éclaire alors à l'aide d'une lampe torche des portions choisies du paysage. Chaque zone éclairée par la lampe figure alors sur l'image finale, et l'on obtient le même panorama sans effectuer de collages.

3.4.2 Amplificateur régénératif

Une autre idée consiste à utiliser un amplificateur régénératif afin d'augmenter considérablement l'énergie par impulsion. Il est ainsi possible d'augmenter le rendement de doublage ou, en augmentant le diamètre de la zone éclairée, d'obtenir, pour des rendements de conversion comparables, des images de zones beaucoup plus larges de l'échantillon.

Un tel amplificateur a été développé à l'Institut d'Optique, et il existe des versions commerciales comparables. Celui-ci se compose schématiquement d'un étireur, permettant d'élargir temporellement les impulsions issues de l'oscillateur Ti:saphir afin de ne pas endommager les optiques. Une impulsion sur 86000 est ensuite amplifiée par plusieurs passages dans un barreau de saphir dopé au titane pompé par un laser Nd:YLF. L'impulsion est alors éjectée de la cavité, puis recomprimée à sa durée initiale de 100 fs environ. À la sortie de cet amplificateur, on a donc des impulsions de 100 fs, avec une fréquence de répétition de 1 kHz. La puissance moyenne est de 300 mW environ.

En envoyant sur l'échantillon une puissance moyenne de 30 mW, on a alors une énergie par impulsion environ 86000 fois supérieure à celle obtenue avec l'oscillateur Ti:saphir seul (30 mW, 86 MHz).

Si le nombre de photons émis par impulsion à la fréquence double est proportionnel à $I^2(\omega)A$, où A est la surface éclairée et $I(\omega)$ l'éclairement au fondamental, alors l'éclairement moyen engendré à la fréquence double est proportionnel à $F.P^2(\omega)/A^2$, où F est la fréquence de répétition des impulsions et $P(\omega)$ la puissance par impulsion à la fréquence fondamentale. Si l'on veut obtenir le même éclairement moyen à la fréquence double avec l'oscillateur et le laser amplifié, on doit avoir: $F_l.P_l^2(\omega)/A_l^2 = F_a.P_a^2(\omega)/A_a^2$, où les indices l et a désignent respectivement les grandeurs relatives au laser utilisé seul et au laser amplifié. On doit alors

adopter une surface $A_a = \left(\frac{P_a}{P_i} \sqrt{\frac{F_a}{F_i}} \right) A_i = 293 \cdot A_i$. L'amplificateur régénératif permet donc en théorie d'obtenir des images de même qualité, pour les mêmes temps d'intégration, mais sur une surface presque 300 fois plus importante qu'avec le laser utilisé seul, c'est à dire sur un *diamètre de plus de 600 μm* au lieu de 35 μm .

La limitation principale à cette technique est lors la puissance admissible pour une impulsion unique: à 1kHz, on dispose de 1 ms entre deux impulsions, ce qui permet sans doute d'évacuer convenablement la chaleur.

À l'heure actuelle, le montage permettant de valider cette idée est en cours de réalisation expérimentale.

3.4.3 Autres configurations envisageables

L'utilisation du système de manière optimale passe, à plus long terme, par l'abandon de la configuration en réflexion à 45° pour l'imagerie. Cette configuration interdit, comme nous l'avons vu, de s'approcher suffisamment de l'échantillon, et il serait donc préférable de pouvoir travailler perpendiculairement à l'échantillon. Deux géométries sont alors possibles: L'imagerie en transmission est de loin la plus simple, puisqu'elle permet de placer la source et la détection de part et d'autre de l'échantillon, d'où une réduction des problèmes d'encombrement. Cette géométrie a été utilisée avec succès pour l'imagerie à 2ω de domaines dans des grenats [KIR97, RAS98]. Cependant, jusqu'à maintenant, la plupart des structures que nous avons étudiées avaient des couches tampon épaisses et absorbantes (couches d'Au ou de Pt de plusieurs centaines d'Angströms) qui introduisaient des atténuations trop fortes pour être acceptables. De plus, cette configuration ne permet d'examiner que des effets polaires, qui sont faibles à 2ω .

La deuxième montage utilise la réflexion en incidence quasi-0° (voir figure (3.44)). On entend par là que le même objectif de grande ouverture, placé face à l'échantillon, est utilisé de manière dissymétrique pour le faisceau incident et le faisceau réfléchi, ce qui permet d'approcher l'objectif très près de l'échantillon et donc d'obtenir une bonne résolution. Ce type de configuration est déjà utilisée en imagerie Kerr, et se prête bien à l'imagerie parallèle ou par balayage.

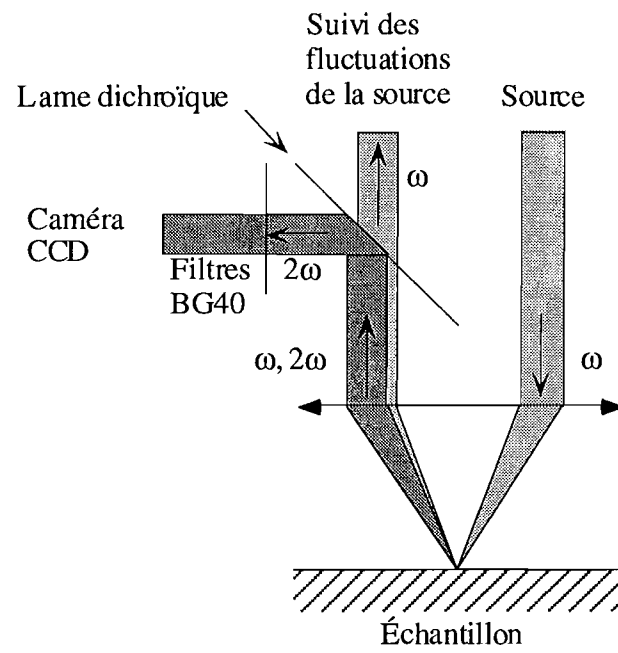


Figure (3.44): Montage proposé pour l'imagerie en réflexion.

Chapitre IV

Physique et propriétés des couches magnétiques ultraminces

La mise au point d'un montage expérimental performant a constitué une étape majeure de ce travail de thèse. Parallèlement à ce travail, nous avons étudié divers types d'échantillons magnétiques et non magnétiques.

Après une brève introduction à la physique des couches magnétiques ultraminces et à l'effet Kerr magnéto-optique, ce chapitre expose un aperçu des principaux résultats expérimentaux obtenus sur trois types de systèmes. Au/Co est un excellent système modèle, pour lequel les propriétés en surface et en volume sont très similaires, et servira donc de référence. Le système Co/Pt est plus complexe, notamment en raison de la présence d'alliages aux interfaces. Enfin, Les doubles couches couplées par échange (très proches de celles utilisées pour les disques magnéto-optiques) constituent une belle illustration des possibilités de notre méthode de mesure. Dans chacun de ces cas, nous nous sommes efforcés de donner une interprétation quant à la nature des phénomènes magnétiques révélés par nos mesures.

1 Physique des couches magnétiques ultra minces

Les systèmes que nous avons étudiés sont constitués d'empilements de couches métalliques de quelques plans atomiques d'épaisseur. Ils alternent des couches de métaux non magnétiques (or ou platine en l'occurrence) et de métal ferromagnétique (cobalt). Dans de telles couches ultra minces, les atomes (et les spins) situés à proximité des interfaces peuvent constituer une portion notable du nombre total d'atomes (et de spins) dans les couches. Le comportement d'un matériau en couche mince est alors largement influencé par les propriétés des interfaces, et peut différer notablement du comportement du même matériau lorsqu'il est massif. Si l'on considère que l'immense majorité des nouvelles applications technologiques des matériaux magnétiques implique l'utilisation de couches minces, on comprend l'intérêt fondamental que présente la connaissance des propriétés des interfaces magnétiques.

Nous allons ici exposer brièvement les propriétés des matériaux ferromagnétiques massifs, avant de nous intéresser à l'influence des interfaces sur le magnétisme selon une approche relativement classique [TRA98]. Nous exposerons ensuite rapidement quelques propriétés résultant de ces remarques pour les matériaux en couches ultra minces, et enfin les mécanismes conduisant à la formation de structures en domaines magnétiques. Par la suite, le cas du cobalt sera plus particulièrement examiné, dans la mesure où il s'agit du matériau magnétique ayant fait l'objet de la majorité de nos études.

1.1 Ferromagnétisme des métaux de transition à l'état massif

Le ferromagnétisme se manifeste par la présence, en dessous d'une température critique appelée température de Curie (T_c), d'une aimantation macroscopique en l'absence de champ magnétique extérieur. La compréhension microscopique de ce phénomène fait appel à la théorie quantique des solides (à ce sujet, on peut par exemple consulter [BAL96]). Le ferromagnétisme a pour principale cause l'interaction d'échange (ou couplage d'échange). Ce couplage résulte de la combinaison de la répulsion coulombienne entre les électrons et du principe d'exclusion de Pauli.

La répulsion entre deux électrons est maximale lorsque ceux-ci sont en un même point de l'espace. Dans un ion isolé cette situation est interdite, en raison du principe d'exclusion de Pauli, pour deux électrons de spins parallèles, mais autorisée pour des électrons de spins antiparallèles. Énergétiquement, la première de ces configurations est a priori plus favorable (d'après la première règle de Hund).

Dans un métal de la première série de transition, les électrons ne sont plus localisés. Un arrangement antiparallèle des spins peut éventuellement être favorisé par le recouvrement entre orbitales atomiques de sites voisins pour les électrons 3d. Cependant, ce recouvrement est très faible, et la bande 3d est très étroite (3 à 5 eV). Le ferromagnétisme apparaît en fait lorsque le gain d'énergie d'échange associée à la polarisation de la bande 3d est supérieur à l'accroissement de l'énergie cinétique dû au transfert d'électrons de la bande $3d_{\downarrow}$ vers la bande $3d_{\uparrow}$. C'est particulièrement le cas pour les métaux de la fin de la série de transition (Fe, Co et Ni), qui présentent une forte localisation des électrons 3d, et sont donc particulièrement favorables à un arrangement parallèle des spins, donc au ferromagnétisme (voir [TRA98]).

Anisotropie magnétique à l'état massif

Les matériaux ferromagnétiques présentent une anisotropie magnétique, qui se manifeste par l'existence d'une ou plusieurs directions privilégiées le long desquelles l'aimantation a tendance à s'orienter. Celles-ci sont appelées axes ou directions de facile aimantation (en anglais Easy Magnetization Axis, ou EMA [CUL72]). En l'absence de toute autre anisotropie (échantillon parfaitement sphérique pour éviter l'anisotropie de forme), ces directions sont liées aux axes cristallins du matériau.

En effet, l'interaction d'échange bloque les orientations relatives des spins, mais n'impose aucune orientation absolue au système. L'existence d'une anisotropie dans les matériaux massifs est donc due à une interaction entre le système de spins et le réseau cristallin. Son origine physique est le couplage spin-orbite, qui traduit l'influence du champ magnétique créé par le moment orbital des électrons sur le spin. Celui-ci s'écrit sous la forme $E_{so} = \xi_{so} \mathbf{l} \cdot \mathbf{s}$, où

ξ_{so} est la constante de couplage spin-orbite, \mathbf{l} le moment orbital de l'électron et \mathbf{s} son moment de spin.

Dans les métaux 3d, ce couplage est faible, et peut être traité comme une perturbation induisant un moment orbital non nul [BAL96]. En raison de l'anisotropie du champ cristallin, ce moment a tendance à s'orienter suivant les directions cristallographiques associées à la symétrie locale du cristal. Ainsi, le couplage spin-orbite fixe dans un matériau massif une ou plusieurs direction(s) absolue(s) pour le système de spins, correspondant à la (aux) direction(s) de facile aimantation. On parle alors d'anisotropie magnétocristalline.

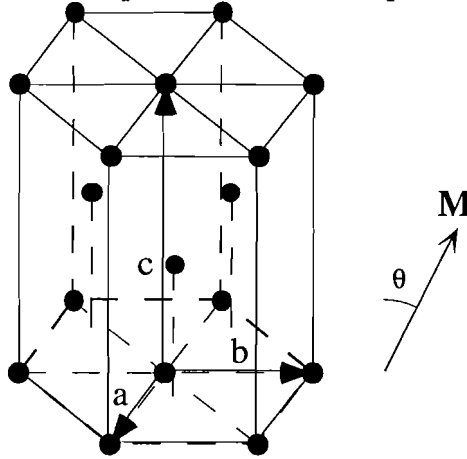


Figure 4.1: Maille hexagonale du cobalt. L'axe c est perpendiculaire au plan de base hc (0001). θ est l'angle formé par l'axe c et l'aimantation \mathbf{M} .
Pour un cristal hexagonal compact parfait, on a $c/a=1,633$.

Dans le cas de cristaux hexagonaux tels que le cobalt polycristallin texturé (voir figure 4.1), on peut exprimer l'énergie d'anisotropie magnétocristalline uniaxiale E_{mc}^v (en se limitant aux deux premiers termes non nuls, qui sont nettement supérieurs aux termes suivants [OUL94]) sous la forme:

$$E_{mc}^v = K_{1mc}^v \sin^2 \theta + K_{2mc}^v \sin^4 \theta, \quad (4.1)$$

où θ est l'angle entre l'aimantation et l'axe \mathbf{c} du cobalt (figure 4.1) et K les constantes d'anisotropie associées au métal. La structure hexagonale du cobalt, dans laquelle $c/a = 1,621$ (au lieu de 1,633 pour un cristal hc parfait), en fait un métal de forte anisotropie ($K_{1mc}^v=4,12 \cdot 10^5 \text{ J.m}^{-3}$ et $K_{2mc}^v=1,43 \cdot 10^5 \text{ J.m}^{-3}$ d'après [WOL80]) comparé au fer ou au nickel ($K_{1mc}^v=4,81 \cdot 10^4 \text{ J.m}^{-3}$ et $K_{2mc}^v=10^2 \text{ J.m}^{-3}$ pour le fer et $K_{1mc}^v=-5,6 \cdot 10^3 \text{ J.m}^{-3}$ et $K_{2mc}^v=10^2 \text{ J.m}^{-3}$ pour le nickel (ibid.), avec une définition similaire de E_{mc}).

Dans le cas de couches de cobalt déposées parallèlement au plan (0001) sur des substrats d'or (111) ou de platine (111), l'axe \mathbf{c} de la structure est perpendiculaire au plan des couches. La contribution de l'anisotropie magnétocristalline de volume tend donc (afin de minimiser l'énergie donnée par (4.1)) à aligner l'aimantation perpendiculairement au plan des couches.

Cependant, des contributions à l'anisotropie magnétique dues à la présence d'interfaces et à la forte réduction de l'une des dimensions du système entrent également en jeu.

1.2 Magnétisme des couches ultra minces

1.2.1 Anisotropie magnétique pour une interface

Anisotropie magnétocristalline de surface

L'anisotropie magnétocristalline que nous venons d'évoquer est fortement influencée par la symétrie locale du cristal, donc par la brisure de symétrie correspondant à la surface. Un modèle permettant d'évaluer le surcroît d'énergie d'anisotropie apporté par la présence d'une interface a été proposé par L.Néel, et adapté au cas des cristaux à structure hexagonale par P.Bruno [BRU89]. Au deuxième ordre, cette énergie est donnée par:

$$E_{mc}^s = K_{1mc}^s \sin^2 \theta + K_{2mc}^s \sin^4 \theta. \quad (4.2)$$

En raison de la symétrie locale quasi sphérique de la structure hexagonale, l'anisotropie en volume est relativement faible en comparaison avec l'anisotropie d'interface, zone où la brisure de symétrie est la plus marquée. Les modèles que nous venons d'évoquer permettent notamment de montrer que la constante d'anisotropie de surface K_{1mc}^s est environ 10 fois supérieure à K_{1mc}^v (voir l'équation (4.1)).

Comme le montre l'expression (4.2), cette contribution à l'anisotropie magnétique va également tendre à aligner l'aimantation avec l'axe c de la structure cristalline, c'est à dire perpendiculairement au plan d'un film de cobalt (0001) pour lequel K_s est positif.

Modifications de la structure électronique à l'interface

Une interface correspond à une rupture du motif cristallin, ce qui se traduit par des changements sensibles de la structure électronique. Des états électroniques dits de surface peuvent apparaître à des énergies différentes de celles des états de volume. Dans le cas d'une surface libre, la baisse de la coordinance des atomes de surface conduit à une diminution des largeurs de bandes. À l'interface entre deux métaux, la situation est plus complexe. D'une part, des hybridations peuvent se produire entre les bandes électroniques des deux matériaux, d'où une éventuelle augmentation de la largeur de bande, en compétition avec la diminution due à la baisse de coordinance. D'autre part, le désaccord de maille entre les deux solides conduit à une déformation de la maille cristalline à l'interface, susceptible de modifier localement la structure électronique.

En raison du caractère coulombien de l'interaction d'échange, l'effet des modifications de la structure électronique sur le magnétisme est important. Ainsi, pour une surface libre, le rétrécissement de la bande 3d à la surface se traduit par une augmentation sensible des moments magnétiques des atomes d'une surface libre par rapport au volume. En revanche, le moment des atomes situés à une interface peut diminuer, particulièrement lorsque l'hybridation entre les structures électroniques est forte [ZHO96].

Enfin, les modifications des largeurs de bandes influent sur la densité d'états au niveau de Fermi et sur l'intensité du couplage d'échange entre les spins électroniques. On peut alors assister à la polarisation localisée d'un métal paramagnétique au contact d'un métal ferromagnétique (voir [TRA98], p.129). C'est particulièrement le cas du platine au contact du cobalt [RUE91], [FER97].

1.2.2 Couches ultra minces

Dans le cas d'une couche ultra mince, ces phénomènes sont amplifiés par la présence de deux interfaces. Des contributions provenant du caractère quasiment bidimensionnel de la structure apparaissent également. En nous limitant au cas de couches ultra minces de cobalt (0001), nous allons supposer les interfaces parfaitement uniformes et abruptes, ce qui autorise une formulation simple de l'anisotropie magnétique.

Trois phénomènes physiques distincts participent à l'anisotropie des couches minces: l'anisotropie magnétocristalline, l'anisotropie magnétoélastique et l'anisotropie dipolaire. Alors que les deux premiers favorisent (pour les interfaces Co/Pt et Co/Au) l'orientation de l'aimantation perpendiculairement au plan des couches, le troisième phénomène va contribuer à orienter l'aimantation dans le plan des couches. En fonction de l'épaisseur de la couche, dont dépendent ces phénomènes, l'une ou l'autre des contributions peut l'emporter, déterminant ainsi l'orientation du système de spins liés par le couplage d'échange.

Anisotropie magnétocristalline

Comme nous l'avons vu, l'anisotropie magnétocristalline comprend deux contributions, l'une liée au volume, l'autre à la surface du matériau magnétique. On peut alors évaluer l'énergie magnétocristalline totale E_{mc} :

$$E_{mc} = VE_{mc}^v + S(E_{mc}^{s1} + E_{mc}^{s2}) \quad (4.3)$$

où V est le volume de la couche magnétique considérée, S sa surface, et E_{mc}^{s1} et E_{mc}^{s2} sont les énergies magnétocristallines respectivement associées à la première et à la seconde interface. Ces deux énergies peuvent être regroupées sous un seul terme E_{mc}^s , auquel sont associées les constantes K_{1mc}^s et K_{2mc}^s .

Avec $S=V/e$ (où e est l'épaisseur de la couche magnétique), et en utilisant les expressions (4.1) et (4.2) pour exprimer les énergies magnétocristallines, on obtient alors pour l'énergie magnétocristalline:

$$E_{mc} = V \left(\left(K_{1mc}^v + \frac{K_{1mc}^s}{e} \right) \sin^2 \theta + \left(K_{2mc}^v + \frac{K_{2mc}^s}{e} \right) \sin^4 \theta \right). \quad (4.4)$$

Anisotropie magnétoélastique

Lorsque l'on fait croître un matériau cristallin sur un autre, le désaccord de maille est compensé de deux façons. Dans un premier temps, le matériau déposé adopte le paramètre de maille du matériau sous-jacent par déformation de sa maille. Ensuite, au delà d'une épaisseur critique notée e_c , des dislocations apparaissent dans le réseau cristallin du matériau déposé et permettent la relaxation dans ce dernier. La transition de l'un à l'autre de ces régimes et son influence sur le magnétisme ont notamment été mis en évidence par les expériences de Weber et al. [WEB96] pour le système Co/Cu.

Les distorsions du réseau cristallin qui résultent de ces phénomènes influent en effet, par l'intermédiaire du couplage spin-orbite, sur l'anisotropie magnétique. Pour des épaisseurs inférieures à e_c , cela se traduit par une contribution volumique à l'anisotropie magnétique. Pour des épaisseurs supérieures à e_c , on obtient un terme d'anisotropie magnétoélastique assimilable en première approximation à un terme de surface de la forme:

$$E_{me}^s \approx SB(-\eta)e_c \sin^2 \theta, \quad (4.5)$$

où B est la constante magnétoélastique du matériau et η le désaccord entre les paramètres de maille.

Anisotropie dipolaire

La contribution macroscopique des interactions dipolaires est intimement liée à la géométrie globale du système, et a une influence déterminante sur l'anisotropie des couches minces. Si l'on considère deux moments magnétiques \mathbf{m}_i et \mathbf{m}_j , les sites i et j étant reliés par le vecteur \mathbf{r}_{ij} , l'énergie d'interaction dipolaire entre ces deux moments prend la forme:

$$E_{ij} \approx \frac{\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5}. \quad (4.6)$$

Contrairement à l'interaction d'échange, cette interaction est intrinsèquement anisotrope, en raison du second terme de (4.6). Il s'agit d'une interaction à longue distance faisant intervenir

la totalité du volume de la couche magnétique. La forte anisotropie de forme dans les couches magnétiques (c'est à dire la forte réduction de l'une des dimensions du système) intervient donc sur l'anisotropie magnétique par l'intermédiaire de ce phénomène, en favorisant une orientation de l'aimantation dans le plan des couches. Plus généralement, la forme de l'échantillon (si la couche mince n'a pas la forme d'un disque) contribue (faiblement toutefois) à l'orientation de l'aimantation.

Dans le cas d'une couche mince idéale (film infini uniformément aimanté dont les interfaces sont planes et abruptes), l'énergie dipolaire prend la forme d'une anisotropie effective dont la valeur est:

$$E_d = -2\pi VM_s^2 \sin^2 \theta, \quad (4.7)$$

où M_s est l'aimantation à saturation de la couche.

Anisotropie totale d'une couche mince parfaite

On peut donc déterminer l'énergie d'anisotropie magnétique totale d'une couche mince magnétique en effectuant la somme des trois contributions que nous venons de décrire: $E_{mc} + E_{me} + E_d$. D'après les expressions (4.4), (4.5) et (4.7), on peut alors exprimer l'anisotropie totale par unité de volume E_a comme:

$$E_a = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta, \quad (4.8)$$

où les constantes K_i prennent la forme:

$$K_i = K_i^v + \frac{K_i^s}{e}.$$

Les constantes K_i^s regroupent ici les contributions des deux interfaces, et peuvent s'écrire: $K_i^s = K^{s1}_i + K^{s2}_i$.

Directions de facile aimantation planaire / perpendiculaire

La direction prise par l'aimantation en champ nul (l'axe de facile aimantation) correspond au(x) minimum(a) de l'énergie d'anisotropie donnée par l'équation (4.8). Ce calcul peut être mis en œuvre simplement en faisant l'hypothèse que l'aimantation est uniforme dans l'échantillon.

Pour la plupart de nos travaux, nous avons utilisé des couches préparées à l'IEF. La caractérisation détaillée de ces couches ([OUL94], [TRA98]) permet d'affirmer que la constante K_2^s y est en général négligeable.

Sous cette condition, trois orientations d'équilibre sont possibles suivant l'épaisseur e de la couche magnétique [TRA98]:

- si $e \leq e_1 = -\frac{K_1^s}{K_1^v}$, alors $\theta=0$. L'axe de facile aimantation est alors perpendiculaire au plan de la couche. On parle alors de couches à anisotropie ou à aimantation perpendiculaire,
- si $e_1 < e < e_2 = -\frac{K_1^s}{K_1^v + 2K_2^v}$, alors l'axe de facile aimantation se trouve dans un cône de demi angle au sommet θ tel que $\sin^2\theta = -K_1/2K_2$. Ce cas ne peut intervenir que si K_2 est positif,
- si $e > e_2$, l'axe de facile aimantation se trouve dans le plan des couches, c'est à dire $\theta=90^\circ$. On parle alors de couches à anisotropie ou aimantation planaire.

Alors que l'axe de facile aimantation est entièrement fixé dans le premier cas, il reste libre de se mouvoir par rotation autour de l'axe perpendiculaire au plan des couches dans les deux derniers cas (respectivement suivant un cône ou un disque).

Dans des couches réelles, la moindre contribution anisotrope à l'anisotropie planaire peut suffire à décider de la direction de l'aimantation (on peut par exemple songer à une légère anisotropie de forme dans le cas d'un échantillon rectangulaire).

La discussion qui précède nous a permis de montrer l'existence d'un basculement de l'axe de facile aimantation se produisant lorsque l'on fait varier l'épaisseur de la couche magnétique. Ce basculement de perpendiculaire à parallèle au plan des couches s'effectue progressivement lorsque l'on augmente l'épaisseur de Co, en passant par un état intermédiaire où l'axe est oblique. Nous donnerons plus loin une caractérisation expérimentale de ce phénomène.

Cycles d'hystérésis associés aux axes de facile aimantation perpendiculaire et planaire

Si l'on mesure la composante perpendiculaire de l'aimantation lorsque l'on fait varier le champ appliqué perpendiculairement à une telle structure, on obtient, en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt, les cycles d'hystérésis présentés à la figure (4.2).

Ainsi, lorsque l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan des couches (a), l'aimantation reste dans tous les cas perpendiculaire. Le retournement de l'aimantation s'effectue alors brutalement entre les deux sens possibles pour cette même direction, et le cycle d'hystérésis est très carré. Lorsque l'axe de facile aimantation est dans le plan des couches (c), l'application d'un champ perpendiculaire force l'aimantation à s'aligner avec le champ appliqué. La composante perpendiculaire de l'aimantation varie alors progressivement et de manière réversible, d'où l'absence d'hystérésis. Dans le cas (b), on a en quelque sorte une combinaison de ces deux comportements, donc un hystérésis plus arrondi. Les branches verticales du cycle correspondant au retournement brutal du sens de l'aimantation, et les parties arrondies à un rétrécissement progressif de l'angle du cône de l'aimantation (donc à une augmentation de la composante polaire de l'aimantation) pour de forts champs appliqués.

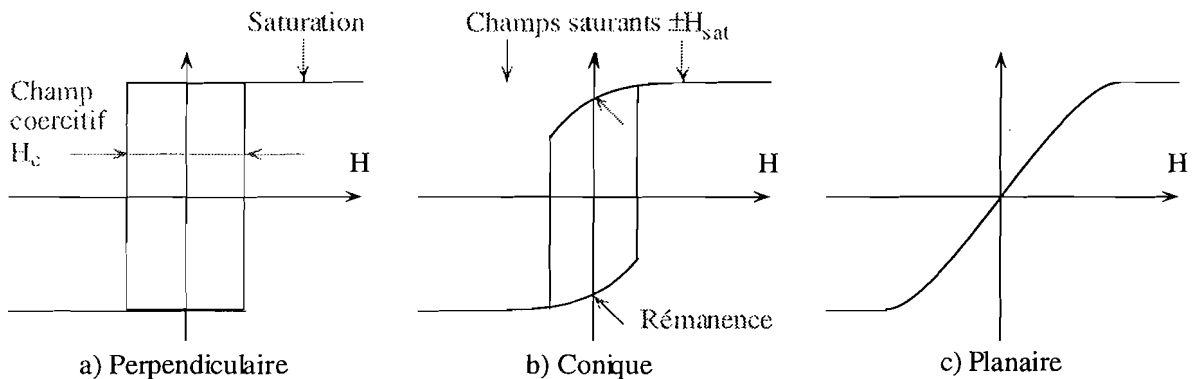


Figure 4.2: représentation schématique des cycles d'hystérésis obtenus en mesurant la composante polaire de l'aimantation (par exemple à l'aide de l'effet MOKE), le champ H étant appliqué perpendiculairement au plan des couches, et pour trois épaisseurs e différentes de la couche de cobalt: a) $e \leq e_1$, b) $e_1 < e < e_2$ et c) $e > e_2$.

En grisé, l'illustration de quelques termes usuels en magnétisme.

La figure (4.2) représente les cycles obtenus dans la configuration polaire, qui est la plus souvent utilisée en magnéto-optique linéaire. Cependant, il est beaucoup plus courant, en magnéto-optique non linéaire, de mesurer des cycles en configuration planaire (le contraste magnétique est alors beaucoup plus fort qu'en configuration polaire). Il importe donc de souligner que l'allure de ces cycles dépend de la direction d'application du champ et de la composante de l'aimantation qui est mesurée. Ainsi, si l'on applique un champ dans le plan des couches et que l'on mesure la composante longitudinale de l'aimantation, la situation est strictement opposée à celle représentée ici: aucun cycle d'hystérésis n'est obtenu lorsque l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux couches, mais on observe un cycle relativement carré lorsque l'aimantation est dans le plan.

1.3 Structures en domaines

Dans ce qui précède, nous avons décrit comme abrupt le retournement de l'aimantation d'un état «haut» à un état «bas». L'aimantation se retourne effectivement assez brutalement à l'échelle de nos mesures non résolues en temps. En revanche, l'évolution spatiale de ce phénomène est plus progressive. Dans certaines conditions, elle s'effectue via le retournement ou la propagation de zones appelées domaines magnétiques dont les sens d'aimantation sont différents. Ces domaines apparaissent pour un champ donné correspondant au début du retournement de l'aimantation sur des sites dits «de nucléation» (généralement des défauts) où le champ coercitif est localement le plus faible.

Dans un matériau ferromagnétique, la configuration des domaines est déterminée par la minimisation de l'énergie totale du système. Cette énergie englobe de nombreuses contributions: énergie d'échange, d'anisotropie, magnétostatique, magnétostrictive ou encore

énergie Zeemann si un champ externe est appliqué. Ces domaines sont séparés par des parois de domaines d'épaisseur finie (nanométrique) qui sont souvent, dans les films minces, des parois dites de Néel. Dans ce type simple de paroi, l'aimantation tourne continûment de la direction principale d'un domaine à la direction principale dans le domaine adjacent autour d'un axe situé dans le plan de la paroi.

La forme, la taille et la nature des domaines dans les films minces magnétiques sont très variées, et dépendent fortement des caractéristiques intimes de l'échantillon, dans la mesure où les énergies mises en jeu sont très faibles. L'étude des domaines magnétiques est donc une source d'information très riche, et a fait l'objet de nombreux travaux. La plupart de ces travaux ont été effectués par effet Kerr magnéto-optique, MFM ou microscopie électronique et sont relatifs à des structures à anisotropie perpendiculaire.

Concernant les structures en domaines et les techniques d'imagerie et de caractérisation associées, on pourra consulter l'ouvrage très complet [HUB98B].

1.4 Mesures par doublage de fréquence en présence de domaines magnétiques

Jusqu'à présent, nous avons supposé que la totalité de la zone sur laquelle s'effectuent les mesures par doublage de fréquence ne contenait qu'une orientation d'aimantation uniforme. Dès lors que l'on s'intéresse à un échantillon présentant une structure en domaines magnétiques, ce n'est plus nécessairement le cas. Plusieurs sens et/ou orientations d'aimantations peuvent alors coexister dans la zone sondée par le faisceau, particulièrement si les domaines sont de petite taille par rapport à celle du faisceau sondé.

Nous allons considérer le cas simple où ces domaines admettent deux aimantations de sens opposés mais de même direction, dans le plan de l'échantillon et dans le plan d'incidence (configuration longitudinale). Nous noterons D et G (pour Droite et Gauche) ces deux sens d'aimantation (voir fig. (4.3)). Soient S_D et S_G les surfaces respectivement occupées par l'ensemble de ces domaines. Si S_M est la surface sur laquelle est effectuée la mesure, on peut alors définir les rapports $r_D = S_D/S_M$ et $r_G = S_G/S_M = 1 - r$ comme les proportions de la zone sondée qui sont respectivement orientées D ou G. Évidemment, si les domaines sont suffisamment petits devant la taille de la zone sondée, ces grandeurs se ramènent simplement aux proportions relatives de domaines D ou G dans l'échantillon.

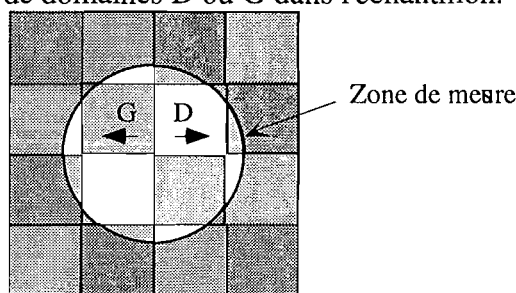


Figure 4.3: Échantillon idéalisé comportant des domaines carrés. Ici, $r_D = r_G = r = 1/2$.

En magnéto-optique linéaire, c'est à dire en MOKE, la rotation Kerr mesurée sur une zone donnée dépend linéairement de la proportion entre les domaines orientés D ou G (donc de r). Il en va autrement du doublage de fréquence, pour lequel le signal mesuré dépend quadratiquement de cette proportion. Hübner et Bennemann, en examinant les informations apportées par la polarisation des ondes fondamentales et doublées sur les structures en domaines, ont considéré uniquement le cas particulier (représenté schématiquement sur la figure (4.3)) pour lequel on a des domaines de surfaces égales, soit $r=1/2$ [HUB97]. Ces auteurs mentionnent brièvement que les choses changent si l'on s'éloigne de ce cas, et que cet effet pourrait être utilisé pour examiner la répartition des domaines, mais n'examinent pas cette possibilité plus en détail. Les conséquences en sont pourtant importantes, comme nous allons le voir.

En reprenant le formalisme utilisé au paragraphe 3.1.2, on a, en configuration longitudinale, les éléments non nuls suivants:

- χ_{xxz} , χ_{zxx} et χ_{zzz} , non magnétiques (pairs)
- χ_{yxx} et χ_{yzz} , magnétiques (impairs).

Il en résulte, nous l'avons déjà vu, que la contribution d'origine non magnétique au doublage de fréquence est entièrement polarisée p, tandis que la contribution d'origine magnétique est polarisée s.

Lorsque l'aimantation est uniforme, l'expression (2.14) donne l'expression de l'éclairement à 2ω comme la somme de deux composantes d'origine non magnétique et magnétique respectivement polarisées p et s, et déphasées de φ : $I^{(2\omega)}(\pm\mathbf{M}) \propto |\chi_{nm} \pm \chi_m e^{i\varphi}|^2$.

À présent, du fait de la coexistence de deux zones d'aimantations opposées, la composante magnétique est changée en proportion du rapport r , et il faut écrire de manière analogue:

$$\begin{aligned} I^{(2\omega)}(r) &\propto |\chi_{nm} + (1-r)\chi_m e^{i\varphi} - r\chi_m e^{i\varphi}|^2 \\ &= (1-2r)^2 \chi_m^2 + 2(1-2r)\chi_{nm}\chi_m \cos \varphi + \chi_{nm}^2 \end{aligned} \quad (4.9)$$

Si l'on utilise un analyseur formant un angle α par rapport au plan d'incidence, l'éclairement à 2ω est proportionnel à:

$$\begin{aligned} I^{(2\omega)}(\alpha, r) &\propto |\chi_{nm} \cos \alpha + (1-2r)\chi_m e^{i\varphi} \sin \alpha|^2 \\ &= (1-2r)^2 \chi_m^2 \sin^2 \alpha + 2(1-2r)\chi_{nm}\chi_m \cos \alpha \sin \alpha \cos \varphi + \chi_{nm}^2 \cos^2 \alpha \end{aligned} \quad (4.10)$$

Ici, si l'on prend respectivement $r=0$ ou $r=1$, c'est à dire une aimantation uniforme dans la zone de mesure, on retrouve respectivement les expressions $I^{(2\omega)}(+\mathbf{M})$ et $I^{(2\omega)}(-\mathbf{M})$ données par (2.17). Dans le cas particulier où $r=1/2$, on trouve simplement $I^{2\omega}(\alpha) = \chi_{nm}^2 \cos^2 \alpha$, et l'on retrouve les conclusions de Hübner et Bennemann concernant ce cas, à savoir $I^{2\omega}(90^\circ)=0$ et $I^{2\omega}(0^\circ)\neq 0$ [HUB97].

Comme on peut le voir, les éclaircissements donnés par les équations (4.9) et (4.10) dépendent quadratiquement de r . Une implication importante de ce résultat est que, en présence d'une structure en domaines, le signal à la fréquence double et le signal MOKE vont évoluer différemment si l'on modifie le poids respectif des domaines. Ce cas de figure est typiquement celui que l'on rencontre lors de la mesure d'hystérésis, où l'évolution du champ magnétique appliqué entraîne une évolution des domaines lors du retournement de l'aimantation. La plus grande prudence s'impose alors lorsque l'on compare des cycles d'hystérésis réalisés selon les deux méthodes. Soulignons que l'expression (4.9) ne préjuge en rien de l'orientation de l'aimantation, et reste valable si celle-ci est transverse ou polaire, pourvu que les aimantations dans les domaines soient de sens opposés mais de même direction. Il est évidemment possible d'établir une relation similaire à (4.10) pour les configurations transverse ou polaire, et pour des polarisations incidentes autres que p .

Exemple d'application

En utilisant, comme au paragraphe 3.1.2, $\phi_k = \frac{\chi_m}{\chi_{nm}}$, on peut réécrire l'équation (4.10) sous

$$\text{la forme: } I^{(2\omega)}(\alpha, r) \propto (1 - 2r)^2 \phi_k^2 \sin^2 \alpha + 2(1 - 2r) \phi_k \cos \alpha \sin \alpha \cos \varphi + \cos^2 \alpha. \quad (4.10b)$$

Une simple étude polarimétrique permet alors d'accéder aux paramètres ϕ_k et φ , donc d'évaluer cette dernière expression numériquement. On peut par exemple supposer que le paramètre r décroît linéairement avec le champ magnétique (pointillés sur la figure). En prenant par exemple les valeurs $\alpha = -45^\circ$, $\phi_k = 0,3$ et $\varphi = 20^\circ$, on obtient alors pour les variations de $I^{(2\omega)}$ le graphe en traits pleins de la figure suivante:

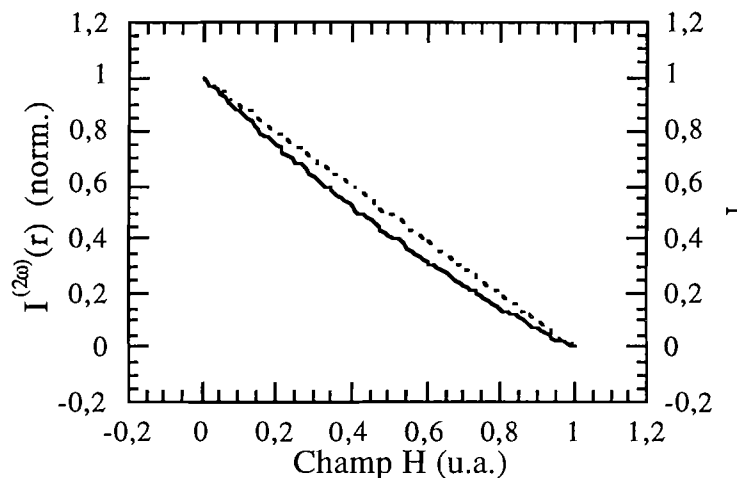


Figure 4.3b: Comparaison entre les variations du paramètre r (défini plus haut), supposé linéairement dépendant de l'aimantation (pointillés) et l'éclaircissement résultant $I^{(2\omega)}(r)$, pour les paramètres $\alpha = -45^\circ$, $\phi_k = 0,3$ et $\varphi = 20^\circ$.

Dès lors, on peut comprendre que cet effet va contribuer à déformer notablement les cycles d'hystérésis observés par doublage de fréquence, pour les gammes de champs magnétiques où plusieurs domaines sont susceptibles d'être présents dans la zone de mesure.

2 Une technique linéaire: l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE)

Afin de démontrer la sensibilité du doublage de fréquence à l'aimantation des interfaces, il semble nécessaire de pouvoir le comparer avec une technique sensible, au contraire, à l'aimantation dans le volume de la couche mince.

L'effet Kerr magnéto-optique (Magneto-Optical Kerr Effect ou MOKE en anglais) est l'une des méthodes les plus largement utilisées pour la caractérisation de films minces magnétiques en raison de sa relative simplicité et de la finesse des informations auxquelles elle donne accès («The technique is [...] rude but not crude», selon les propres mots de J.Kerr, rapportés dans [QIU98]). Ce même phénomène est à la base d'applications technologiques importantes, puisqu'il permet notamment le processus de lecture des supports d'enregistrement magnéto-optique.

La découverte de cet effet résulte principalement des travaux de M. Faraday puis de J.Kerr au 19^{ème} siècle. Il s'agit schématiquement d'une modification de la polarisation de la lumière se produisant à la traversée (on parle alors généralement d'effet Faraday) ou en réflexion (il s'agit de l'effet Kerr magnéto-optique) sur un milieu où règne un champ magnétique. Dans les deux cas, l'effet observé provient de tout le volume traversé par le faisceau sonde, y compris dans la configuration en réflexion pour laquelle le faisceau pénètre dans le métal sur 50 nm environ avant d'être réfléchi. Des informations sur la surface peuvent dans certains cas être extraites (indirectement) de ce signal, et on parle alors de SMOKE (Surface MOKE) [BAD86]. Cependant, cette technique n'a, contrairement au doublage de fréquence, aucune sensibilité intrinsèque aux interfaces et est essentiellement sensible au volume de l'échantillon magnétique.

Par opposition avec le doublage de fréquence, nous qualifierons souvent par la suite cette technique de *linéaire*, dans la mesure où elle ne fait intervenir aucune conversion de fréquence (le faisceau incident et le signal mesuré sont à la pulsation fondamentale ω).

Notons également afin d'éviter toute confusion que l'effet Kerr magnéto-optique est distinct de l'effet Kerr «classique» qui est un effet électro-optique du deuxième ordre.

2.1 Description microscopique classique

Une approche quantique du calcul des effets magnéto-optiques a été initiée en 1932 par Hulme, puis poursuivie notamment avec les travaux de Kittel [KIT51], Argyres [ARG55], ou Shen [SHE64]. Depuis, des résultats remarquables ont été obtenus à l'aide de théories *ab initio* [EBE96], mais le recours à un modèle phénoménologique s'avère indispensable en pratique.

Qualitativement, il est possible de comprendre l'effet Kerr sans faire appel à ces théories, en considérant que les propriétés diélectriques d'un matériau sont liées aux mouvements des électrons. Lorsqu'une onde électromagnétique est appliquée à un matériau, son champ électrique suscite un mouvement des électrons, donc un moment dipolaire. En l'absence de champ magnétique, on comprend qu'une lumière polarisée circulaire gauche induit un mouvement de rotation des électrons vers la gauche, tandis qu'une lumière polarisée circulaire droite induit une rotation vers la droite. Les rayons de ces orbites (donc les moments dipolaires associés) sont les mêmes, et il n'y a alors aucune rotation Faraday.

Si l'on applique à présent un champ magnétique externe dans la direction de propagation de l'onde électromagnétique, la force de Lorentz intervient sur le mouvement des électrons. Cette force est dirigée vers le centre ou vers l'extérieur de la trajectoire circulaire de l'électron, suivant que celle-ci est parcourue vers la gauche ou vers la droite. Le rayon de la première trajectoire est alors réduit alors que celui de la seconde augmente. Cette différence se traduit par des constantes diélectriques différentes pour les deux polarisations, et est à la source des effets magnéto-optiques considérés ici.

2.2 Description phénoménologique

Les descriptions macroscopiques de ces phénomènes sont basées sur une analyse du tenseur diélectrique, qui introduit des indices de réfraction différents pour les polarisations circulaires droite et gauche [QIU98]. La réponse d'un milieu à un champ externe peut en effet être décrite (dans l'approximation de l'optique linéaire, suffisante ici) par un tenseur 3×3 ϵ . Dans le cas d'un matériau isotrope, ce tenseur se réduit à la matrice unité multipliée par la constante diélectrique du milieu.

D'une manière générale, ce tenseur peut être séparé en deux parties, l'une symétrique et l'autre antisymétrique: $\epsilon_{ij} = (\epsilon_{ij} + \epsilon_{ji})/2 + (\epsilon_{ij} - \epsilon_{ji})/2$. La partie symétrique peut être diagonalisée par une rotation appropriée du système de coordonnées. Les valeurs propres sont alors identiques pour un milieu isotrope, mais sont différentes pour un milieu anisotrope. Quoi qu'il en soit, un faisceau se propageant le long des trois axes principaux ne voit pas sa polarisation modifiée par cette partie symétrique du tenseur. Cette partie symétrique du tenseur ne donnant donc lieu à aucun effet Faraday, nous la supposons isotrope et associée à une constante diélectrique ϵ_0 .

Afin de comprendre l'effet de la partie antisymétrique, on peut considérer le cas particulier d'un faisceau se propageant le long de l'axe z dans un milieu dont le tenseur diélectrique est de la forme (si \mathbf{M} est parallèle à \mathbf{z}):

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon \begin{pmatrix} 1 & iQ & 0 \\ -iQ & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix},$$

où Q ($Q \propto M = M_z$) est le paramètre de couplage magnéto-optique appelé constante de Voigt. On peut alors montrer que les deux modes orthogonaux de l'onde sont la polarisation circulaire gauche ($E_y = iE_x$) à laquelle est associée $\epsilon_g = \epsilon(1-Q)$, et circulaire droite ($E_y = -iE_x$) avec $\epsilon_d = \epsilon(1+Q)$. On a donc une différence d'indice de réfraction pour ces deux modes qui (au premier ordre) dépend linéairement de Q .

Si l'on considère à présent le cas général d'un matériau ayant une aimantation quelconque, où le tenseur diélectrique a la forme:

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon \begin{pmatrix} 1 & iQ_z & -iQ_y \\ -iQ_z & 1 & iQ_x \\ iQ_y & -iQ_x & 1 \end{pmatrix},$$

on a toujours les modes orthogonaux polarisés circulairement gauche et droit. Les indices de réfraction qui leur sont associés sont à présent respectivement $n_g = n(1 - \mathbf{Q} \cdot \mathbf{k}/2)$ et $n_d = n(1 + \mathbf{Q} \cdot \mathbf{k}/2)$, où $n = \epsilon^{1/2}$ est l'indice de réfraction moyen (au sens classique), \mathbf{k} est le vecteur unitaire suivant la direction de propagation et $\mathbf{Q} = (Q_x, Q_y, Q_z)$ est appelé vecteur de Voigt [QIU98].

La rotation complexe de la polarisation suscitée par un matériau de longueur L est alors:

$$\theta = \frac{\pi L}{\lambda} (n_g - n_d) = -\frac{\pi L n}{\lambda} \mathbf{Q} \cdot \mathbf{k}.$$

La partie réelle de cette expression correspond alors à la rotation, et la partie imaginaire à l'ellipticité introduits par cet effet.

À une onde incidente polarisée linéairement correspond une onde réfléchie polarisée elliptiquement. La figure 4.4 donne la définition de la rotation θ_k et de l'ellipticité Kerr ϵ_k . N.B.: le signe des diverses grandeurs mentionnées pose souvent problème. On pourra consulter à ce sujet [NYV96].

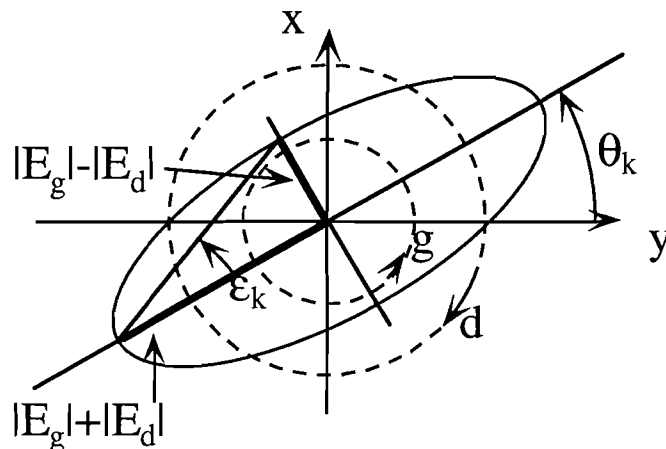


Figure 4.4: Définition des angles de rotation et d'ellipticité Kerr θ_k et ϵ_k . Les relations avec les polarisations circulaires droite (d) et gauche (g) associées sont également indiquées;

Comme dans le cas du doublage de fréquence, on distingue trois configurations principales d'utilisation du MOKE:

- la configuration polaire (champ appliqué perpendiculairement à l'échantillon). Le faisceau frappe l'échantillon perpendiculairement (ou presque) à sa surface. La polarisation du faisceau incident est alors indifférente. La rotation et l'ellipticité ne dépendent alors que de la composante normale de l'aimantation. Il faut noter que cette configuration est la plus utilisée expérimentalement. Elle permet en effet d'obtenir des rotations Kerr nettement supérieures aux deux configurations qui suivent (plus d'un ordre de grandeur en général),
- la configuration longitudinale (champ appliqué dans le plan de l'échantillon et dans le plan d'incidence). Le faisceau frappe alors l'échantillon avec un angle non nul. Les polarisations s et p ont un comportement différent. La mesure de la rotation pour ces deux polarisations permet d'accéder à des informations sur les composantes normale et longitudinale de l'aimantation [YOU97]. Nous avons souvent utilisé cette configuration expérimentale afin d'effectuer des comparaisons avec les mesures longitudinales par doublage de fréquence,
- la configuration transverse (champ dans le plan de l'échantillon et perpendiculaire au plan d'incidence). Celle-ci utilise un principe légèrement différent, puisque seule la polarisation p est affectée, la lumière polarisée s restant inchangée. On mesure alors une simple variation d'éclairement. On peut se ramener à la mesure d'une rotation en utilisant un faisceau incident polarisé à 45°. Nous n'avons pas utilisé la configuration transverse dans ce travail.

Des modèles permettant une bonne modélisation des effets survenant dans des structures multicouches existent. La plupart utilisent une formulation matricielle pour tenir compte des réflexions multiples et des interférences dans de tels systèmes. Ces modèles sortent du cadre de notre travail, mais on pourra consulter à ce sujet [NYV96] ou [TRA98] (travaux eux-mêmes basés sur ceux de P.Yeh et S.Visnovsky)

2.3 Méthodes expérimentales et montage

Les rotations de polarisation dues à l'effet Faraday peuvent être conséquentes. Par contre, les rotations obtenues par MOKE en réflexion sur des films minces, du fait de la faible longueur d'interaction (deux fois l'épaisseur du film mince magnétique au maximum), sont typiquement de l'ordre de quelques dixièmes ou du centièmes de degré en configuration polaire, et de l'ordre de 10^{-2} à 10^{-3} degrés en configuration longitudinale. Une mesure simple entre polariseur et analyseur croisés peut être utilisée pour l'imagerie de domaines magnétiques. Cependant, elle n'est en général pas suffisante, et il est nécessaire d'utiliser un montage plus performant.

Les techniques employées sont basées sur l'utilisation d'une modulation périodique de la polarisation du faisceau réfléchi par l'échantillon, ce qui permet l'utilisation d'une détection synchrone. Cette modulation peut être obtenue par deux méthodes distinctes: La modulation d'azimut à l'aide d'un rotateur de Faraday, ou la modulation d'ellipticité à l'aide d'un modulateur photoélastique. Nous avons principalement utilisé la modulation d'azimut, selon un montage similaire à celui utilisé dans l'équipe de S.Visnovsky [NYV97], en raison de la simplicité du modulateur utilisé. Nous allons donc décrire cette seule méthode. Notons toutefois que les mesures effectuées à l'IEF ou au LPS utilisent un montage à modulation photoélastique [PEN93].

La modulation d'azimut.

Ce montage, décrit en détail dans [NYV96], utilise comme modulateur une cellule de Faraday. Celle-ci est constituée d'un simple barreau de verre (ou de silice fondue) inséré dans un solénoïde. Puisque l'angle de rotation Faraday est proportionnel au courant électrique dans la bobine, la fréquence de modulation est simplement déterminée par celle du courant alternatif dans la bobine. Ce courant est dans notre cas généré par un amplificateur audiofréquence relativement puissant. Des capacités sont introduites en série dans le circuit afin d'obtenir une résonance, qui détermine de manière précise la fréquence de modulation. Ce type de modulateur est donc très simple à construire, et permet d'obtenir des amplitudes de modulation de l'ordre du degré. Cependant, il présente des imperfections, probablement dues à des fluctuations thermiques. De plus, il est nécessaire d'isoler le modulateur des champs magnétiques utilisés pour aimanter l'échantillon afin d'éviter la rotation Faraday induite dans le barreau de verre. Il est prévu d'utiliser prochainement un modulateur photoélastique afin d'éliminer ces problèmes.

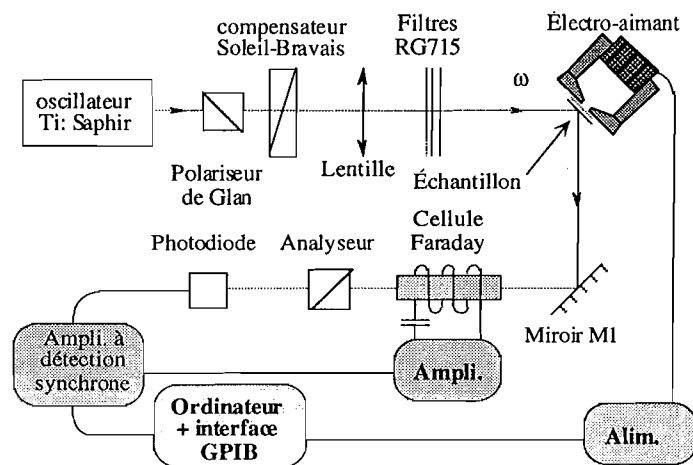


Figure 4.6: Schéma du montage utilisant comme modulateur une cellule de Faraday.

Dans le montage que nous avons réalisé, la modulation s'effectue après l'échantillon (figure (4.6)). Il est ainsi possible de passer simplement du montage en doublage de fréquence (voir chapitre précédent) au montage MOKE en intercalant le miroir M1. On utilise donc le même faisceau et les mêmes optiques pour les mesures MOKE ou à la fréquence double. Il est ainsi possible d'être certain que le faisceau frappe dans les deux cas le même endroit sur l'échantillon, ce qui est indispensable pour une comparaison valable des deux techniques. L'un des inconvénients de ce système est que le laser Ti:saphir est moins stable (en puissance moyenne et en polarisation) que les lasers simples qui sont généralement utilisés pour les mesures MOKE. Les mesures sont donc plus délicates avec notre source laser.

Afin de résoudre partiellement ce problème, nous utilisons, comme pour les mesures en doublage de fréquence, une compensation des fluctuations du laser. Ceci peut être effectué de manière élégante (et sans adjonction d'éléments optiques) grâce à une intéressante propriété de notre technique de modulation. Il est en effet possible d'obtenir, à la fréquence double de la fréquence de modulation F_m , un signal proportionnel à l'éclairement I_0 délivré par le laser. Après l'analyseur, l'éclairement reçu par la photodiode est de la forme:

$$\begin{aligned} I &= I_0 \cos^2 \varphi \\ I &= I_0 \cos^2(\pi/2 + \phi_k + A \sin \omega_m t) \\ I &= I_0 \sin^2(\phi_k + A \sin \omega_m t) \end{aligned}$$

où le déphasage $\pi/2$ est dû au fait que le polariseur et l'analyseur sont croisés, ϕ_k est la rotation Kerr à mesurer et le terme $A \sin \omega_m t$ résulte de la modulation (d'amplitude A et de pulsation ω_m) par la cellule de Faraday. Puisque les angles ϕ_k et $A \sin \omega_m t$ sont petits (comme nous l'avons vu, $\phi_k \approx 10^{-1} \text{ }^\circ$ à 10^{-4} ° et $A < 1^\circ$), on peut écrire au deuxième ordre :

$$\begin{aligned} I &\approx I_0 \phi_k^2 + 2I_0 A \phi_k \sin \omega_m t + I_0 A^2 \sin^2 \omega_m t \\ &= I_0 \phi_k^2 + \frac{I_0 A^2}{2} + 2I_0 A \phi_k \sin \omega_m t + \frac{I_0 A^2}{2} \cos 2\omega_m t \end{aligned}$$

On a donc à la fréquence de modulation ω_m un terme proportionnel à $2I_0 A \phi_k$, et à la fréquence double $2\omega_m$ un terme proportionnel à $I_0 A^2/2$. On peut donc s'affranchir de l'éclairement I_0 délivré par le laser en effectuant le rapport de ces deux composantes, et on obtient alors $I(\omega_m)/I(2\omega_m) = 4\phi_k/A$.

L'amplificateur à détection synchrone que nous utilisons permet d'extraire simultanément ces deux composantes du signal mesuré par la photodiode. L'ensemble du montage est piloté par un programme qui pilote le champ appliqué par l'aimant à l'échantillon, effectue l'acquisition, puis calcule le rapport des deux grandeurs.

La valeur exacte de ϕ_k est obtenue après étalonnage (il suffit de mesurer les variations de signal correspondant à des rotations connues de l'analyseur).

3 Propriétés des structures à base de cobalt

3.1 Le système Au/Co

3.1.1 Introduction

Un très grand nombre d'études a été mené concernant des couches métalliques déposées sur des substrats monocristallins ou des couches tampon d'or. L'utilisation de ce métal comme base de dépôt est en effet très commode dans la mesure où il est non miscible avec la majorité des métaux ferromagnétiques. De plus, en dépit d'une importante différence entre les paramètres de maille de l'or et de la plupart de ces métaux (14% en l'occurrence pour le cobalt), la croissance du métal ferromagnétique semble s'effectuer dans de bonnes conditions, quasiment couche par couche à partir de 2 ou 3 plans atomiques de cobalt [TRA98]. Des caractérisations structurales ont permis d'avoir une image précise des phénomènes de croissance et de la qualité cristalline des échantillons [MAR97, CES89, MAR91, OUL94, TRA98]. L'étude de surfaces d'or par doublage de fréquence et par microscopie AFM que nous avons présentée au chapitre III s'inscrit en quelque sorte dans la continuité de tels travaux.

Ainsi, les échantillons à base d'or et de cobalt ont des rugosités faibles et des interfaces bien définies (absence d'alliages aux interfaces). Leur qualité cristalline et leur relative simplicité permet ainsi d'en étudier les propriétés physiques en évitant certaines ambiguïtés. Ces qualités et les excellentes compétences développées à Orsay dans la réalisation et l'étude des tricouches Au/Co/Au en font un système idéal pour l'étude de phénomènes fondamentaux [VIS93] [FER90]. Le caractère abrupt des interfaces et le fort couplage d'échange dans ces structures permet de prévoir des différences faibles entre les propriétés magnétiques aux interfaces et dans le volume.

Un couplage oscillant entre couches magnétiques à travers un métal paramagnétique a notamment pu être observé à l'aide de mesures de magnéto-résistance [GRO93]. Les effets magnétooptiques mesurés in-situ ont également permis de mettre en évidence des modifications de l'anisotropie magnétique dues à la déposition de fines couches de métal paramagnétique en couverture [BEA94]. L'existence d'effets quantiques de taille a également pu être montrée à l'aide de mesures MOKE sur des échantillons en damiers comportant des zones d'épaisseurs différentes [MEG95].

Un grand nombre de ces études a souligné l'influence déterminante des interfaces sur les propriétés de ces systèmes. Des études par réflexion de neutrons polarisés et par magnéto-optique spectroscopique ont été menées par C.Train au sein de l'équipe de P.Beauvillain [TRA98] afin de comprendre les relations entre rugosité et magnétisme, mais beaucoup de questions restent ouvertes. Les caractérisations par doublage de fréquence ont sans doute un rôle important à jouer dans ce domaine.

La plupart des études pionnières ayant observé l'influence de l'aimantation d'interfaces enterrées sur le doublage de fréquence ont en effet été effectuées sur des échantillons Au/Co/Au [SPI93a, SPI93b, WIE94, WIE95]. Par la suite, des études ont été menées sur des échantillons Au/Co/Au, pour lesquels le doublage de fréquence a mis en évidence des états de puits quantique dans la couche supérieure d'or de systèmes Au/Co/Au [GRO96, KIR96]. Ces travaux confirment l'intérêt du système Au/Co/Au pour le type d'études fondamentales que nous allons mener.

3.1.2 Conditions d'élaboration des échantillons

Les échantillons que nous avons utilisés ici ont tous été réalisés à l'IEF, suivant une procédure décrite en détail dans [OUL94] ou [CES89].

Le substrat de ces structures est constitué de verre flotté (float glass en anglais). Il s'agit de verre obtenu par solidification sur un bain d'étain en fusion, et dont la rugosité est très faible. Après un chauffage à 280°C (dégazage), le verre est refroidi à -60°C pendant le dépôt de la couche tampon d'or, qui est effectué à la vitesse de 13 P.A./min. Le substrat est ensuite recuit à 220°C durant une heure afin d'améliorer l'état de la surface.

La couche de cobalt est alors déposée à faible vitesse (0,8 P.A./min), ce qui permet notamment un bon contrôle de l'épaisseur. D'après les observations RHEED [OUL94], la croissance du cobalt est pseudomorphique pour les premiers plans atomiques déposés. Il y a ensuite relaxation du pas du réseau vers une valeur légèrement supérieure à celle du cobalt massif, grâce à des dislocations.

Afin d'éviter la dégradation du cobalt par l'oxydation atmosphérique, une couche d'or est déposée à une vitesse de 1 ou 2 P.A./min. Une épaisseur de 15 P.A. d'or protège un échantillon pendant plus d'un an. Il est cependant nécessaire d'utiliser des couches de couverture aussi minces que possible, puisque leur absorption optique va réduire les signaux magnéto-optiques des interfaces enterrées. La croissance de l'or sur le cobalt s'effectue assez bien, puisque ce dernier métal a alors un effet surfactant qui contribue au lissage des interfaces Co/Au et Au/air [OUL94].

Lors de la déposition de chacune des couches, il est possible de déplacer un cache mobile afin de réaliser des structures en escalier ou en damier si l'on tourne l'échantillon de 90 °, permettant de disposer d'épaisseurs différentes sur un même échantillon.

3.1.3 Retournement de l'axe de facile aimantation mesuré en configuration longitudinale

Le premier de ces échantillons que j'ai étudié est une structure Au (15 plans atomiques) / Co (3 à 17 P.A.) / Au (280 Å) / verre réalisée selon la procédure que nous venons de décrire. La structure en damier réalisée sur cet échantillon permet ainsi de disposer de 14 épaisseurs de cobalt différentes sur le même échantillon. Cette gamme d'épaisseur doit permettre d'observer les conséquences du basculement de l'aimantation (décrit au paragraphe IV.1), de perpendiculaire à parallèle au plan du film pour de plus fortes épaisseurs. Les observations relatives à ce basculement effectuées à l'aide du doublage de fréquence et du MOKE en configuration longitudinale exhibent des différences permettant d'éclairer les spécificités de chacune des techniques (notamment la sensibilité sélective du doublage de fréquence à l'aimantation d'interface).

Mesure du contraste magnétique en fonction de l'angle de l'analyseur

Pour une épaisseur de cobalt de 17 plans atomiques, l'aimantation est dans le plan du film, comme nous le vérifierons expérimentalement plus loin. Nous avons mesuré, pour cette épaisseur, le contraste magnétique en configuration longitudinale (champ H appliqué dans le plan de l'échantillon et dans le plan d'incidence) en fonction de l'angle de l'analyseur α (défini comme l'angle par rapport à la polarisation p). Le faisceau fondamental est polarisé p. Dans cette configuration, il est possible de modéliser le comportement du contraste par l'expression (2.18) (démonstration effectuée au chap.II) :

$$\rho(\alpha) = \frac{I(\alpha, +M) - I(\alpha, -M)}{I(\alpha, +M) + I(\alpha, -M)} = 2 \frac{\phi_k \tan \alpha \cos \varphi}{1 + \phi_k^2 \tan^2 \alpha}$$

Grâce à cette expression, la mesure du contraste magnétique autorise l'accès à deux paramètres importants: le rapport des amplitudes ϕ_k et la différence de phase φ entre les composantes magnétique et non magnétique. Comme on peut le voir sur la figure (4.7), l'accord avec l'expérience est très bon, et permet d'obtenir les valeurs $\phi_k=0,083\pm0,002$ et $\varphi=25^\circ\pm2^\circ$.

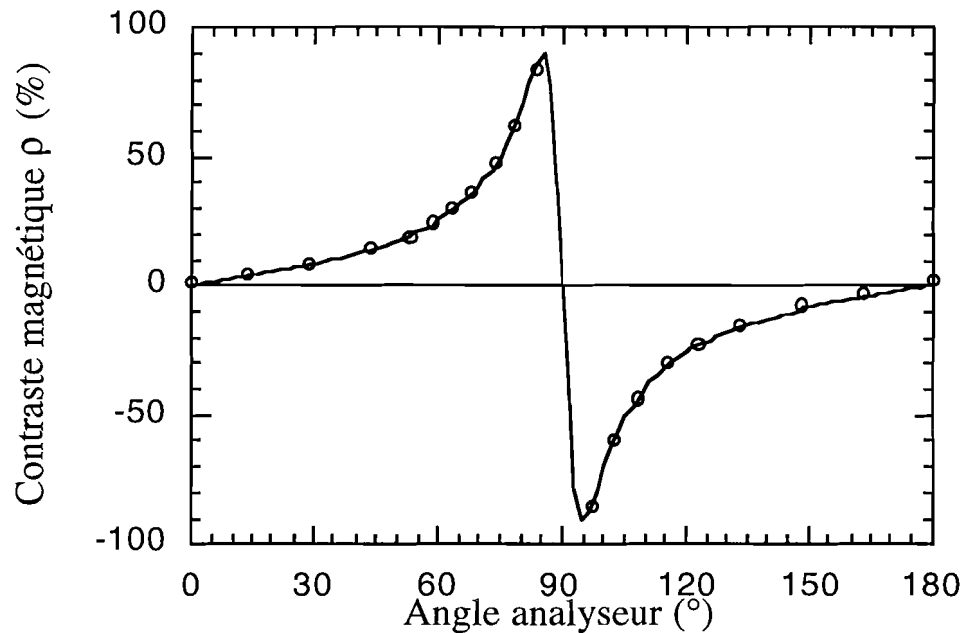


Figure (4.7): *Contraste magnétique longitudinal mesuré en fonction de l'angle de l'analyseur par rapport à la position p (cercles). Le faisceau fondamental est polarisé p. L'épaisseur de Co est de 17 P.A.. La courbe en traits pleins est obtenue à l'aide de l'équation (2.18) pour les paramètres $\phi_k=0,083\pm 0,002$ et $\varphi=25^\circ\pm 2^\circ$.*

Mesure du contraste magnétique longitudinal en fonction de l'épaisseur de cobalt

Nous allons à présent fixer la position de l'analyseur à 78° du polariseur (toujours en position p). En effet, cette valeur permet d'obtenir un bon contraste (de l'ordre de 50% pour 17 P.A. de cobalt), tout en offrant un fort signal total doublé en fréquence (voir la discussion § II.3.1.2).

Le champ magnétique étant appliqué en configuration longitudinale, nous avons mesuré, en fonction de l'épaisseur de cobalt, le contraste magnétique. Un champ magnétique saturant (de l'ordre de 1 kOe) est appliqué à l'aide des bobines de Helmholtz pendant quelques millisecondes, puis les mesures sont effectuées à la rémanence (c.à.d. en $H=0$). L'aimantation se réoriente donc suivant l'axe de facile aimantation après chaque impulsion magnétique, après avoir éventuellement changé de sens en fonction du champ appliqué.

Lorsque l'axe de facile aimantation est perpendiculaire, l'application d'une impulsion magnétique longitudinale n'a aucun effet sur l'aimantation rémanente. Le contraste

magnétique mesuré doit donc être nul. Par contre, si l'axe de facile aimantation est planaire, on peut retourner le sens de l'aimantation selon le sens de l'impulsion magnétique longitudinale appliquée.

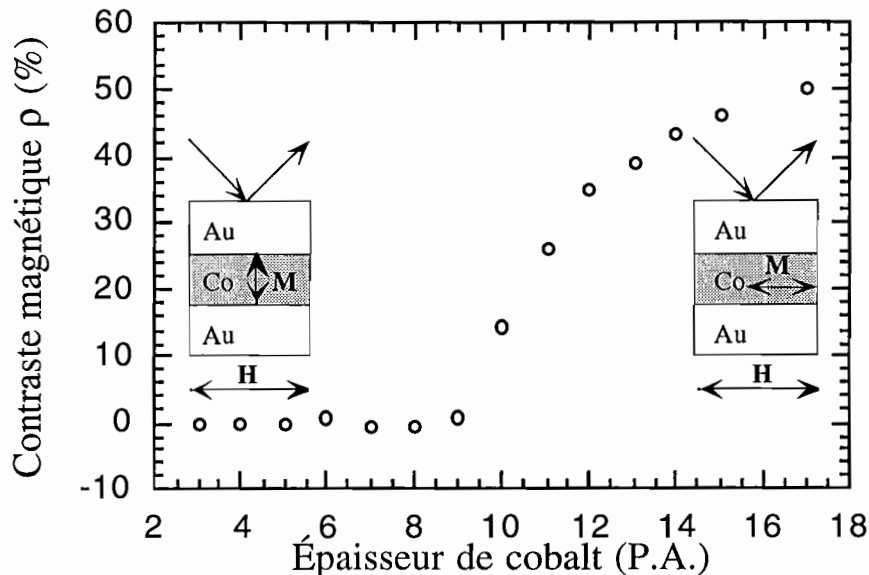


Figure (4.8): Variation du contraste magnétique mesuré en fonction de l'épaisseur de cobalt. (en Plans Atomiques). Le faisceau fondamental est polarisé p. L'analyseur est à 70° de la polarisation p. En insert, deux schémas illustrant la configuration expérimentale et la direction de l'aimantation dans la couche

C'est effectivement ce que l'on peut observer sur la figure (4.8): le contraste est quasiment nul jusqu'à 9 P.A. de cobalt. Il croît ensuite progressivement de 10 à 12 P.A., puis augmente quasiment linéairement au delà de 13 P.A.

Calcul des contributions d'origine non magnétique

Le contraste mesuré ici résulte en fait de la contribution des deux interfaces magnétiques présentes dans le système: Co/Au et Au/Co. De plus, il dépend des variations du signal non magnétique (dénominateur $I(+M)+I(-M)$ du contraste magnétique). Nous allons mesurer le signal total non magnétique engendré par la structure à la fréquence double, et en extraire la contribution due à chacune des interfaces. En utilisant les paramètres obtenus à l'aide de

l'étude polarimétrique qui précède, il est alors possible d'isoler la contribution magnétique issue de l'interface supérieure uniquement.

Comme le montre la table (2.5), l'utilisation d'une orientation p pour l'analyseur permet (en configuration longitudinale, et toujours pour un polariseur p) d'isoler les contributions au doublage de fréquence issues des éléments de tenseur pairs, donc non magnétiques. On peut d'ailleurs vérifier sur la figure (4.7) que le contraste magnétique est alors nul ($\alpha=0^\circ$ ou 180°). Nous avons mesuré le signal total à 2ω dans cette configuration en fonction de l'épaisseur de cobalt. Comme le montre la figure (4.9), on observe alors une décroissance quasiment linéaire de ce signal avec l'épaisseur de cobalt.

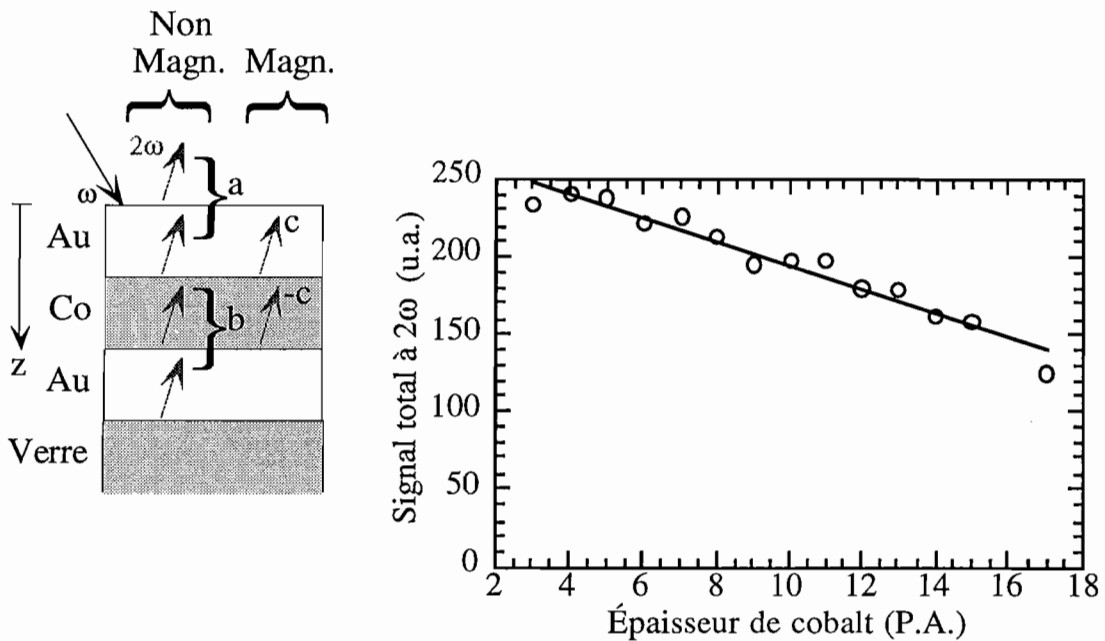


Figure (4.9): Variations du signal total à la fréquence double, l'analyseur et le polariseur étant orientés p , en fonction de l'épaisseur de cobalt. 1 plan atomique de cobalt = $2,03 \text{ \AA}$.

La courbe en trait plein correspond à un ajustement sur les mesures expérimentales (equ. (4.11)). À gauche, un schéma des différentes contributions au signal total, distinguant contributions non magnétiques a et b à gauche, et contributions magnétiques c et $-c$ à droite.

Ce type de comportement s'explique bien si l'on considère ce signal total comme la somme de deux contributions non magnétiques a et b (voir schéma en insert à la figure (4.9)). La contribution a , provenant des interfaces air/Au et Au/Co, ne dépend pas de l'épaisseur de cobalt (si l'on suppose que la qualité de ces interfaces ne varie pas avec celle-ci). Par contre, la contribution b , qui provient des interfaces Co/Au et Au/Verre, varie avec l'épaisseur de

cobalt, puisque la couche de cobalt absorbe le faisceau fondamental et le faisceau doublé en proportion de son épaisseur. C'est donc cette dernière contribution qui est à l'origine de la diminution du signal total doublé visible à la figure (4.9).

À ces deux contributions, on peut associer les champs électriques :

$$E^a(2\omega) = ae^{i\phi}$$

$$\text{et } E^b(2\omega) = be^{2id(k+K)},$$

où ϕ est un terme de phase, d est l'épaisseur de la couche de cobalt, k et K sont les composantes respectives suivant l'axe z des vecteurs d'onde (complexes) des faisceaux fondamental et doublé dans la couche de cobalt. On prendra donc $k = \sqrt{n_{\text{Co}}^2(\omega) - n_{\text{air}}^2(\omega)\sin^2\theta} = \sqrt{n_{\text{Co}}^2(\omega) - 1/2}$ (l'indice de l'air vaut 1; l'angle d'incidence θ vaut 45°) et $K = \sqrt{n_{\text{Co}}^2(2\omega) - 1/2}$.

Les facteurs a et b dépendent donc uniquement des susceptibilités non linéaires des interfaces concernées et des coefficients de Fresnel associés.

On peut arbitrairement choisir $\phi=0$, et écrire l'éclairement à la fréquence double d'origine non magnétique sous la forme:

$$I^{\text{NM}(2\omega)} \propto |E^a(2\omega) + E^b(2\omega)|^2 = a^2 + b^2e^{4d\text{Im}(k+K)} + 2ab\cos(2d\text{Re}(k+K)) \quad (4.11)$$

En prenant pour les indices complexes du cobalt les valeurs $n(\omega)=2,49+i.4,81$ et $n(2\omega)=1,58+i.2,95$ [JOH74], on peut utiliser cette expression pour effectuer un ajustement avec les mesures de la figure (4.9) et obtenir ainsi les valeurs de a et b .

Calcul de la contribution d'origine magnétique issue de l'interface supérieure.

Si l'on revient à présent à la configuration utilisée pour les mesures présentées à la figure (4.8), pour laquelle l'analyseur forme un angle $\alpha=78^\circ$ avec la position p , il existe en plus des contributions a et b deux contributions d'origine magnétique (insert de la figure (4.9)). Si l'on note c la contribution de l'interface Au/Co supérieure, alors la contribution de l'interface opposée Co/Au est $-c$ (on suppose pour cela que les deux interface sont de qualité identique). On peut à présent exprimer le signal total mesuré dans cette configuration:

$$I^{(2\omega)}(\pm M) = I^{\text{NM}(2\omega)} \pm I^{\text{M}(2\omega)}(M)$$

$$\propto \left| \cos\alpha(a + be^{2id(k+K)}) \pm c \sin\alpha(1 - e^{2id(k+K)})e^{i\phi} \right|^2. \quad (4.12)$$

Ici, $\varphi=25^\circ$ est la différence de phase entre les composantes magnétiques et non magnétiques obtenue à l'issue de l'étude polarimétrique précédente. Le paramètre c est donc proportionnel à une susceptibilité non linéaire effective d'origine magnétique χ^M_{effectif} . Tous les autres paramètres de (4.12) étant connus, il est possible de calculer c en fonction du contraste magnétique $\rho = \frac{I(+M) - I(-M)}{I(+M) + I(-M)}$ (4.13) pour chaque épaisseur de cobalt.

La figure (4.10) présente la susceptibilité non linéaire effective (points noirs) calculée à partir des paramètres a , b et φ obtenus précédemment, des expressions (4.12) et (4.13) et du contraste magnétique mesuré (figure(4.8)).

Comparaison avec des mesures MOKE

Pour chacune des épaisseurs de cobalt de l'échantillon, nous avons également effectué des mesures de rotation Kerr, le champ magnétique étant appliqué en configuration longitudinale, exactement dans les mêmes conditions que pour les mesures à la fréquence double. Ces mesures sont également présentées sur la figure (4.10) (carrés blancs).

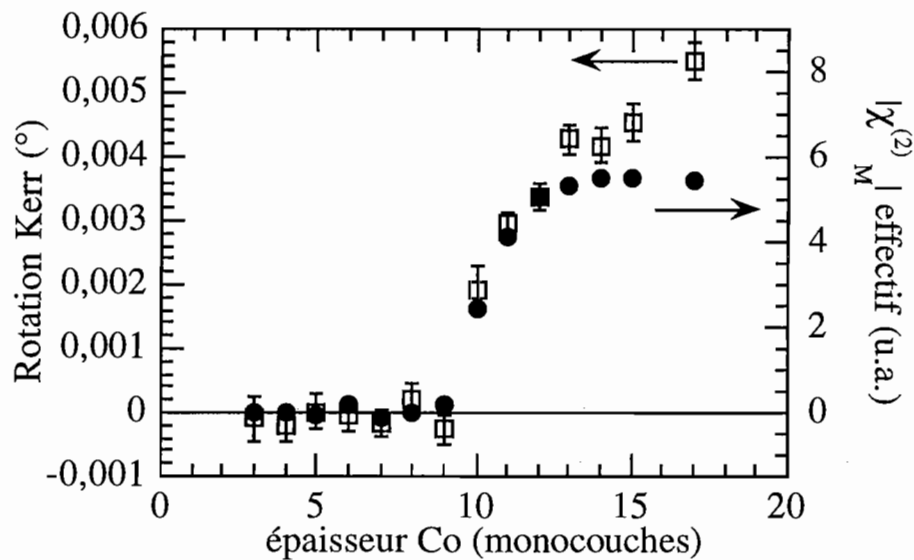


Figure 4.10: Rotation Kerr (carrés blancs) et susceptibilité non linéaire effective d'origine magnétique (points noirs) en fonction de l'épaisseur de cobalt dans une structure Au/Co/Au. Le champ magnétique est appliqué longitudinalement dans les deux cas.

Comme on peut le constater, le comportement des signaux mesurés par MOKE et à la fréquence double est très similaire pour de faibles épaisseurs de cobalt. Les arguments exposés plus haut expliquent que, le champ magnétique étant appliqué parallèlement au plan des couches, les deux techniques ne détectent aucun signal lorsque l'aimantation est perpendiculaire. Le basculement de l'axe de facile aimantation est ensuite détecté par les deux méthodes entre 9 et 12 plans atomiques de cobalt.

Pour des épaisseurs de cobalt supérieures à 12 plans atomiques, le comportement des signaux mesurés diffère, mettant en évidence certaines caractéristiques intrinsèques aux deux méthodes. En effet, le signal MOKE augmente alors de façon quasi linéaire. Ceci s'explique aisément par le fait que le volume de cobalt sondé (c.à.d. la longueur d'interaction avec le faisceau) croît linéairement avec l'épaisseur de la couche. L'aimantation reste constante et alignée parallèlement au plan, donc le signal augmente linéairement avec l'épaisseur. Le MOKE est bien une technique sensible à l'aimantation *en volume*.

À l'opposé, la susceptibilité effective de l'interface supérieure reste constante entre 13 et 17 P.A. de cobalt. En effet, une fois le basculement de l'aimantation effectué, l'aimantation à l'interface reste constante. Quelle que soit l'épaisseur de cobalt, la contribution au doublage de fréquence issue de cette interface reste donc constante.

On a donc ici une indication forte de la sensibilité sélective du doublage de fréquence à l'aimantation aux interfaces.

3.1.4 Retournement de l'axe de facile aimantation mesuré en configuration polaire

Le phénomène que nous venons de mettre en évidence en configuration longitudinale peut évidemment être caractérisé de la même manière en configuration polaire, c'est à dire lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement aux couches. On peut alors s'attendre à obtenir des mesures «symétriques» des précédentes. Pour de faibles épaisseurs, l'aimantation est perpendiculaire, et on doit à présent détecter un contraste magnétique lorsque le champ est appliqué perpendiculairement aux couches. Ce signal doit chuter à partir de 9 P.A. et disparaître rapidement à plus fortes épaisseurs de cobalt, lorsque l'aimantation devient planaire.

Expérimentalement, cette mesure est rendue délicate par le très faible contraste magnétique en configuration polaire (moins de 5% en général, au lieu de 50 % environ en configuration longitudinale). En particulier, il faut alors s'assurer que les contributions longitudinales ne changent pas de sens, sans quoi elles risquent d'introduire un fort contraste magnétique parasite.

Nous avons réalisé cette étude sur une structure Au (15 plans atomiques) / Co (2 à 9 P.A.) / Au (280 Å) / verre. Ses caractéristiques sont donc strictement identiques à celles de la structure précédente, mais l'on dispose à présent de variations plus douces de l'épaisseur de cobalt dans la gamme des faibles épaisseurs (13 épaisseurs différentes entre 2 et 9 P.A.). On peut s'attendre, d'après l'étude précédente, à ce qu'à la plupart de ces épaisseurs l'aimantation soit planaire. Le champ coercitif est alors beaucoup plus important que lorsque l'aimantation est planaire (de l'ordre de 1000 Oe). L'un des objectifs des mesures effectuées sur de très faibles épaisseurs de cobalt est de pouvoir observer l'établissement d'une interface.

Pour une épaisseur de cobalt de 6 P.A., nous avons mesuré le contraste magnétique en fonction de l'angle de l'analyseur. Comme on peut le constater sur la figure (4.11), le contraste magnétique obtenu en configuration polaire est près de 10 fois plus faible qu'en configuration longitudinale. Le bruit de ces mesures est donc assez important.

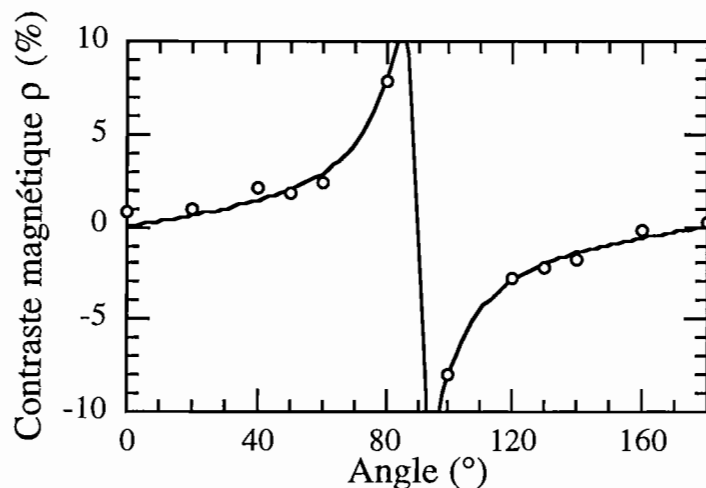


Figure 4.11: Contraste mesuré en configuration polaire (cercles) en fonction de l'angle de l'analyseur par rapport à la position p . Le polariseur est orienté p . La courbe en traits pleins correspond à un ajustement obtenu à l'aide de l'équation (2.18) pour les paramètres $\phi_k=0,08\pm 0,02$ et $\varphi=84^\circ\pm 2^\circ$.

Comme on peut le vérifier dans la table (2.5), les éléments de tenseur qui interviennent ici sont différents de ceux qui sont présents en configuration longitudinale. Cependant, les polarisations des faisceaux engendrés à la fréquence double sont les mêmes (p pour le non magnétique et s pour le magnétique), et on peut donc à nouveau utiliser l'expression (2.18) pour effectuer un ajustement sur le contraste magnétique. Les paramètres obtenus sont

$\phi_k=0,08\pm0,02$ et $\varphi=84^\circ\pm2^\circ$ (noter la forte incertitude sur ϕ_k due à l'important bruit de mesure dans cette configuration).

Le contraste magnétique mesuré en configuration polaire est présenté à la figure (4.12). On observe à nouveau le début du basculement de l'aimantation dans le plan des couches à partir de 8 à 9 plans atomiques de cobalt, se traduisant par une diminution du contraste magnétique polaire.

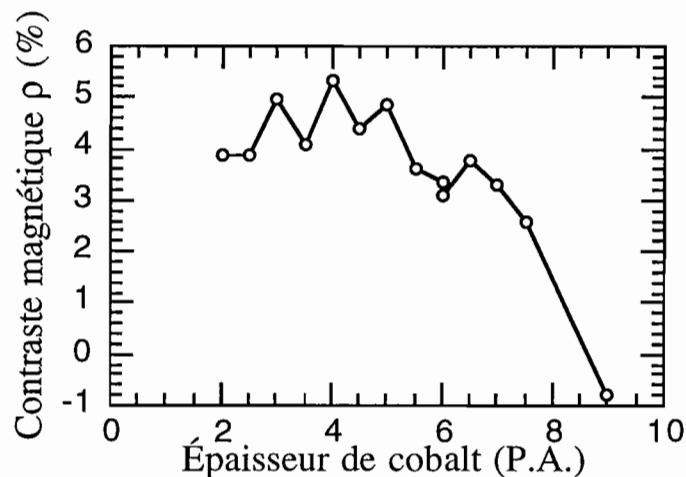


Figure 4.12: *Contraste magnétique mesuré en configuration polaire en fonction de l'épaisseur de cobalt. Le faisceau fondamental est polarisé p. L'analyseur forme un angle de 60° avec la polarisation p.*

L'intérêt de cette expérience est d'obtenir des informations sur l'extension de l'interface et sur l'installation du ferromagnétisme dans des couches de très faibles épaisseurs. L'interprétation en est cependant délicate. Dès 2 P.A. de cobalt, un signal magnétique est observé par doublage de fréquence, ce qui semble indiquer que ces deux plans atomiques suffisent à constituer deux interfaces. En fait, la couche de cobalt ne devient continue qu'à partir de 1,5 P.A. de cobalt [MAR93]. Il est donc probable que, pour de très faibles épaisseurs de cobalt (2-3 P.A.), la rugosité contribue à augmenter le signal à 2ω , sans pour autant que des interfaces nettes soient installées. Il est donc délicat d'en déduire une information sur l'extension de l'interface.

Par contre, ceci n'a cependant que peu d'influence sur le signal magnétique présenté ici. Nos mesures indiquent donc une installation précoce du ferromagnétisme dans ce système, qui devra être confirmé par des mesures complémentaires.

Pour des épaisseurs plus importantes de cobalt, on observe un contraste magnétique constant, en accord avec les mesures de [BEA94] qui indiquent un rapport M_r / M_s (aimantation à la rémanence / aimantation à saturation) constant jusqu'à 9 P.A..

3.1.5 Cycles d'hystérésis

Configuration polaire

Si l'on choisit une épaisseur de cobalt donnée, il est possible, en faisant varier le champ magnétique appliqué à la structure, de mesurer des cycles d'hystérésis. Ainsi, il est possible, en mesurant la rotation MOKE en configuration polaire, d'illustrer expérimentalement les schémas théoriques présentés sur la figure (4.2).

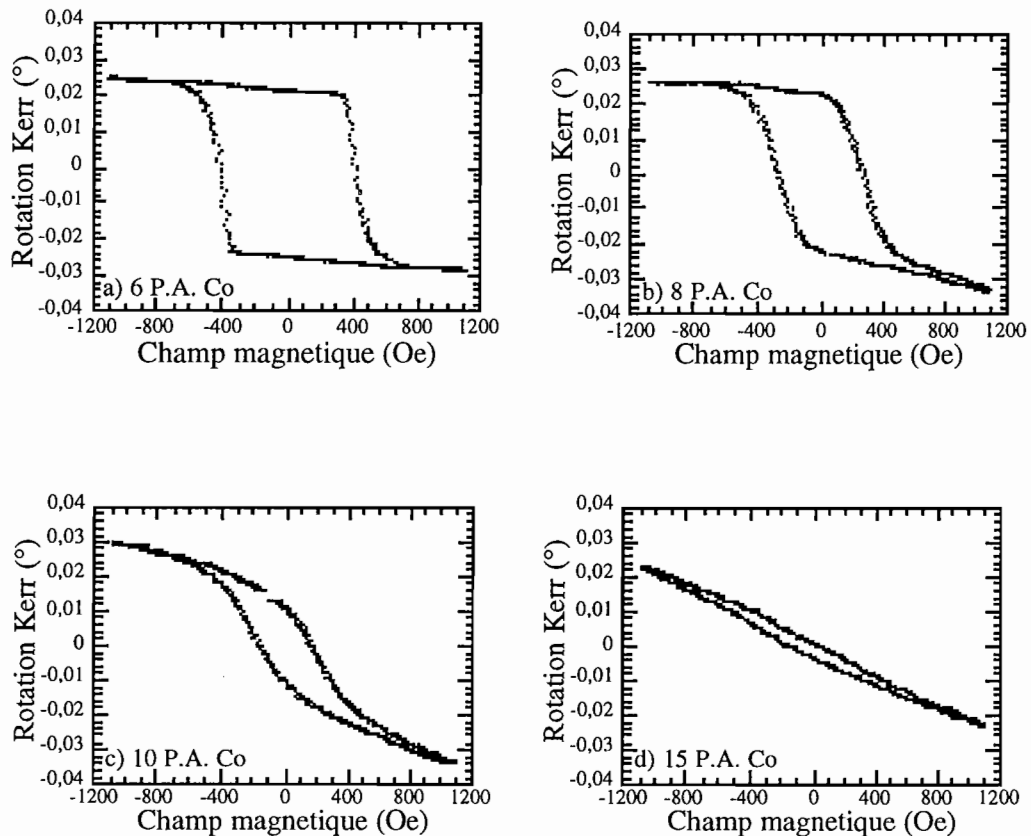


Figure 4.13: Cycles d'hystérésis mesurés en MOKE, en configuration polaire (champ appliqué perpendiculairement au plan des couches), pour 4 épaisseurs différentes de la couche de cobalt.

En accord avec la discussion §1.2.2, le cycle mesuré en MOKE polaire est très carré pour de faibles épaisseurs de cobalt (a), lorsque l'aimantation est rigoureusement perpendiculaire au plan des couches. Ce cycle s'arrondit et le champ coercitif diminue lorsque l'épaisseur augmente, c'est à dire lorsque l'aimantation bascule de perpendiculaire à parallèle au plan des couches (b et c). Ce phénomène coïncide avec le basculement observé entre 8 et 13 plans de cobalt par doublage de fréquence et MOKE (figure (4.10)). Enfin, pour de plus fortes épaisseurs (d), lorsque l'aimantation est dans le plan du film, sa variation est quasi linéaire avec H et l'hystérésis mesuré est faible. Notons que la pente observée sur ces cycles est due à la rotation induite par le champ dans le verre ou la couche d'or

La mesure de cycles d'hystérésis en configuration polaire en doublage de fréquence est théoriquement possible, mais délicate en pratique en raison du faible contraste magnétique associé à cette configuration. En revanche, il est possible de mesurer des cycles en configuration longitudinale.

Configuration longitudinale

Pour une épaisseur de cobalt de 17 P.A., l'axe de facile aimantation est, d'après les études qui précèdent, entièrement dans le plan de l'échantillon. Les mesures présentées à la figure (4.14) ont été réalisées en configuration longitudinale. Les mesures MOKE ont été effectuées en faisant varier continûment le champ magnétique appliqué, en dents de scie.

Pour les mesures à la fréquence double, le temps d'intégration nécessaire à l'acquisition de chaque mesure est de 2 min. Il est donc impossible de faire varier continûment le champ magnétique. Celui ci a donc été appliqué par paliers successifs. L'analyseur est orienté à 82° de la polarisation p, d'où un contraste magnétique de 70 % environ (voir figure (4.6)).

En raison des différences entre les procédures d'application du champ utilisées dans ces deux cas, nous avons également mesuré l'évolution du signal MOKE et du signal doublé en fréquence en fonction du temps. Aucune variation n'ayant été constatée sur une durée d'une heure, il est possible de comparer les deux mesures.

Une précaution s'impose cependant auparavant afin de s'assurer que ces cycles sont réellement comparables entre eux. La rotation Kerr est comme nous l'avons vu proportionnelle à l'aimantation. De même, toutes les études théoriques évoquées au chapitre II concluent à un tenseur $\chi(2)$ linéaire en aimantation (même si ceci n'a pas encore été clairement démontré expérimentalement). Le signal que nous mesurons à la fréquence double est donc quadratique en aimantation, puisque l'éclairement vérifie: $I \propto |\chi_{NM} \pm \chi_M|^2$. Il est donc nécessaire de corriger nos mesures à la fréquence double en conséquence, en en extrayant la racine carrée afin d'obtenir un signal qui soit, lui aussi, proportionnel à l'aimantation. C'est ce que nous avons fait pour les résultats présentés à la figure (4.14), et plus généralement à chaque fois qu'une comparaison est nécessaire entre des hystérésis mesurés en MOKE et par doublage de fréquence. Le résultat de cette opération, assimilable à

la norme d'une susceptibilité non linéaire du deuxième ordre effective sera noté dans ce qui suit $|\chi^{(2)}_{\text{Meff}}|$.

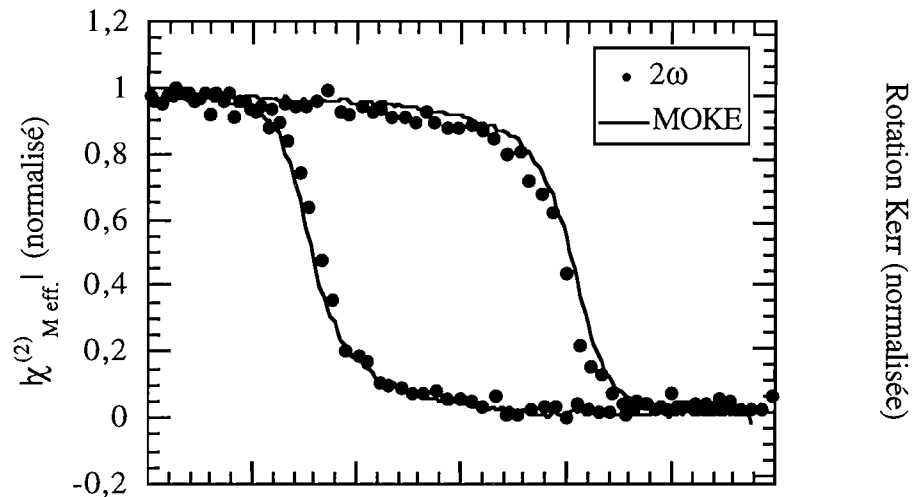


Figure 4.14: Cycles d'hystérésis mesurés par doublage de fréquence et en MOKE en configuration longitudinale pour une épaisseur de cobalt de 17 P.A. (les valeurs sont normalisées). Le cycle MOKE résulte de la moyenne de 600 cycles effectués avec une période de balayage du champ magnétique de 10 s. Le cycle à 2ω résulte de la moyenne de 13 cycles réalisés avec un temps d'intégration de 2 min par point, et dont on a extrait la racine carrée. Le faisceau fondamental est polarisé p. Pour les mesures à 2ω , l'analyseur est orienté à 82° de la polarisation p. La rotation Kerr totale (de la saturation haute à la saturation basse) est de $0,0051^\circ \pm 5.10^{-5}$. Le contraste magnétique est de $53\% \pm 0,5\%$.

Afin de pouvoir être comparées les mesures ont été normalisées. Comme on peut le vérifier sur la figure (4.14), il n'y a qu'une très faible différence entre les deux cycles d'hystérésis (écart de 6% entre les champs coercitifs mesurés). Cette faible différence est probablement due à l'effet d'interférence entre les contributions issues des domaines évoqué précédemment (§1.4).

Le comportement observé est tout à fait conforme avec les prédictions théoriques qu'il est possible de faire sur des systèmes Au/Co/Au. En effet, les interfaces de ce système sont, comme nous l'avons dit au paragraphe 3.1.1, assez abruptes et exemptes d'alliages. De plus, le couplage d'échange est fort dans ces couches: l'aimantation dans la totalité de la couche de cobalt doit basculer de manière cohérente, au moins sur la longueur dite longueur d'échange ($l_{\text{ex}} = 3$ nm pour le cobalt). On peut effectivement s'attendre à ce que les caractéristiques physiques et le comportement du cobalt situé dans le volume de la couche soient les mêmes

que ceux du cobalt situé aux interfaces. Les mesures effectuées à l'interface (par doublage de fréquence) et dans le volume (par MOKE) sont donc très similaires.

Pour étayer ces observations, il peut être intéressant d'effectuer simultanément l'imagerie de domaines par les deux méthodes. Malgré plusieurs tentatives, nous n'avons cependant pas pu obtenir d'images de domaines aux interfaces sur des structures Au/Co/Au. Il semble en effet que les domaines, en aimantation planaire, soient ici de trop petite taille pour pouvoir être observés avec la résolution dont nous disposons.

L'étude que nous venons de mener a permis une observation détaillée du basculement de l'axe de facile aimantation en fonction de l'épaisseur de cobalt. Les différences constatées entre les mesures par doublage de fréquence et par MOKE permettent de conclure à la sensibilité sélective du doublage de fréquence à l'aimantation d'interface, tandis que le MOKE est sensible à l'aimantation dans tout le volume de la couche magnétique. Conformément aux prédictions théoriques, aucune différence n'a été observée entre les cycles d'hystérésis mesurés en configuration planaire à l'aide des deux techniques.

3.2 Le système Co/Pt

3.2.1 Introduction

Les multicouches Co/Pt possèdent des qualités qui en font d'excellents supports potentiels pour l'enregistrement magnéto-optique à haute densité, en tant qu'alternative aux supports actuels à base de terres rares (TbFeCo) [CAR91, HAT97]. Tout d'abord, ils donnent lieu à d'importants effets magnéto-optiques dans le visible, et particulièrement dans le bleu [WEL93]. Ils possèdent de plus, en couches ultraminces, une forte anisotropie perpendiculaire. L'utilisation d'un empilement alterné de ces deux matériaux permet alors d'obtenir des effets magnéto-optiques suffisants tout en conservant cette anisotropie perpendiculaire. Enfin, ils possèdent une excellente résistance à la corrosion [WEL93] et semblent se prêter particulièrement bien à la réalisation de supports d'enregistrement à faible coût.

La réalisation efficace de supports de bonne qualité et les problèmes de croissance associés ont fait l'objet de nombreuses études [HAT93, HON90]. La compréhension des mécanismes fondamentaux qui régissent le comportement de ces systèmes est cependant complexe.

En effet, le cobalt et le platine sont des éléments miscibles en toutes proportions, capables de former des composés définis (Co_3Pt , CoPt ou CoPt_3) possédant des structures cristallines et électroniques particulières [MAR96]. Il se forme donc aux interfaces des alliages entre les deux métaux, dont l'existence est particulièrement favorisée par la rugosité interfaciale ou des

recuits à des températures supérieures à 300°C. De plus, le platine acquiert au contact du métal ferromagnétique une polarisation (magnétique) qui lui permet de contribuer notablement aux effets magnéto-optiques et à l'anisotropie perpendiculaire.

Ces deux phénomènes contribuent à une certaine complexité des effets se produisant aux interfaces du système Co/Pt. Les études fondamentales portant sur les plus simple de ces systèmes, les tricouches Pt/Co/Pt, sont cependant assez rares. Les travaux effectués par C.Train et al. [TRA98], utilisant des études magnéto-optiques spectroscopiques, sont d'un grand intérêt. Ainsi, pour une structure Pt (15 P.A.)/Co(9 P.A.)/Pt(40 Å)/Al₂O₃ déposée à 100 °C, ces travaux concluent à la présence d'une couche de platine polarisée d'une épaisseur effective de 1 P.A. et d'une couche d'alliage d'une épaisseur effective de 0,5 P.A..

À nouveau, le doublage de fréquence doit permettre d'apporter des informations capitales pour la compréhension des effets ayant lieu aux interfaces Co/Pt. Aucune investigation de ces structures à l'aide des phénomènes magnéto-optiques non linéaires n'existe, à notre connaissance, à ce jour. Cependant, des travaux ont récemment été conduits sur des systèmes proches (Co,Ni)/Pt [KIR98, RAS99]. À travers ces travaux, comme à la lumière des résultats que nous allons présenter, il semble que la technique de doublage de fréquence n'ait pas toute la maturité nécessaire pour apporter une réponse définitive à un problème aussi complexe que celui de ce type d'interfaces. Il est cependant d'ores et déjà possible d'apporter des éléments intéressants, et il est clair que le potentiel de la technique est énorme. De tels systèmes fournissent quoi qu'il en soit un objet d'études très intéressant pour nous, puisqu'il est possible d'y mettre en évidence des différences de comportement notables entre les interfaces et le volume des échantillons, qui vont nous permettre de préciser l'intérêt et les spécificités de notre technique.

3.2.2 Conditions d'élaboration des échantillons

Une description détaillée de la procédure de dépôt, dont nous donnons ici un bref résumé, est présentée dans [TRA98].

Les échantillons que nous avons étudiés ont été réalisés par évaporation sur des substrats monocristallins d'alumine (Al₂O₃) de structure hexagonale, orientés (0001). Ce type de substrat permet de faire croître les couches métalliques de manière épitaxiale. Les échantillons ainsi obtenus sont de bonne qualité cristalline et ne présentent pas de désorientations de cristallites. Le substrat est reconstruit chimiquement à l'aide d'une solution de NH₄OH et H₂O₂, puis chauffé à 650° pendant 20 min, ce qui permet d'obtenir une surface de bonne qualité [TRA98] et exempte de contaminants.

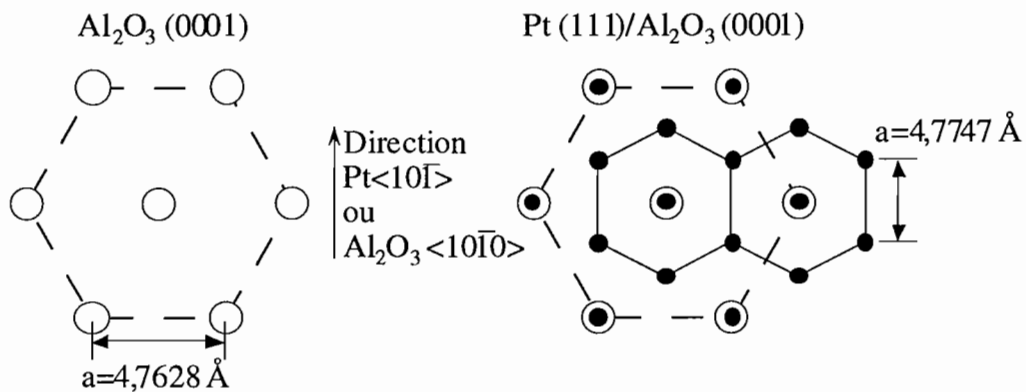


Figure (4.15): Relation d'épitaxie entre le saphir (0001) et le platine (111). Le désaccord de paramètres de maille dans le plan est de 0,9 %.

La couche tampon de platine est déposée à 600°C à raison de 4 P.A./min. La relation d'épitaxie entre les deux matériaux est donnée par la figure (4.15). Contrairement au cas de l'or, il n'y a pas d'effet surfactant pour le platine, et la rugosité croît généralement avec l'épaisseur déposée. Une couche tampon d'épaisseur 40 Å, qui permet de bonnes propriétés magnétiques tout en conservant une rugosité très faible, a été utilisée systématiquement.

Dans la plupart des cas, la couche de cobalt a ensuite été déposée à une température de 100°C (sauf mention contraire (§ 3.2.6), c'est le cas de tous les échantillons étudiés ici). Un échantillon réalisé avec une température de dépôt de 400°C a également été étudié afin de mettre en évidence l'influence des alliages sur les propriétés des interfaces. Comme pour les structures étudiées précédemment, l'utilisation d'un cache mobile permet la réalisation de structures comportant différentes épaisseurs.

Enfin, une couche de platine de 15 P.A. est déposée sur la structure afin de protéger l'ensemble de l'oxydation.

3.2.3 Retournement de l'axe de facile aimantation mesuré en configuration longitudinale

Le premier échantillon que nous avons étudié était une structure Pt (15 P.A.) / Co (3 à 15 P.A.) / Pt (40 Å) / Al₂O₃ (0001). Onze épaisseurs de cobalt variant entre 3 et 15 P.A. nous ont permis d'étudier, à nouveau, le basculement de l'axe de facile aimantation. Le champ magnétique de ±800 Oe environ permettant la saturation magnétique est appliqué dans le plan des couches pendant 3 s, puis coupé. La mesure est alors effectuée à la rémanence, puis le champ est appliqué, de la même manière, dans l'autre sens.

Les mesures MOKE présentées à la figure (4.16) résultent de la moyenne de quatre séries de mesures. Les mesures à la fréquence double sont une moyenne de quatre mesures effectuées avec un temps d'intégration de 20 min par point. Pour ces mesures, le polariseur est orienté p et l'analyseur est orienté à 78° de cette position.

On reconnaît le même type de comportement que celui observé dans le cas d'une structure Au/Co/Au (voir figure (4.8)): aucun contraste longitudinal n'est mesuré, et la rotation Kerr est très faible lorsque l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan des couches.

Les deux techniques permettent ensuite de mesurer un signal à partir de 10 P.A. de cobalt environ, dès que l'axe de facile aimantation commence à basculer dans le plan des couches.

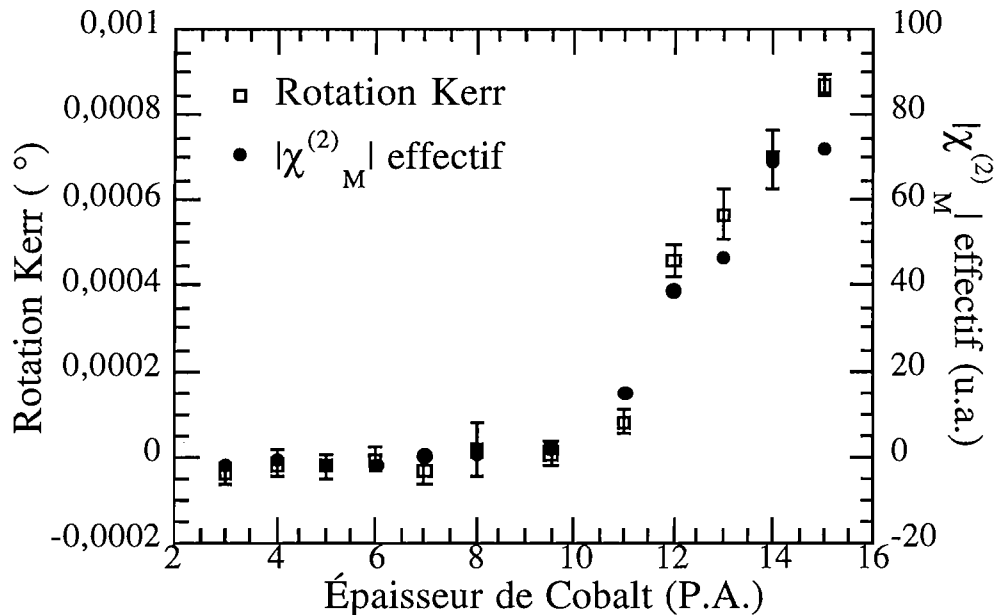


Figure (4.16) : Rotation Kerr (carrés blancs) et susceptibilité non linéaire effective d'origine magnétique (points noirs; voir texte) en fonction de l'épaisseur de cobalt dans une structure Pt/Co/Pt. Le champ magnétique est appliqué longitudinalement dans les deux cas. Le faisceau fondamental est polarisé p . Pour les mesures à 2ω , l'analyseur est orienté à 78° de la polarisation p .

Les mesures présentées ici ont subi la même correction que celle décrite au paragraphe 3.1.3. Cette correction est effectuée en calculant la contribution magnétique issue de l'interface Co/Pt supérieure à partir de la mesure du contraste en fonction de l'angle de l'analyseur, puis du signal total en fonction de l'épaisseur en configuration p-p. Notons cependant que ce calcul ne conduit pas à une forte modification par rapport aux résultats bruts.

Le basculement de l'axe de facile aimantation se produit ici entre 11 et 14 P.A. de cobalt. À 14 P.A., l'axe de facile aimantation est presque entièrement dans le plan. On peut voir sur la figure (4.16) que le contraste magnétique semble saturer à 15 P.A. de cobalt. Ce dernier point est en fait le seul pour lequel la modification apportée par le calcul du $|\chi^{(2)}_M|$ effectif est notable, et il est donc délicat ici d'en déduire la sensibilité aux interfaces, comme nous l'avons fait précédemment (§3.1.3)

Ces résultats sont en accord avec [TRA98], qui donne une épaisseur de basculement de 13 P.A. pour une telle structure déposée à 100 °C.

3.2.4 Hystérésis en configuration longitudinale pour 14 P.A. de cobalt

Pour une épaisseur de cobalt de 14 P.A., l'axe de facile aimantation est presque entièrement dans le plan des couches, mais forme encore un angle non nul avec ce plan. Nous avons fait varier le champ appliqué à cette structure en configuration longitudinale, afin de mesurer des cycles d'hystérésis pour cette épaisseur de cobalt.

Modalités des mesures

À nouveau, des temps d'intégration différents ont été utilisés pour les deux techniques. Le signal total à la fréquence double est en effet plus faible que celui obtenu sur Au/Co/Au de près d'un ordre de grandeur. Pour les mesures à 2ω , le temps de pose est de 25 min par point. Il n'est pas envisageable d'utiliser des temps aussi longs pour les mesures MOKE (les dérives deviendraient alors trop gênantes). Ces mesures ont donc à nouveau été effectuées en faisant varier le champ de manière continue, avec une période de 50 s. Afin de limiter d'éventuels problèmes de dérives temporelles lentes à 2ω , la procédure d'application du champ a été modifiée. Un champ donné est appliqué pendant toute la durée de la mesure, puis, celle-ci achevée, on applique un champ saturant ($\pm V_{\text{sat}}$) pendant 2s, puis un champ nul (à la rémanence de l'aimant près). On passe alors à la mesure suivante, pour un champ légèrement supérieur (ou inférieur, suivant le cas), et la procédure reprend.

De cette manière, on réinitialise en quelque sorte l'état magnétique de l'échantillon entre deux mesures à la fréquence double. Dans le cas où des modifications de l'aimantation se produiraient au cours du temps, leur action serait ainsi limitée à la durée d'une mesure à la fréquence double, soit 25 min.

Des mesures en MOKE effectuées avec des périodes de balayage plus importantes, allant jusqu'à 6 min (limite imposée par le montage), ne nous ont pas permis de détecter la moindre variation de l'hystérésis mesuré. Ainsi, et moyennant ces précautions, il semble raisonnable d'exclure l'éventualité d'une dérive temporelle influant sur nos mesures.

Les mesures ont été effectuées à l'aide d'un faisceau incident polarisé p et, dans le cas des mesures à la fréquence double, avec un analyseur formant un angle de 78° avec cette polarisation.

Le cycle MOKE présenté ici résulte de la moyenne de 290 cycles effectués avec une période de balayage du champ magnétique de 50 s. Le cycle à 2ω résulte de la moyenne de 8 cycles réalisés avec un temps d'intégration de 25 min par point. À nouveau, on a extrait la racine carrée de ce signal pour effectuer la comparaison entre les deux cycles.

Comparaison des résultats donnés par les deux méthodes

Les mesures obtenues sont présentées sur la figure (4.17). Comme on peut le voir, la différence entre les cycles obtenus est notable (contrairement au cas de Au/Co/Au). En particulier, les champs coercitifs mesurés sont de $176 \text{ Oe} \pm 10 \text{ Oe}$ pour les mesures à 2ω , et $237 \text{ Oe} \pm 1 \text{ Oe}$ pour les mesures par MOKE, soit une différence relative de 30%.

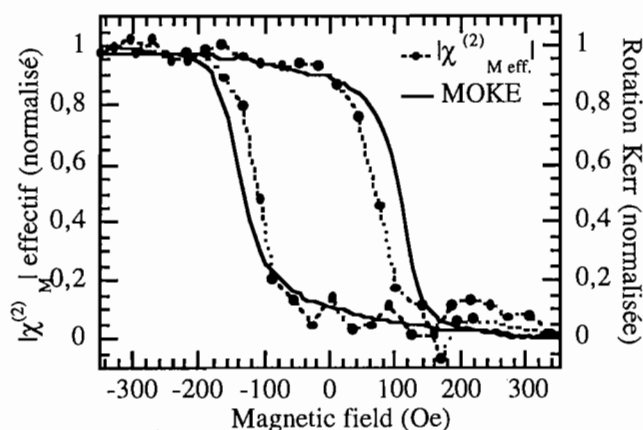


Figure (4.17) : Cycles d'hystérésis mesurés par doublage de fréquence et en MOKE en configuration longitudinale pour une épaisseur de cobalt de 14 P.A. (les valeurs sont normalisées). Les conditions de mesure sont décrites dans le texte. Le faisceau fondamental est polarisé p . Pour les mesures à 2ω , l'analyseur est orienté à 82° de la polarisation p . La rotation Kerr totale (de la saturation basse à la saturation haute) est de $0,00342^\circ \pm 5 \cdot 10^{-5}^\circ$. Le contraste magnétique est de $42\% \pm 5\%$.

Nous avons donc mesuré sans ambiguïté des propriétés différentes à l'interface et dans le volume de l'échantillon. Dans le cas présent d'une couche plus hétérogène que Au/Co, surtout aux interfaces, la surface semble se retourner avant le volume de l'échantillon, ce qui indique que le retournement est initié à l'interface, puis se propage dans le volume de la couche, et ceci malgré la longueur d'échange $l_{ex}=3$ nm dans le cobalt.

Les raisons d'un tel comportement ne sont pas évidentes a priori à partir de ces seuls cycles. Les propriétés différentes de celles du cobalt massif de l'alliage situé aux interfaces et/ou la présence de platine polarisé aux interfaces en sont probablement à la source. Une meilleure caractérisation cristallographique et morphologique de l'interface permettrait sans doute d'affiner cette analyse.

La présence à l'interface d'alliages favorisant l'augmentation de l'anisotropie perpendiculaire [TRA98] peuvent contribuer à rapprocher l'axe de facile aimantation de la normale aux couches dans la zone située autour de l'interface. Le cycle d'hystérésis mesuré à l'interface serait alors légèrement plus étroit que le cycle mesuré dans le volume de l'échantillon, où l'orientation de l'aimantation est plus proche du plan des couches.

3.2.5 Études en configuration longitudinale pour 20 P.A. de cobalt

Géométrie de l'échantillon

Comme nous venons de le voir, l'axe de facile aimantation n'est pas parfaitement planaire pour une épaisseur de 14 P.A.. Afin de pouvoir étudier un système plus simple et parfaitement planaire, nous avons examiné un échantillon comportant 20 P.A. de cobalt dans une structure identique à la précédente: Pt (15 P.A.) / Co (0, 15 et 20 P.A.) / Pt (40 Å) / Al₂O₃ (0001). La figure (4.18) présente une image obtenue par balayage sur cet échantillon. On reconnaît, en noir, la zone comportant 20 P.A. de cobalt, correspondant au plus fort signal à la fréquence double. En effet, comme nous l'avons mentionné précédemment, il ne se produit aucun effet de lissage par déposition de cobalt sur le platine. La rugosité de la zone correspondant à la plus forte épaisseur est donc légèrement supérieure, d'où un plus fort signal doublé.

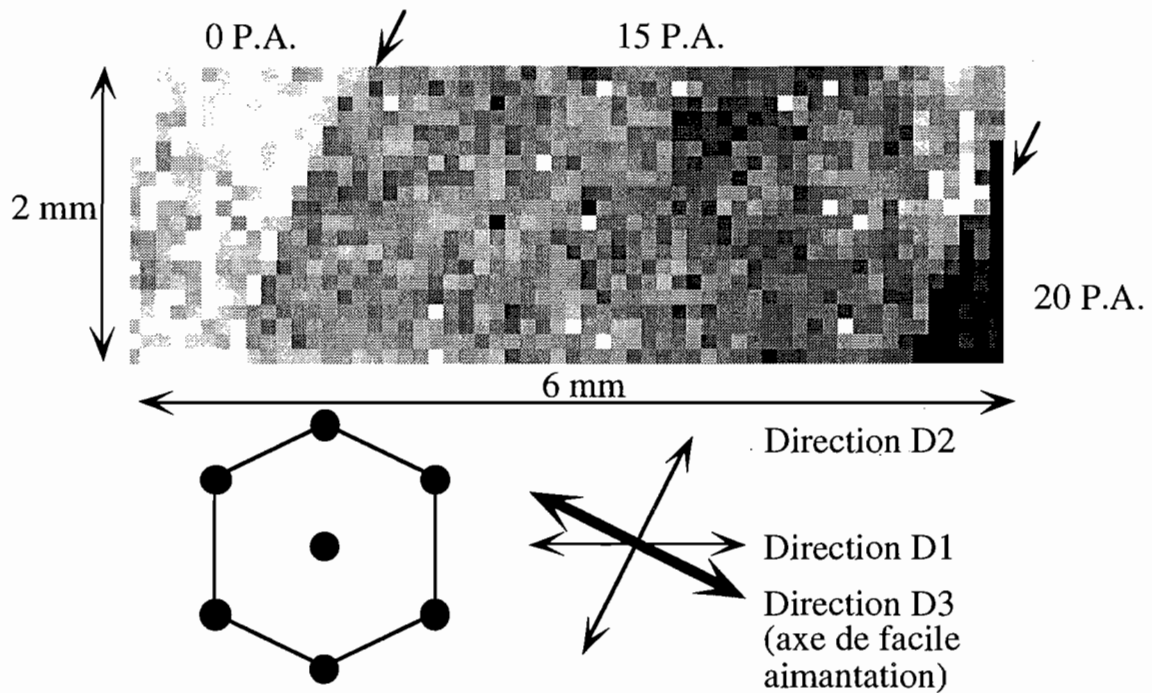


Figure (4.18): En haut: image obtenue à 2ω par balayage de pas $100 \mu\text{m}$. Temps d'acquisition: 6 s par point. Polariseur p - analyseur p (aucune composante magnétique). Le blanc code un signal à 2ω faible, le noir un signal plus fort. Les flèches indiquent la démarcation visible entre les différentes zones de l'échantillon, comportant 0, 15 et 20 P.A. de cobalt. En bas: représentation de la maille du platine (et du cobalt), suivant la même orientation. À droite, définition des directions d'étude D1, D2 et D3 (dans le plan de l'échantillon). La direction D3, en gras, correspond à l'axe de facile aimantation dans cet échantillon.

Anisotropie magnétique dans le plan

L'une des principales difficultés rencontrées dans l'étude de cet échantillon résulte de la présence d'une anisotropie planaire.

Celle-ci peut être mise en évidence en effectuant une mesure du contraste à la rémanence en fonction de l'angle de l'analyseur par rapport à la position p . Comme le montre la discussion du § 3.1.2, le contraste obtenu à la figure (4.19), qui est une fonction ni paire ni impaire de l'angle de l'analyseur, est caractéristique de la présence d'une anisotropie planaire.

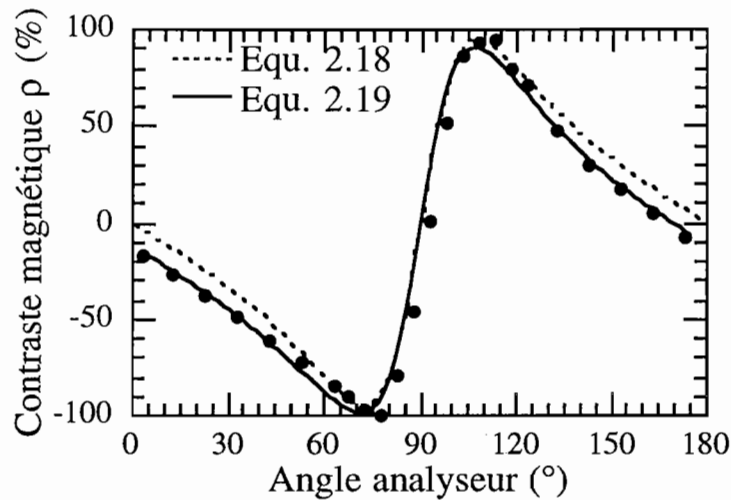


Figure (4.19) : Contraste magnétique mesuré à la rémanence, pour un champ initialement appliqué suivant la direction $D1$. Les pointillés correspondent à un ajustement effectué à l'aide de la fonction (paire) donnée par l'équation (2.18), la courbe en traits pleins à un ajustement effectué à l'aide de la fonction (ni paire ni impaire) donnée par l'équation (2.19). Cette dernière permet un meilleur accord avec l'expérience. Polarisation du faisceau fondamental: p .

L'aimantation a en effet tendance à s'orienter, au repos, suivant une direction $D3$ de facile aimantation indiquée en trait gras sur le schéma. Cette direction, qui a été déterminée par des mesures vectorielles de MOKE (J.Ferré), par imagerie Kerr magnéto-optique (L.Belliard) et par doublage de fréquence en effectuant une rotation de l'échantillon, correspond à l'un des axes cristallins du cobalt (axes déterminés par V.Mathet et P.Beauvillain). Nous n'avons pas encore pu déterminer la raison exacte pour laquelle cette direction est privilégiée par rapport aux deux autres directions qui lui sont théoriquement équivalentes selon la symétrie d'ordre 6 du cobalt ou du platine. Une légère anisotropie de croissance, ou une faible contrainte interne suffisent probablement à dicter ce choix.

En conséquence, nous avons effectué trois études suivant des axes distincts afin de caractériser au mieux cet échantillon. Toutes ces études ont été effectuées en configuration longitudinale, c'est à dire en appliquant le champ magnétique dans le plan des couches, et dans le plan d'incidence. L'échantillon a donc été tourné (en restant dans le même plan), afin d'aligner la direction D_i avec le plan d'incidence (voir schéma (4.20)).

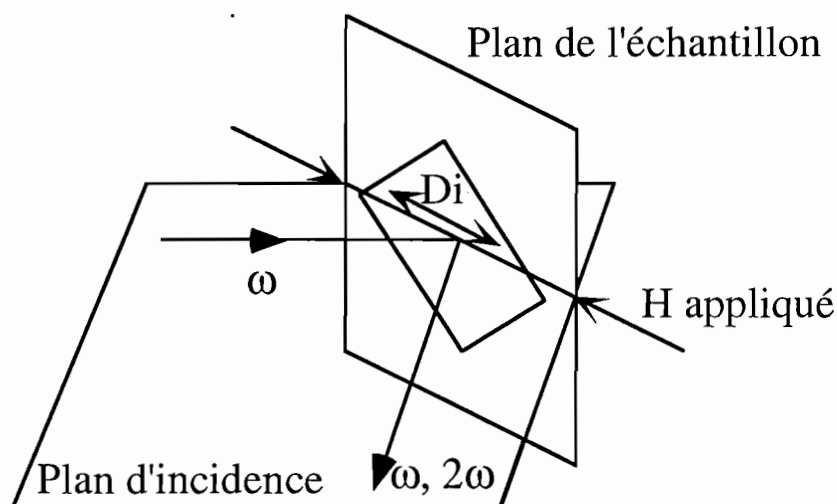


Figure (4.20): Schéma de la configuration expérimentale. Le champ magnétique H est appliqué en configuration longitudinale. L'une des directions D_i ($i=1, 2, 3$) définies sur la figure (4.18) est alignée avec ce champ.

La première série de mesures a été effectuée en appliquant le champ H suivant la direction D_1 , à 30° environ de la direction de facile aimantation.

La deuxième a été effectuée en appliquant le champ suivant D_2 , c'est à dire perpendiculairement à l'axe de facile aimantation.

La troisième série de mesures a été effectuée en appliquant le champ suivant D_3 , c'est à dire suivant l'axe de facile aimantation.

Mesures suivant l'axe D_1

L'optimisation du montage nous a ici permis de réduire le temps de mesure à 2ω à 5 s par point. Il est ainsi possible d'effectuer les mesures MOKE et à 2ω exactement dans les mêmes conditions, notamment en ce qui concerne l'application du champ magnétique et les temps d'intégration. Ainsi, les mesures MOKE ne sont plus effectuées en faisant varier le champ de manière continue, mais point par point. La procédure d'application du champ est très similaire à celle utilisée précédemment:

Aucun champ n'est appliqué pendant 2 s, un champ saturant (± 390 Oe) est appliqué pendant 2 s. Le champ auquel doit être effectuée la mesure est alors appliqué, et on attend pendant 6 s avant d'effectuer la mesure (qui dure 5 s), puis 4 s sont nécessaires au transfert et au traitement des données. Deux mesures successives sont donc espacées de 19 s au total.

Les mesures présentées à la figure (4.21) ont donc été réalisées à la fréquence double comme au fondamental, exactement dans les mêmes conditions.

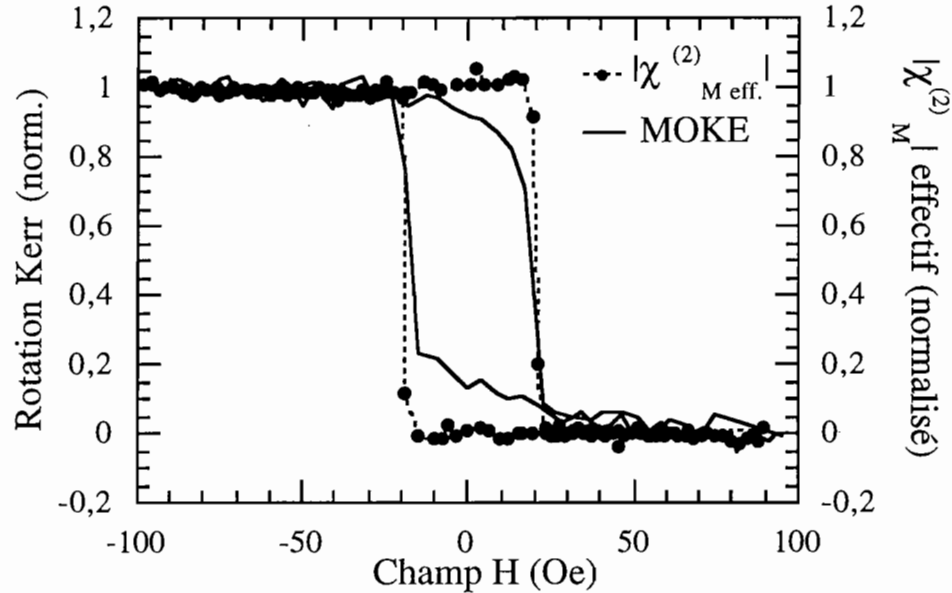


Figure (4.21) : Cycles d'hystérésis à 2ω et en MOKE en configuration longitudinale pour une épaisseur de cobalt de 20 P.A. (les valeurs sont normalisées). Les conditions de mesure sont en tous points identiques pour les deux méthodes. Le faisceau fondamental est polarisé p. Pour les mesures à 2ω , l'analyseur est orienté à 45° de la polarisation p. Le contraste magnétique total est de $75\% \pm 2\%$. Le champ coercitif mesuré est de 40 Oe environ.

Les cycles d'hystérésis mesurés diffèrent assez nettement. Les champs coercitifs mesurés sont très proches, mais le cycle d'hystérésis mesuré en MOKE est nettement plus arrondi que celui mesuré à la fréquence double.

Des mesures en imagerie MOKE effectuées à l'aide d'un montage du LPS par L.Belliard ont permis de confirmer l'allure du cycle présenté ici.

Afin de comprendre cette différence de comportement, nous avons d'abord suivi les variations de ces signaux en fonction du temps, après application d'un champ saturant $+H_{\text{sat}} = +86$ Oe ($t = -60$ s), puis $-H_{\text{sat}} = -86$ Oe ($t = -30$ s), et enfin d'un champ $H_{\text{app.}} = 8$ Oe (à $t = 0$).

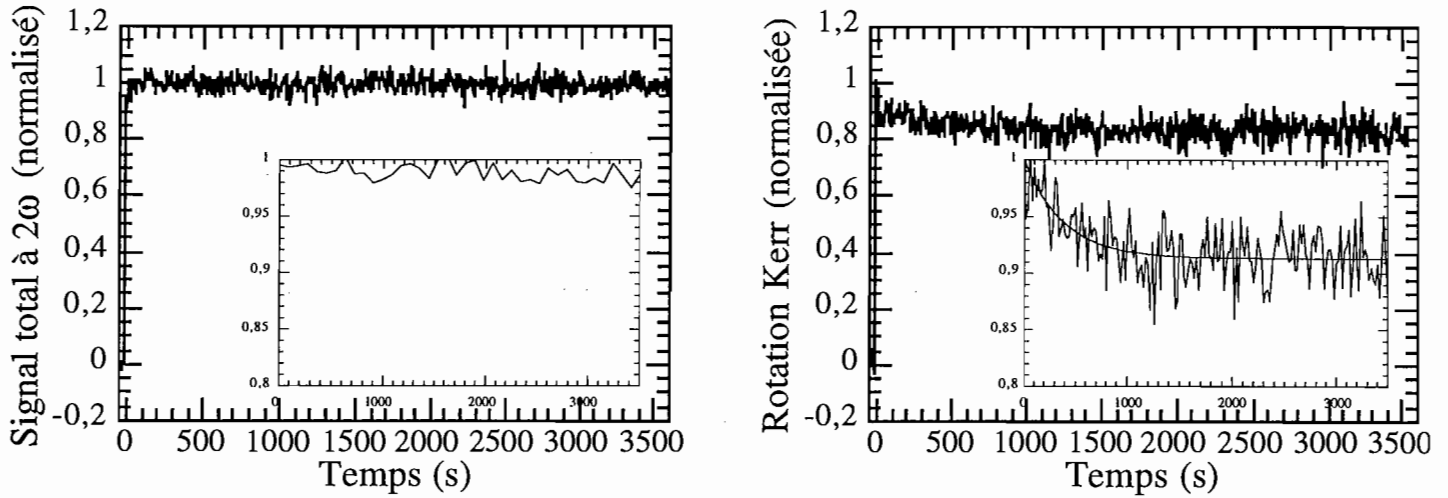


Figure (4.22): Dépendance temporelle des signaux à 2ω (à gauche) et MOKE (à droite) normalisés, mesurés après applications d'un champ de 86 Oe, puis de -86 Oe et enfin de 8 Oe à $t=0$, en configuration longitudinale, suivant D1. En insert, les moyennes de 7 séries de mesures selon chaque technique, présentées avec une échelle verticale plus faible. La ligne continue sur l'insert de droite correspond à un ajustement effectué à l'aide de l'équation $y=a+b.exp(-ct)$. On obtient alors: $c=2,6.10^{-3} s^{-1}$.

Comme le montrent les graphes de la figure (4.22), le signal mesuré par doublage de fréquence ne subit aucune variation mesurable au cours du temps (des mesures effectuées sur une durée allant jusqu'à 2h conduisent au même résultat). Au contraire, le signal MOKE décroît, avec une fréquence caractéristique de $2,6.10^{-3} s^{-1}$ (ou une demi-vie de 267 s).

Nous avons vérifié par ailleurs que le signal à la fréquence double restait bien constant pour des champs appliqués supérieurs à 8 Oe (et ce jusqu'au champ de retournement de 20 Oe environ). Par contre, la décroissance du signal MOKE devient plus rapide lorsque le champ appliqué augmente et se rapproche de 20 Oe.

Ce comportement dynamique justifie bien l'allure des cycles reportés sur la figure (4.21). La durée de la mesure étant loin d'être négligeable (11 s entre le début de l'application du champ et la fin d'une mesure), le signal MOKE décroît d'autant plus que l'on se rapproche du champ de retournement, d'où la forme arrondie de ce cycle.

Il semble donc que l'aimantation reste «accrochée» à la surface, tandis que l'aimantation en volume relaxerait en conduisant à la diminution du signal MOKE. Il ne faut pas négliger la possibilité que le phénomène conduisant à la décroissance de la rotation Kerr ne soit pas détectable par doublage de fréquence, ce qui reste cependant peu probable.

On peut expliquer la décroissance du signal MOKE par une rotation progressive de l'aimantation vers une position d'équilibre proche de la direction facile D3, qui se traduirait par une diminution de la composante longitudinale de l'aimantation au profit d'une composante transverse. Ceci pourrait mener à la diminution observée du signal MOKE.

L'explication est plus vraisemblablement à chercher dans des phénomènes dynamiques liés à la procédure d'application du champ utilisée ici. C'est ce que pourraient montrer des mesures MOKE dynamiques complémentaires entreprises au LPS.

Mesures suivant l'axe D2

Dans cette configuration, l'axe de facile aimantation est perpendiculaire à la direction d'application du champ magnétique. En pratique, il existe un léger désalignement entre ces deux directions.

Nous avons étudié par doublage de fréquence les structures en domaines formées à l'interface Co/Pt lorsqu'un champ donné H_{app} est appliqué suivant la direction D2 pendant 5 s, puis coupé. Le faisceau fondamental est polarisé p. Les images présentées aux figures (4.23) et (4.24) ont été réalisées sans analyseur. Lorsque le champ est relâché ($0 \text{ Oe} \pm 5 \text{ Oe}$), l'aimantation saturée qui était initialement horizontale forme des structures en «flammèches», ou «rubans», orientées suivant la direction de facile aimantation D3. Si l'on applique à nouveau un champ légèrement supérieur à H_{app} , il est possible de réorienter la structure vers la direction du champ. La figure (4.23) présente 8 images obtenues pour des champs H_{app} variant entre 10 et 50 Oe.

En l'absence d'analyseur, les composantes longitudinales de l'aimantation ne donnent aucun contraste, et seules les composantes transverses sont responsables du contraste observé ici (voir table (2.5)). Les domaines correspondent donc à des aimantations alignées parallèlement à la direction des «rubans», c'est à dire D3. L'aimantation des domaines est donc alignée avec l'axe de facile aimantation, ce qui paraît cohérent. Comme on peut le constater sur l'image (4.24), cette direction est légèrement décalée par rapport à la verticale, c'est à dire par rapport à la perpendiculaire au champ appliqué. C'est ce décalage qui explique qu'il soit possible de faire varier la structure en domaines par l'application d'un champ (qui comporte donc une légère composante suivant la direction d'aimantation D3).

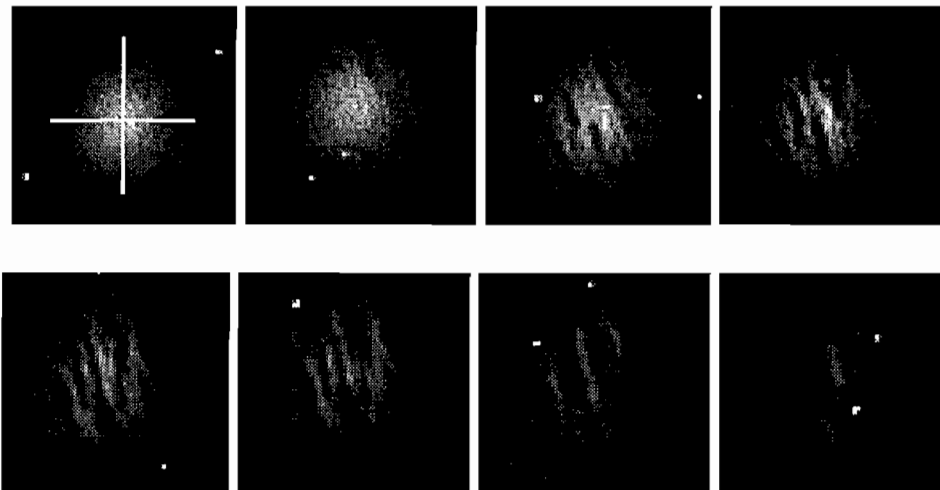


Figure (4.23): Images de structures en domaines obtenues sous champ nul après application suivant la direction D2 et pendant 5 s de champs magnétiques variant entre 10 et 50 Oe. Le faisceau incident est polarisé p, aucun analyseur n'est utilisé. Les images obtenues à la saturation sont visibles à la figure (3.7). 1 pixel correspond à $1 \mu\text{m}$ sur l'échantillon suivant l'axe vertical, et à $1.41 \mu\text{m}$ suivant l'axe horizontal. Les traits blancs sur la première image correspondent donc à $45 \mu\text{m}$ verticalement et $57 \mu\text{m}$ horizontalement. Le temps d'acquisition est de 10 min par image.

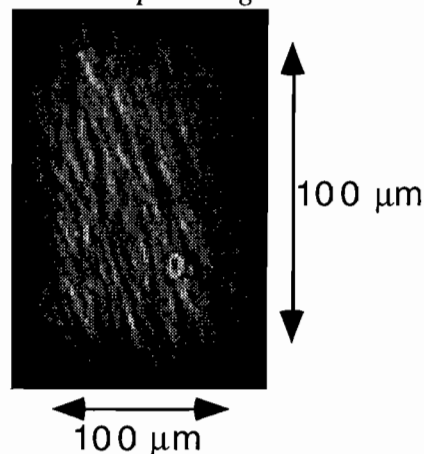


Figure (4.24) : Image obtenue par assemblage de 25 images (5x5) obtenues par translation suivant deux axes orthogonaux, par pas de $20 \mu\text{m}$. L'image représente donc $100 \times 100 \mu\text{m}$ sur l'échantillon. La forme rectangulaire (rapport $\sqrt{2}$) dérive de la configuration en réflexion à 45° . Le champ appliqué avant la réalisation de l'image est de 20 Oe. Cette figure, reproduite ici par commodité, est strictement identique à la figure (3.X9).

L'allure de ces structures n'est pas sans rappeler celles observées en présence de «ripple» [HAR68], c'est à dire de petites fluctuations de la direction d'aimantation. Cependant, l'anisotropie de l'échantillon et la sensibilité exclusive de la configuration utilisée à l'aimantation transverse semble exclure cette possibilité.

Des structures présentant la même allure en «rubans» et la même taille (environ $5 \mu\text{m}$ de large) ont pu être observées indépendamment par L. Belliard par microscopie MOKE au LPS. Le contraste offert par ce type de configuration est cependant beaucoup moins bon qu'en doublage de fréquence. La réalisation simultanée d'images selon les deux méthodes (MOKE et doublage de fréquence) apportera sans doute des éléments d'interprétation supplémentaires.

Mesures suivant l'axe D3

Le champ est à présent appliqué parallèlement à l'axe d'anisotropie. À nouveau, nous avons mesuré les cycles dans les mêmes conditions, en MOKE et à la fréquence double. La procédure d'application du champ est ici identique à celle utilisée pour les mesures suivant l'axe D1 (voir figure (4.21)). Les cycles présentés à la figure (4.25) résultent pour le MOKE de la moyenne de 12 séries de mesures et pour la fréquence double de la moyenne de 7 séries de mesures. Ces mesures ont été répétées en deux endroits distincts de l'échantillon, afin de s'assurer qu'aucun problème d'homogénéité de l'échantillon ne perturbait les mesures. Les cycles obtenus sont en tous points identiques. Aucune dérive temporelle du signal n'a pu être mesurée (en deçà de une heure), en MOKE ou à la fréquence double.

Des mesures MOKE effectuées dans la même configuration sur le montage du LPS ont confirmé l'allure du cycle présenté à la figure (4.25).

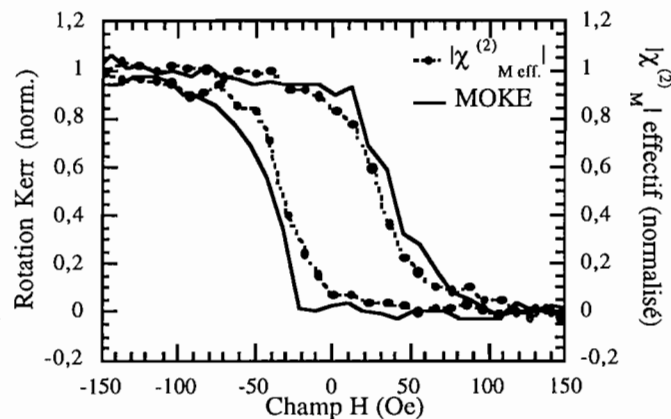


Figure (4.25): Cycles d'hystérésis à 2ω et en MOKE en configuration longitudinale pour une épaisseur de cobalt de 20 P.A. (les valeurs sont normalisées). Les conditions de mesure sont en tous points identiques pour les deux méthodes. Le faisceau fondamental est polarisé p. Pour les mesures à 2ω , l'analyseur est orienté à 50° de la polarisation p. Le champ coercitif mesuré est de 77 Oe en MOKE et de 63 Oe à 2ω , soit une différence relative de 20 %.

Les cycles mesurés selon les deux méthodes diffèrent assez nettement, tant par leurs formes que par leur champs coercitifs (20%).

La présence de domaines a pu être observée par doublage de fréquence. Aucune image n'a pu être obtenue en l'absence d'analyseur, ce qui est un bon indice de l'absence de composante d'aimantation transverse. L'aimantation est donc, selon toute vraisemblance, dans la direction de facile aimantation D3 selon laquelle est appliqué le champ magnétique (suivant la direction horizontale sur ces images). Les images présentées à la figure 4.26 ont été obtenues en utilisant un analyseur orienté à 63° de la polarisation p.

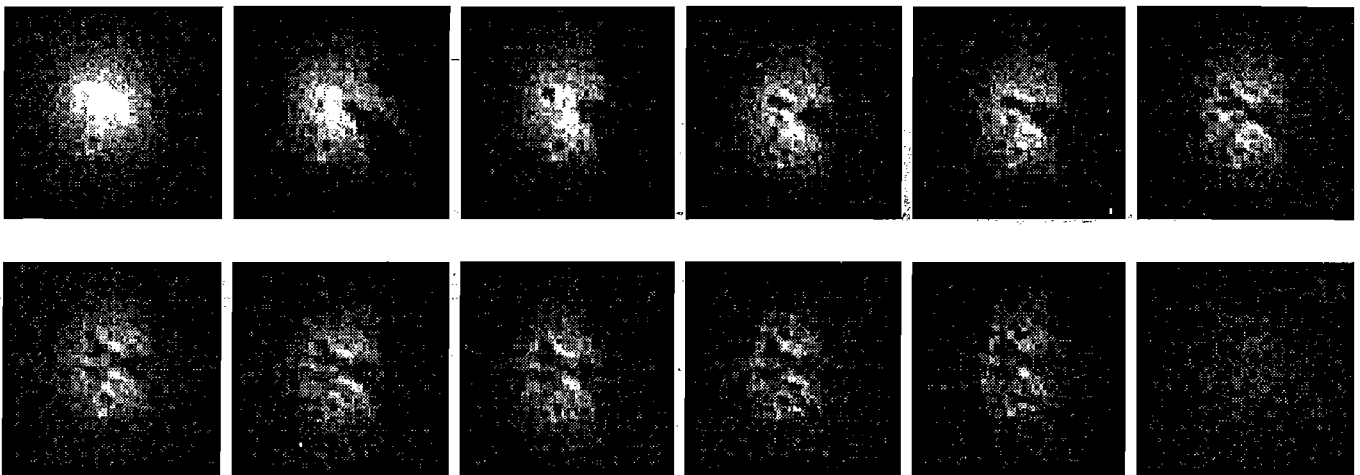


Figure (4.26) : Images de structures en domaines obtenues sous champ nul après application suivant la direction D3 et pendant 5 s de champs magnétiques variant entre 0 et 30 Oe. Le faisceau incident est polarisé p, l'analyseur est orienté à 63° de la polarisation p. Les images obtenues à saturation sont visibles en haut à gauche et en bas à droite. 1 pixel correspond à $1 \mu\text{m}$ sur l'échantillon suivant l'axe vertical, et à $1.41 \mu\text{m}$ suivant l'axe horizontal. Le temps d'acquisition est de 10 min par image.

Ici, il est intéressant d'évaluer dans quelle mesure le phénomène d'interférence entre les contributions issues des divers domaines magnétiques, évoqué au §1.4 de ce chapitre, peut influencer sur les cycles d'hystérésis obtenus. Nous avons donc sélectionné une zone de 400 pixels (20×20), et en appliquant un filtre de type « seuil » aux images de la figure 4.26, évalué quelle était la proportion r de domaines sombres et clairs sur chaque image. Cette mesure du rapport r entre les surfaces de chaque type de domaine présente cependant un bruit non négligeable (de l'ordre de $\pm 0,05$). Par ailleurs, nous avons mesuré la valeur moyenne des pixels sur cette même zone. Cette moyenne est représenté par des cercles à la figure (4.27) en fonction du rapport r . Comme on peut le voir, ces mesures s'écartent légèrement de la droite $y=1-r$ (traits interrompus). Ceci peut être expliqué si l'on considère l'expression (4.10b), en présence de domaines orientés longitudinalement :

$$I^{(2\omega)}(\alpha, r) \propto (1-2r)^2 \phi_k^2 \sin^2 \alpha + 2(1-2r)\phi_k \cos \alpha \sin \alpha \cos \varphi + \cos^2 \alpha \quad (4.10b)$$

La courbe en traits pleins à la figure (4.27) est calculée sans ajustement à l'aide de cette expression, pour les paramètres $\varphi=20^\circ$ et $\phi_k=0,3$ obtenus à l'aide de l'étude polarimétrique de la figure (4.19), et pour $\alpha=63^\circ$ (angle de l'analyseur utilisé pour obtenir les images de la figure (4.26)). Malgré le bruit expérimental, il semble que ce phénomène d'interférence soit bien responsable de l'écart constaté par rapport à un comportement linéaire ($y=1-r$).

Comme nous l'avons noté au §1.4, la conséquence principale de ceci est que les mesures par doublage de fréquence s'écartent légèrement de celles obtenues par MOKE. Nous allons à présent déterminer dans quelle mesure cet effet affecte la forme de l'hystérésis mesuré à la fréquence double. La rotation Kerr magnéto-optique (que nous noterons ici θ_k) est proportionnelle au rapport r . Nous allons donc utiliser la rotation Kerr normalisée pour évaluer $I^{(2\omega)}(\alpha, \theta_k)$ à l'aide de l'expression (4.10b), toujours avec les paramètres $\varphi=20^\circ$, $\phi_k=0,3$ et $\alpha=63^\circ$. Comme on peut le voir sur l'insert à la figure (4.27), la déformation du cycle d'hystérésis induite par l'effet considéré ici est faible (cycle en trait plein). Le cycle corrigé de ces effets calculé à partir du cycle mesuré en volume reste relativement carré.

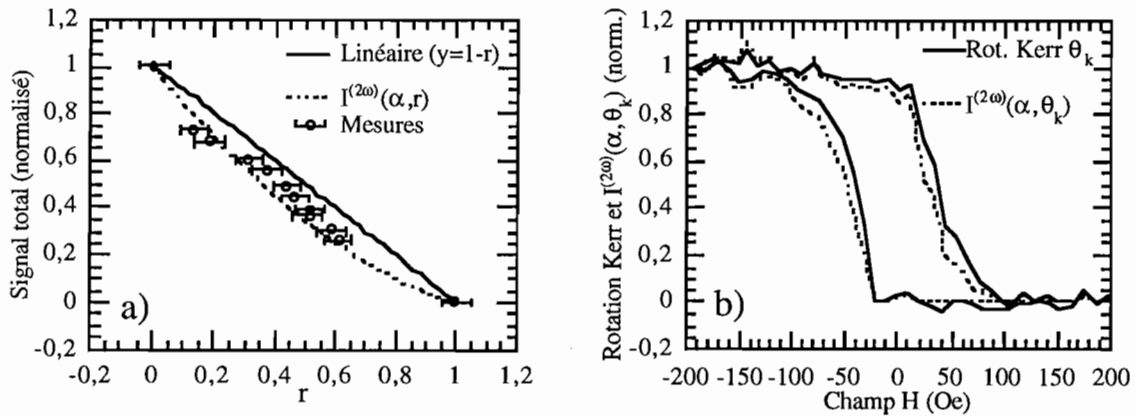


Figure (4.27): a) Signal moyen mesuré sur une zone de 20x20 pixels en fonction du rapport r entre les surfaces des deux types de domaines (mesurés sur les images de la figure 4.26) (cercles). La droite en traits interrompus correspond simplement à $y=1-r$. b) cycle d'hystérésis MOKE (trait plein) et cycle corrigé ($I^{(2\omega)}(\alpha, \theta_k)$, traits interrompus), calculé à partir des mesures MOKE et de l'expression (4.10b). Aucun ajustement n'a été effectué; toutes les valeurs sont normalisées.

On peut donc écarter avec certitude la possibilité que cet effet soit responsable des différences observées entre les cycles mesurés en surface et en volume. On est bien en présence, sur les cycles de la figure (4.25), de phénomènes intrinsèquement différents en surface et en volume.

Afin de mieux comprendre le phénomène à l'origine de ces différences, nous avons effectué de l'imagerie sur une zone plus étendue de l'échantillon. Les images présentées à la figure (4.28) résultent de l'assemblage d'images réalisées pour un champ appliqué de 25 Oe.

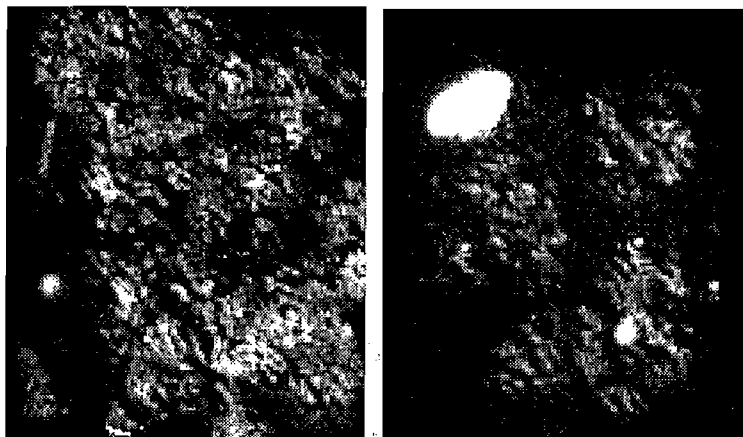


Figure (4.28) : Images obtenues par assemblage de 80 images (8x10 images, à gauche) et 36 images (6x6 images, à droite) réalisées par translation suivant deux axes orthogonaux, par pas de 20 μm . Les deux images ont été obtenues pour un même champ appliqué avant les mesures (25 Oe) en deux endroits différents de l'échantillon.

Ces images ont été comparées aux images obtenues dans les mêmes conditions par imagerie Kerr au LPS. Les structures en domaines observées en volume sont analogues à celles présentées sur la figure (4.28). Cependant, ces images n'ont évidemment pas été réalisées au même endroit de l'échantillon. Il est donc impossible de comparer directement entre elles les images fournies par les deux techniques et de conclure quant à une différence entre les structures en domaines présentes dans le volume et à la surface. Ce problème souligne la nécessité de développer un système d'imagerie par effet Kerr capable de fonctionner parallèlement à l'imagerie par doublage de fréquence sur notre montage. Ce n'est qu'en disposant d'images du même domaine en surface et en volume que l'on pourra conclure avec certitude. Ce dispositif d'imagerie Kerr devrait prochainement être adjoint à notre montage.

3.2.6 Structure Pt/Co (20 P.A.)/Pt déposée à 400°C

La structure Al_2O_3 / Pt (40 Å) / Co (20 P.A.) / Pt (15 P.A.) que nous allons étudier ici est strictement identique à celle que nous venons d'étudier au long du chapitre 3.2.5, à ceci près que la couche de cobalt a été déposée à une température de 400 °C (au lieu de 100 °C précédemment).

L'augmentation de la température de dépôt peut modifier la croissance des métaux qui composent la structure. L'activation thermique des processus de diffusion en surface et en volume peut modifier la morphologie de la surface et favoriser la démixtion si les matériaux

sont non miscibles, ou la formation d'alliages si, comme c'est le cas ici, les métaux sont miscibles. L'étude menée par C.Train [TRA98] sur des échantillons similaires conclut effectivement à la formation d'alliages aux interfaces: sur une telle structure comportant 6 P.A. de cobalt, les spectres magnéto-optiques obtenus permettent d'évaluer l'épaisseur de la couche d'alliage à chaque interface à 0,5 P.A. si le dépôt est fait à 100 °C et 2,5 P.A. si le dépôt est effectué à 400°C. De plus, la modification de la rugosité des surfaces a une influence sur les propriétés des couches de cobalt ultraminces [JIA96].

Ces modifications de la structure des couches se traduit par une augmentation de l'épaisseur de basculement de l'axe de facile aimantation. Ce basculement, qui se produit vers 13 P.A. dans des couches réalisées à 100°C (voir figure (4.16)), n'intervient que pour 16 P.A. dans des couches déposées à 400 °C [TRA98]. Parallèlement, le champ coercitif des couches dont l'aimantation est perpendiculaire augmente avec la température de dépôt. Comme nous allons le voir, il en est de même pour le champ coercitif d'une structure dont l'aimantation est planaire.

Pour 20 P.A. de cobalt, la structure que nous avons étudiée présente une aimantation planaire. Les variations du contraste magnétique en configuration longitudinale sont présentées à la figure (4.29) en fonction de l'angle de l'analyseur. Ces mesures ont été réalisées successivement pendant l'application d'un champ magnétique saturant (± 700 Oe), et sous champ nul, après application de l'un ou l'autre de ces champs saturants. Comme on peut le constater les résultats obtenus sont différents. En particulier, le contraste obtenu hors champ présente une asymétrie par rapport à l'axe $\rho=0$ qui est caractéristique de la présence d'une (faible) anisotropie planaire.

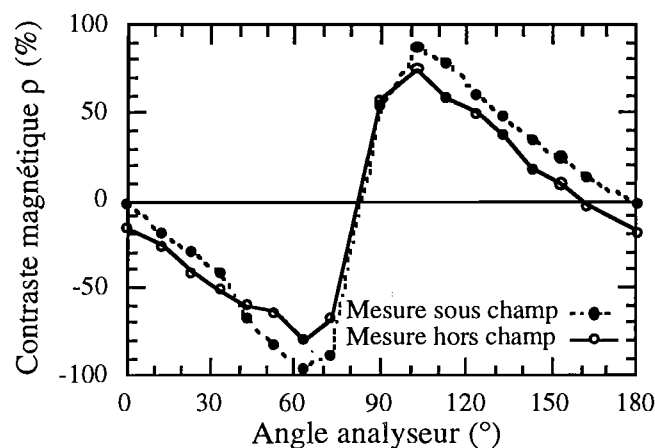


Figure (4.29): Variations du contraste magnétique avec l'angle entre l'analyseur et la polarisation p . Le polariseur est orienté p . Les cercles correspondent à des mesures effectuées pendant l'application d'un champ de ± 700 Oe, et les points noirs à des mesures effectuées sous champ nul, après application de ± 700 Oe.

Nous sommes donc ici dans une situation analogue à celle notée précédemment D1: l'axe de facile aimantation n'est pas aligné avec la direction du champ appliqué.

Dans cette configuration, nous avons mesuré, dans les mêmes conditions d'application des champs, les cycles d'hystérésis en MOKE et par doublage de fréquence (figure (4.30)). Les mesures sont effectuées pendant que le champ magnétique est appliqué, et la durée d'intégration est de 5 s par point. Pour les mesures à la fréquence double, l'angle de l'analyseur est de 50° par rapport à la polarisation p . Une moyenne sur sept séries de mesures a été effectuée pour obtenir le cycle à 2ω . Le cycle MOKE résulte de 3 séries de mesures.

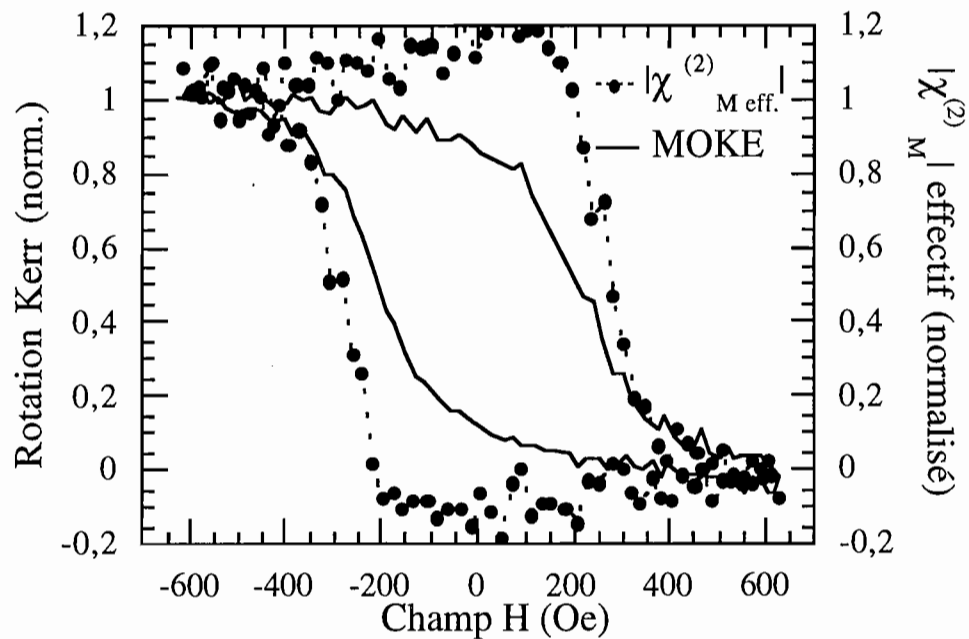


Figure (4.30): Cycles d'hystérésis à 2ω et en MOKE en configuration longitudinale pour une couche de cobalt de 20 P.A. déposée à 400°C (les valeurs sont normalisées). Les conditions de mesure sont en tous points identiques pour les deux méthodes. Le faisceau fondamental est polarisé p . Pour les mesures à 2ω , l'analyseur est orienté à 50° de la polarisation p . Le champ coercitif mesuré est de 420 Oe en MOKE et de 575 Oe à 2ω , soit une différence relative de 31 %.

Les cycles obtenus présentent des champs coercitifs nettement supérieurs (environ 10 fois) à ceux mesurés précédemment sur des échantillons déposés à 100°C. La différence entre les cycles mesurés est très nette, puisque la différence entre les champs coercitifs est de 31%.

Il est possible qu'une orientation de l'aimantation vers la direction de facile aimantation pour les faibles champs soit responsable de l'apparition d'une composante d'aimantation transverse donnant lieu à un contraste magnétique additionnel. Ceci pourrait expliquer la légère augmentation de l'amplitude du cycle entre -150 et + 150 Oe environ. Cependant, cette composante transverse est probablement négligeable au delà de 150 Oe, en raison de la faiblesse de l'anisotropie planaire. Un tel phénomène ne saurait expliquer l'importante différence de champ coercitif entre les hystérésis mesurés.

De manière qualitative, on comprend que si les caractéristiques des interfaces contribuent à augmenter la coercivité de la couche (d'un facteur 10 par rapport à une couche identique réalisée à 100°C), la coercivité de l'interface doit être supérieure à celle du volume.

Dans ce système où la présence d'alliage aux interfaces est augmentée par la température de dépôt élevée, l'argument selon lequel les propriétés des interfaces doivent différer de celles du volume (où le cobalt est plus pur) est plus valide que jamais. De fait, d'importantes différences ont été mesurées entre les caractéristiques en volume et aux interfaces de la couche magnétique, où le champ coercitif est plus fort. Cette augmentation du champ coercitif à l'interface est probablement liée à la forte augmentation de la coercivité globale de ce système réalisé à haute température de dépôt.

L'ensemble des mesures réalisées sur ces échantillons Co/Pt à aimantation planaire met en évidence des différences nettes entre le comportement de l'aimantation mesuré en volume par MOKE et aux interfaces par doublage de fréquence. Leur observation justifie l'intérêt de notre technique, et son apport par rapport aux techniques linéaires.

Dans le cas où l'axe de facile aimantation est désaligné par rapport à la direction d'application du champ, ces différences sont clairement liées à des cinétiques de réorientation de l'aimantation différentes en surface et en volume. Lorsque l'axe de facile aimantation est aligné par rapport à la direction d'application du champ, des différences de comportement ont également été observées sans ambiguïté.

D'une manière générale, ces différences entre surface et volume sont intimement liées à la nature complexe de l'interface Co/Pt. La présence d'alliages et de platine polarisé modifie notablement les propriétés magnétiques du cobalt situé aux interfaces. C'est ce que prouvent les différences accrues entre les propriétés des interfaces et du volume mesurées sur des échantillons réalisés à haute température de dépôt, et dont les interfaces sont plus diffuses.

3.3 Les doubles couches couplées par échange FeSi/DyFeCo

3.3.1 Introduction

Les alliages ternaires tels que TbFeCo, DyFeCo et GdFeCo sont les matériaux standard des média d'enregistrement magnéto-optiques de première génération. Ces matériaux, actuellement sur le marché, fonctionnent avec des lasers émettant dans l'infrarouge proche, à 830 et 780 nm.

L'amélioration des performances passe par la mise au point de supports magnétiques permettant de travailler aux faibles longueurs d'onde afin d'augmenter la résolution. Les doubles couches couplées par échange constitueront très probablement cette deuxième génération, dans la mesure où elles permettent:

- de forts effets magnéto-optiques (rotations Kerr ou Faraday) pour les faibles longueurs d'ondes. Il est ainsi possible d'utiliser les diodes laser vertes et bleues aujourd'hui disponibles afin d'obtenir de meilleures résolutions optiques,
- une bonne sensibilité d'écriture, permettant de réduire les champs magnétiques d'écriture, donc la consommation électrique du système,
- une grande vitesse d'utilisation grâce au processus de sur-écriture directe (aucun processus d'effacement n'est nécessaire avant la réécriture sur le support),
- une grande densité d'information grâce à l'utilisation de la super résolution magnétique, permettant de lire des bits de taille inférieure à la limite imposée par la diffraction optique.

On pourra se reporter à [SBI96] pour une description détaillée des mécanismes liés à chacun de ces phénomènes.

Caractéristiques de l'échantillon

Le système que nous avons étudié a été réalisé dans l'équipe de H. Le Gall. Il comprend, sur un substrat de verre, deux couches actives et une couche de protection (voir figure (4.31)). La couche de Dy₃₀Fe₅₈Co₁₂, d'une épaisseur de 30 nm, possède une forte anisotropie perpendiculaire et un fort champ coercitif. Il s'agit de la couche dite "mémoire". Déposée seule sur un substrat de verre, une telle couche de 30 nm de DyFeCo a un champ coercitif proche de 5000 Oe à 300 K, et présente un cycle (mesuré par rotation Faraday à 638 nm dans l'équipe de H. Le Gall) parfaitement rectangulaire. Cependant, ce type d'alliage, qui présente

de bonnes caractéristiques magnéto-optiques dans l'infrarouge, ne génère que de faibles rotations Kerr ou Faraday dans le vert ou le bleu.

Le rôle de la couche de FeSi déposée au dessus est notamment de permettre, grâce à ses bonnes propriétés magnéto-optiques aux faibles longueurs d'ondes, la lecture de l'information. Cette couche possède une forte anisotropie planaire et un faible champ coercitif. Elle contribue à abaisser notablement le champ coercitif de la couche de DyFeCo (de 20 % environ dans le cas présent), ce qui permet de réduire les champs nécessaires à l'écriture.

L'ensemble est recouvert par une couche de silice, transparente sur un large spectre, afin de protéger les couches sous-jacentes.

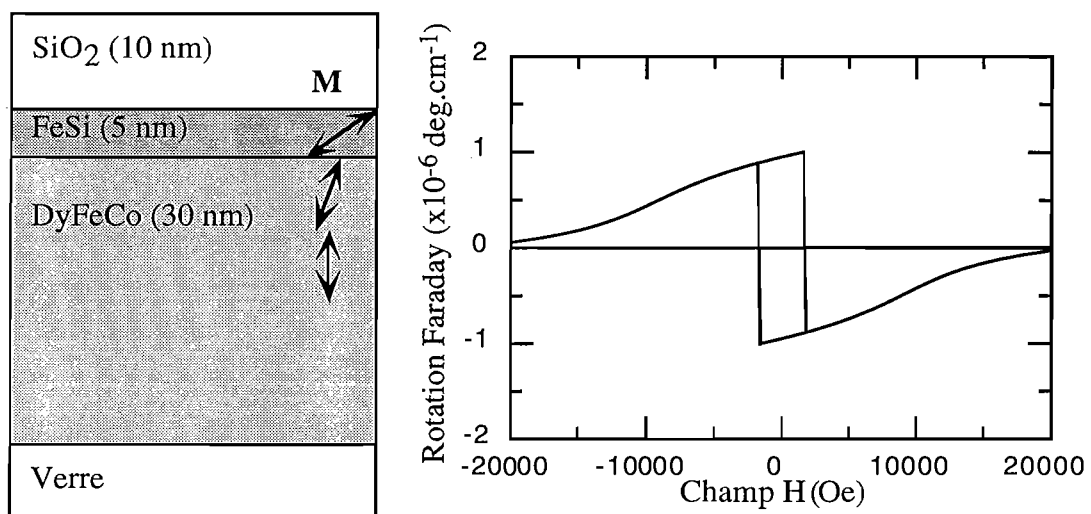


Figure (4.31): Représentation schématique de l'échantillon et de l'axe de facile aimantation dans les couches (à droite), et du cycle d'hystérésis mesuré par rotation Faraday en configuration polaire (d'après des mesures effectuées par l'équipe de H.Le Gall).

Mode de fonctionnement. Super-résolution magnétique

Pour résumer schématiquement le fonctionnement de ces doubles couches couplées par échange, on peut dire que la première couche, grâce à son fort champ coercitif, va permettre le stockage de l'information proprement dite. Le processus d'écriture est le même que dans les couches magnéto-optiques de première génération. Un faisceau laser étroitement focalisé (bleu si possible) induit une hausse localisée de la température jusqu'au voisinage de la température de Curie. La coercivité s'effondre (jusqu'à 100 Oe environ), et un champ relativement faible (200 Oe environ) suffit alors à orienter l'aimantation selon la direction voulue.

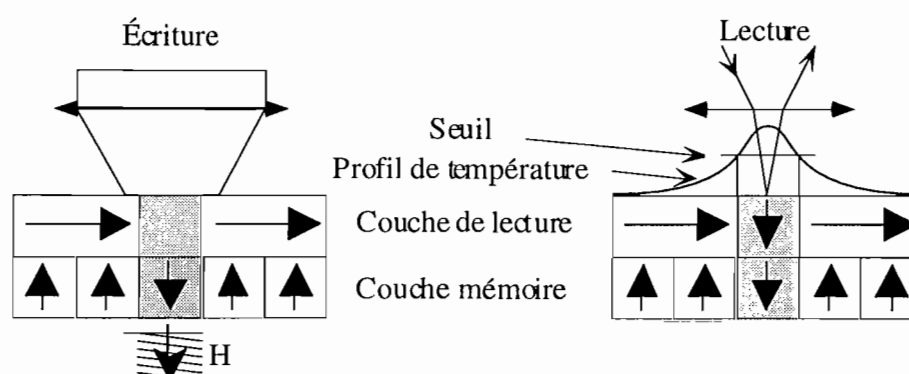


Figure (4.32): Représentation schématique du processus d'écriture (à gauche) et de lecture par super-résolution magnétique (à droite) dans les doubles couches couplées par échange.

Le processus de lecture est différent, et fait appel à la super-résolution magnétique. Pour des températures proches de l'ambiante, l'aimantation de la couche supérieure de lecture reste planaire. La rotation magnéto-optique dans les couches à aimantation planaire est quasiment nulle. On peut donc considérer cette couche froide comme un véritable masque magnéto-optique. Pour la lecture, un faisceau gaussien focalisé induit un échauffement qui, au niveau du centre de la gaussienne, est suffisant pour diminuer l'aimantation en deçà du champ démagnétisant. Cette diminution est suffisante pour permettre un alignement par couplage d'échange de l'aimantation de la couche de lecture avec celle de la couche mémoire. La forte rotation magnéto-optique dans la couche de lecture va alors permettre la mesure du sens de cette aimantation, c'est à dire la lecture du bit. La température nécessaire à la lecture ne permet donc l'ouverture d'une "fenêtre magnéto-optique" que très localement, sur un diamètre inférieur à celui de la tache de focalisation. On parle alors de super-résolution magnétique.

Répartition de l'aimantation dans les couches. Intérêt du système.

Dans ces couches, l'aimantation subit en fait une rotation graduelle. La figure (4.33), présente l'angle ϕ de l'aimantation par rapport au plan des couches en fonction de la profondeur, calculé par R.Sbiaa à l'aide d'un modèle présenté dans [SBI96]. Comme on peut le voir, l'aimantation est bien perpendiculaire dans une grande partie de la couche de DyFeCo ($\phi=90^\circ$). Lorsque l'on se rapproche de l'interface avec le FeSi, l'aimantation tourne, jusqu'à atteindre environ 120° . Puis, l'angle ϕ augmente lentement dans la couche de FeSi.

Des mesures effectuées en MOKE longitudinal par J. Ferré ont permis de mettre en évidence une très faible anisotropie planaire uniaxe pouvant être interprétée comme due à un effet de

forme de l'échantillon (qui est rectangulaire). Nous avons donc travaillé en utilisant la même orientation de l'échantillon dans tous les cas.

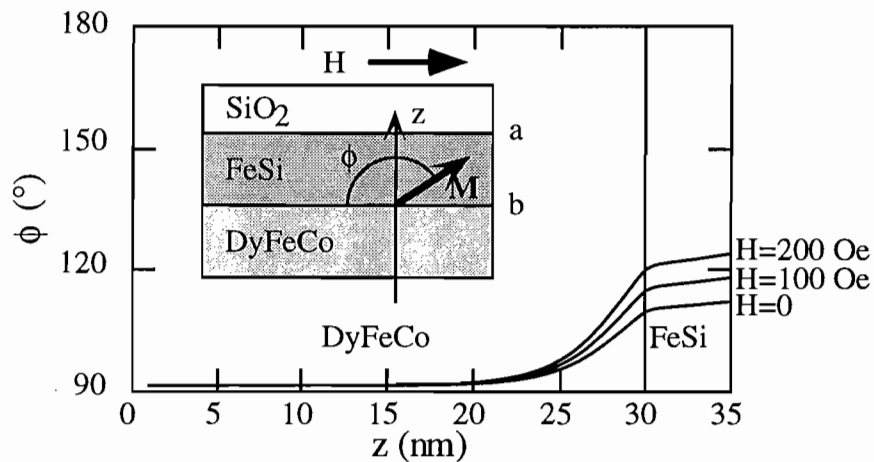


Figure (4.33): Variations de l'angle ϕ entre l'aimantation dans le système et le plan des couches en fonction de la profondeur z , pour trois valeurs du champ magnétique H appliqué. En insert, un schéma du système définissant ϕ , z et l'orientation de H .

Pour nous, l'intérêt d'étudier un tel système est double.

D'une part, il va être possible de répondre à une question fondamentale. Nous savons que le doublage de fréquence est uniquement possible en cas de variation brutale des caractéristiques du matériau, donc aux interfaces. Par contre, rien n'indique qu'une composante du doublage induite par l'aimantation puisse exister en l'absence de variation brutale de l'aimantation. On dispose dans ce système d'une interface FeSi/DyFeCo (b) qui est physiquement assez abrupte, tandis que la variation de l'aimantation est tout à fait continue. Ainsi, l'aimantation est pour ainsi dire décorrélée de la présence de l'interface, et l'on dispose d'un système idéal pour répondre à notre question.

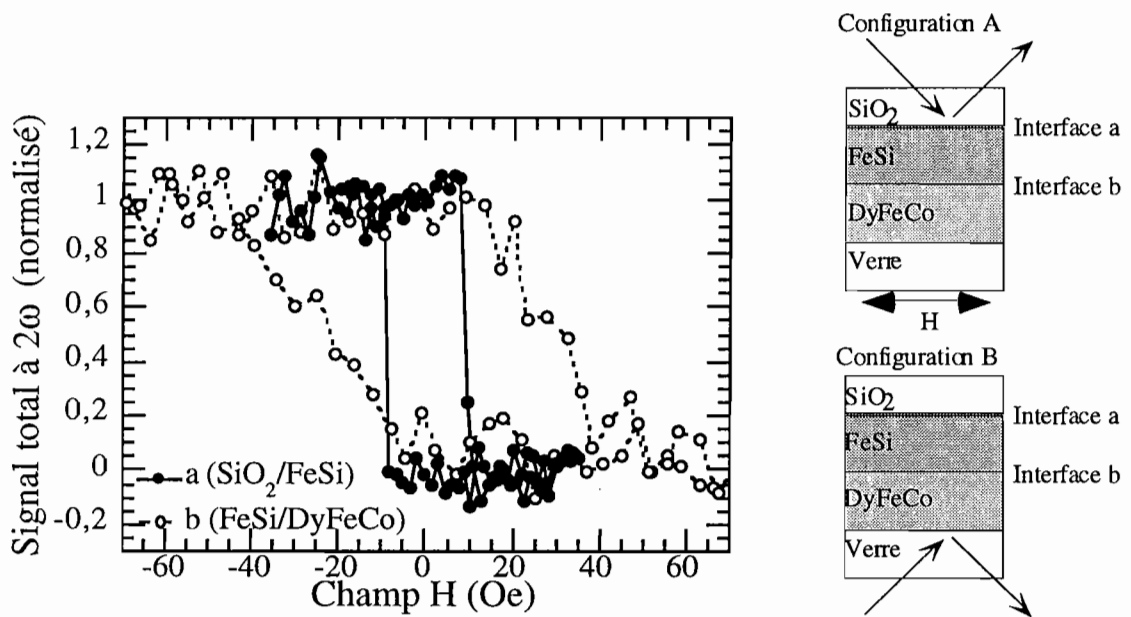
D'autre part, ce système présente une couche (FeSi) dans laquelle l'aimantation a une importante composante planaire. Deux interfaces seulement présentent une telle composante, à laquelle le doublage de fréquence est particulièrement sensible: l'interface SiO₂/FeSi (notée a) et l'interface FeSi/DyFeCo (b). En choisissant d'éclairer le système par la face de SiO₂ (a), ou par le substrat de verre (b), il est possible, en raison de l'absorption du FeSi, d'observer de manière privilégiée le comportement magnétique de l'une ou l'autre de ces interfaces. Comme on peut le voir à la figure (4.33), l'orientation de l'aimantation diffère légèrement entre ces deux interfaces. Mais surtout, on peut s'attendre à ce que l'interface FeSi/DyFeCo (b), en raison de la présence du DyFeCo d'aimantation perpendiculaire et de fort champ coercitif, présente un désordre magnétique, donc un champ coercitif supérieur à celui de

l'interface SiO_2/FeSi (a). Nous allons ainsi pouvoir mettre en évidence d'éventuelles différences entre le comportement magnétique de ces deux interfaces, et comparer les mesures obtenues à des mesures MOKE.

Mesures à la fréquence double

Les mesures présentées à la figure (4.34) ont été réalisées en appliquant le champ magnétique selon la procédure décrite au paragraphe 3.2.5. Le champ magnétique est donc appliqué pendant toute la durée de la mesure, c'est à dire 5 s pour les mesures en configuration A, et 20 s pour la configuration B. Un temps d'intégration important est nécessaire pour la détection du signal issu de l'interface (b) en raison de l'épaisseur d'alliage DyFeCo (30 nm) absorbant traversée par les faisceaux fondamental et doublé pour sonder cette interface (alors que l'interface (a) n'est recouverte que par 10 nm de silice, transparente aux longueurs d'ondes que nous utilisons). L'étude du signal obtenu dans les configurations A et B en fonction du temps n'a permis de mettre en évidence aucune variation pour des temps allant jusqu'à 15 min. Il est donc légitime de comparer les cycles obtenues dans chacune de ces configurations.

Ces mesures ont été effectuées en configuration longitudinale. Le champ coercitif de la structure mesuré en configuration polaire est très élevé (5000 Oe, voir la figure (4.31)). Même si le champ que nous appliquons comportait une légère composante polaire (ce que nous nous sommes évidemment efforcés d'éviter) il serait pratiquement impossible de modifier la composante polaire de l'aimantation de la couche de DyFeCo avec les champs modestes que nous appliquons (moins de 100 Oe). De plus, comme nous l'avons déjà vu, les composantes polaires induisent un doublage de fréquence d'origine magnétique environ 10 fois plus faible que les composantes longitudinales. Les variations du signal mesuré avec le champ appliqué proviennent donc exclusivement de la composante longitudinale de l'aimantation. Pour cette raison, on peut affirmer que ces variations proviennent uniquement, dans la configuration B, de l'interface b et non de l'interface DyFeCo/verre, pour laquelle l'aimantation est parfaitement perpendiculaire aux couches (voir figure (4.33)).



—Figure (4.34): Cycles d'hystérésis mesurés par doublage de fréquence en configuration longitudinale selon deux géométries, A et B, décrites par les schémas, à droite. Chacun de ces cycles résulte de la moyenne de 10 séries de mesures, réalisées pour des temps d'intégration de 5 s pour la configuration A et 20 s pour la B. L'angle de l'analyseur est de 70° par rapport à la polarisation p du faisceau incident. Les champs coercitifs mesurés sont respectivement de 18 Oe et 52 Oe dans les configurations A et B.

Les cycles d'hystérésis présentés à la figure (4.34) sont très différents. Le cycle mesuré à l'interface (a) est étroit ($H_c \approx 18$ Oe) et carré, tandis que le cycle mesuré à l'interface (b) est plus large ($H_c \approx 52$ Oe), et plus incliné. Ceci est en bon accord qualitatif avec nos remarques précédentes. Nous avons donc mis en évidence de manière claire des différences entre les propriétés magnétiques des deux interfaces d'une même couche magnétique.

Par ailleurs, le simple fait que nous ayons pu mesurer un cycle d'hystérésis à l'interface (b) permet de montrer que la présence d'une composante induite par l'aimantation dans le doublage de fréquence aux interfaces ne nécessite pas de variation brutale de l'aimantation. En fait, c'est l'interface physique entre les deux matériaux qui, en permettant le doublage de fréquence, autorise une véritable vue en coupe dans le matériau. Quelle que soit la répartition de l'aimantation dans le matériau, la mesure par doublage de fréquence permet de mesurer sélectivement l'aimantation au niveau de l'interface.

Mesures en MOKE longitudinal

Nous avons mesuré le cycle d'hystérésis de la structure, en configuration longitudinale, et dans les mêmes conditions que précédemment (5 s par point), en configuration A. La rotation Kerr mesurée est relativement faible (environ 0.05° au total), d'où un bruit de mesure non négligeable, visible sur la figure (4.35). En vertu des mêmes arguments que précédemment, on peut à nouveau affirmer que c'est essentiellement la composante longitudinale de l'aimantation qui est mesurée ici (par contre, il faut noter qu'une contribution polaire éventuelle ne serait plus nécessairement négligeable, la rotation Kerr polaire étant généralement supérieure à la rotation longitudinale).

Le MOKE étant sensible en volume, le cycle obtenu peut être vu comme une intégration des composantes longitudinales de l'aimantation à travers tout l'échantillon (cette intégration est toutefois pondérée par l'absorption du faisceau, et on pourrait s'attendre à obtenir des résultats légèrement différents en configuration (b)).

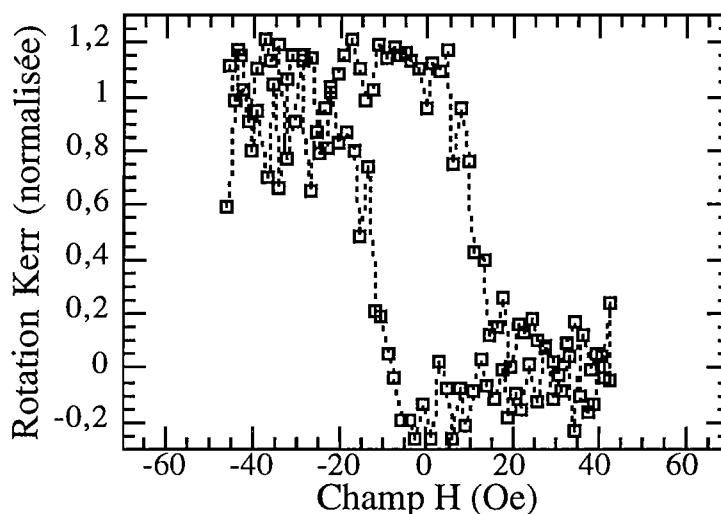


Figure (4.35): Cycle mesuré en MOKE longitudinal, en configuration A. Le polariseur est orienté p. Le cycle présenté résulte de la moyenne de 12 séries de mesure. L'échelle utilisée est identique à celle de la figure (4.34). Le champ coercitif mesuré est de 24 Oe.

Le cycle d'hystérésis obtenu dans cette configuration présente une forme proche de celle des cycles précédents. Son champ coercitif de 24 Oe est compris entre les valeurs obtenues précédemment (18 et 52 Oe).

Ceci est tout à fait cohérent avec la sensibilité du MOKE en volume. Le doublage de fréquence nous a permis d'obtenir les cycles d'hystérésis longitudinaux au niveau de chacune des interfaces a et b. L'effet Kerr permet quant à lui de mesurer le cycle associé aux composantes longitudinales dans tout le volume de l'échantillon, c'est à dire principalement entre a et b. On obtient alors effectivement un cycle en MOKE qui est intermédiaire entre les deux cycles mesurés aux interfaces.

L'étude de cet échantillon nous a permis de montrer que le doublage de fréquence induit par l'aimantation est tout à fait décorrélié d'une variation brutale de l'aimantation. En fait, c'est la seule présence d'une interface entre deux matériaux qui sert de en quelque sorte de révélateur en permettant de mesurer un signal lié à l'aimantation d'interface.

Grâce aux cycles présentés sur les figures (4.34) et (4.35), nous avons par ailleurs obtenu une image très détaillée des caractéristiques de l'aimantation aux différentes interfaces d'une structure relativement complexe. Nous avons donc mis en évidence de manière claire des différences entre les propriétés magnétiques des deux interfaces d'une même couche magnétique ultramine. On imagine aisément l'intérêt considérable que représente la connaissance du comportement de l'aimantation à chacune des interfaces d'une couche pour reconstituer le comportement de l'ensemble de la couche.

Les informations mesurées par doublage de fréquence sont tout à fait complémentaires de celles obtenues à l'aide de l'effet Kerr magnéto-optique. Ces mesures, facilement interprétables qualitativement, donnent une bonne idée du potentiel offert par le doublage de fréquence, sur une structure très proche de celles utilisées industriellement pour l'enregistrement magnéto-optique.

Conclusion

Comme le montrent notamment les résultats qui précèdent, le doublage de fréquence est une technique puissante pour la caractérisation d'interfaces enterrées. En raison des faibles rendements de conversion mis en jeu, la technique demande cependant certains efforts pour pouvoir être mise en œuvre. De plus, l'interprétation des résultats est parfois délicate en raison des spécificités de la technique, mais aussi parce que les propriétés magnétiques des interfaces sont encore peu connues. De fait, la majorité des travaux sur ce sujet, et les nôtres ne font pas exception, s'efforcent avant tout d'apporter une meilleure compréhension des particularités et du potentiel du doublage de fréquence pour l'étude d'interfaces.

Pour ces raisons, nous avons insisté sur les particularités de la méthode tant théoriques qu'expérimentales. Dans un premier temps, l'utilisation d'une théorie phénoménologique du doublage de fréquence nous a permis de comprendre la nature des informations accessibles à travers diverses configurations de mesure (études en fonction du sens et de la direction de l'aimantation, des positions du polariseur ou de l'analyseur, de l'angle d'incidence, en fonction de l'épaisseur d'une couche). Dans chaque cas, un modèle simple a été proposé permettant de décrire avec précision le comportement du signal à 2ω . Certaines configurations restent à explorer plus en détail. En particulier, des études préliminaires effectuées en faisant tourner l'échantillon sur lui-même (en azimut), permettent de penser qu'il est ainsi possible d'accéder à d'importantes informations (sur l'existence de symétries, sur l'orientation de cristallites et/ou sur l'aimantation).

Différents montages ont été réalisés afin de vérifier ces idées. Ces systèmes sont tous basés sur l'utilisation d'un système de détection permettant de mesurer, comme nous l'avons prouvé expérimentalement, moins d'un photon par seconde à la fréquence double.

L'utilisation de plasmons de surface non locaux nous a permis d'obtenir une exaltation notable du signal doublé en fréquence. Par ailleurs, cette étude novatrice nous a donné l'occasion d'étudier l'influence de l'angle d'incidence, ce qui permet d'accéder aux éléments du tenseur de susceptibilité de chaque interface.

Deux types de montages d'imagerie, parallèle et par balayage, ont également été mis au point. Les images obtenues donnent une information sur les caractéristiques physico-chimiques locales des interfaces, mais aussi sur leur aimantation. Il a ainsi été possible d'obtenir des images (parmi les premières) de structures en domaines magnétiques au niveau des interfaces. Une perspective intéressante en vue de mieux comprendre les particularités de l'imagerie de domaines par doublage serait de développer en parallèle un système d'imagerie Kerr afin de comparer les deux techniques. Qu'il s'agisse d'imagerie ou de mesures, l'un des points expérimentaux essentiels, puisque nous nous efforçons de comparer des mesures effectuées à l'aide de deux techniques très différentes (le doublage de fréquence et le MOKE), est de veiller à ce que ces mesures soient effectuées dans les mêmes conditions.

Une première étude sur de simples couches d'or a permis de mettre en évidence un lien fort entre le doublage de fréquence et la rugosité, mesurée par microscopie à force atomique. Il est ainsi possible d'utiliser le doublage de fréquence comme une sonde rapide et sensible de la rugosité globale d'un échantillon

Le système de caractérisation que nous avons développé a ensuite été utilisé afin d'étudier différents types d'échantillons, essentiellement des couches ultraminces à base de cobalt.

Le système Co/Au constitue un excellent système modèle, dans la mesure où ses interfaces sont relativement abruptes. Dans un premier temps, une étude en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt nous a permis de mettre en évidence le basculement de l'axe de facile aimantation de perpendiculaire à parallèle au plan des couches, mais aussi d'exhiber une preuve forte de la sensibilité sélective du doublage de fréquence à l'aimantation d'interface. Dans le système de référence que constitue Co/Au, les cycles d'hystérésis mesurés en surface ne diffèrent pas, comme on peut s'y attendre, de celles mesurées dans le volume.

En revanche, le système Co/Pt est beaucoup plus complexe, dans la mesure où la formation d'alliages et la polarisation du platine sont possibles aux interfaces. Il en résulte d'importantes différences entre le comportement magnétique de la surface et du volume de l'échantillon. En effet, les différences entre surface et volume s'avèrent plus importantes pour une température de dépôt des couches de 400°C (pour laquelle l'interdiffusion du cobalt et du platine aux interfaces est forte) que de 200°C. Une étude approfondie de l'échantillon réalisé à 200° nous a permis d'observer des différences notables entre les cycles d'hystérésis mesurés dans différentes configurations d'application du champ, dont certaines sont sans doute explicables par des différences de comportement dynamique en surface et en volume. Des images de domaines, permettant d'éclairer le comportement de ce système ont par ailleurs pu être réalisées.

Enfin, l'étude de multicouches FeSi/DyFeCo proches de celles utilisées pour l'enregistrement magnétique nous a permis de montrer expérimentalement que l'existence d'un signal doublé en fréquence d'origine magnétique est tout à fait décorrelée d'une variation brutale de l'aimantation. Comme le prévoit la théorie, la présence d'une interface physique opère une véritable coupe dans le matériau et autorise l'observation d'un effet magnétique à ce niveau. De plus, nous avons pu mettre en évidence dans ce matériau deux cycles d'hystérésis différents associés aux deux interfaces d'une même couche. Le cycle mesuré par MOKE dans le volume de cette couche est alors intermédiaire entre ces deux cycles.

À travers ces exemples, nous nous sommes efforcés de démontrer l'intérêt que représente le doublage de fréquence pour l'étude d'interfaces et de leur magnétisme. Cependant, le domaine d'application de la technique est beaucoup plus vaste, et on peut envisager d'étudier sans grande modification de nos méthodes de mesures des interfaces entre métaux, semi-conducteurs ou diélectriques. La technique est également particulièrement adaptée à l'étude des nanostructures. L'essentiel de ce mémoire est consacré à l'étude de films ultra minces,

c'est à dire des systèmes dont une des dimensions seulement est réduite, mais on peut envisager de s'intéresser à des systèmes, magnétiques ou non, dont deux (nano-fils) ou trois (nano-plots, agrégats) des dimensions sont réduites. Certains travaux récents, et des études préliminaires que nous avons menées, indiquent en effet que ces structures permettent de forts rendements de doublage, notamment en raison des exaltations suscitées par des plasmons locaux.

Références

- [AGR82] V.M. Agranovich, D.L. Mills, *Surface Polaritons*, North-Holland, Amsterdam (1982)
- [AKH85] N.N. Akhmediev, S.B. Borisov, A.K. Zvezdin, I.L. Lyubchanskii, Yu. V. Melikhov, *Sov. Phys. Solid State*, 27, 4, 650 (1985).
- [AKT84] O.A. Aktsipetrov, E.D. Mishina, *Sov. Phys. Dokl.* 29, 37 (1984)
- [AKT95] O.A. Aktsipetrov, P.V. Elyutin, A.A. Nikulin, E.A. Ostrovskaya, *JETP* 80, 50, (1995)
- [ALL97] C.E. Allen, R. Ditchfield, E.G. Seebauer, *Phys. Rev. B* 55, 13304 (1997)
- [ANI75] S.I. Anisimov, B.L. Kapeliovich, T.L. Perelman, *Sov. Phys. JETP* 39, 375 (1975)
- [ANT98] R. Antoine, M. Pellarin, B. Palpant, M. Broyer, B. Prével, P. Galletto, P.F. Brevet, H.H. Girault, *Jour. App. Phys.* 84, 4532 (1998)
- [ARG55] P.N. Argyles, *Phys. Rev.* 97, 334 (1955)
- [ASH76] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Solid State Physics*, Saunders College Publishing, Philadelphia (1976)
- [BAD86] S.D. Bader, E.R. Moog, P. Grünberg, *J. Magn. Magn. Mater.* 53, L295 (1986)
- [BAL96] R. Ballou, dans *Magnetism and synchrotron Radiation*, Les éditions de Physique Ed. (1996)
- [BEA94] P. Beauvillain, A. Bounouh, C. Chappert, S. Ould-Mahfoud, J.P. Renard, P. Veillet, D. Weller, J. Corno, *J. Appl. Phys.* 76, 6078 (1994)
- [BEA96] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* 76, 4250 (1996)
- [BER89] G. Berkovic, Y.R. Shen, G. Marowsky, R. Steinhoff, *J. Opt. Soc. Am. B* 6, 205 (1989)
- [BER98] L. Berquez, M. Mousseigne, V. Haas, J.L. Franceschi, *actes du colloque C2I'98, Instrumentation, interdisciplinarité et innovation*, Hermès, Paris (1998)
- [BIJ96] M.D. Bijker, D.M. Donner, J.C. Lodder, *J. Magn. Soc. Jpn.* 20, 407 (1996)
- [BIR66] R.R. Birss: *Symmetry and magnetism* (North-Holland, Amsterdam, 1966).
- [BLO62] N. Bloembergen, P.S. Pershan, *Phys. Rev.* 128, 606 (1962)
- [BLO99] N. Bloembergen, *Appl. Phys. B* 68, 289 (1999)
- [BEA94] P. Beauvillain, A. Bounouh, C. Chappert, R. Mégy, S. Ould-Mahfoud, J.P. Renard, P. Veillet, D. Weller, J. Corno, *J. Appl. Phys.* 76, 1 (1994)
- [BOY86] G.T. Boyd, Y.R. Shen, T.W. Hänsch, *Opt. Lett.* 11, 97 (1986)
- [BRO65] F. Brown, R.E. Parks, A.M. Sleeper, *Phys. Rev. Lett.* 14, 1029 (1965)
- [BRO91] N.B. Brookes, Y. Chang, P.D. Johnson, *Phys. Rev. Lett.* 67, 354 (1991)
- [BRU67] G. Bruhat, *Cours de physique générale, Électricité*, Masson (1967), Chapitre 27.
- [BRU89] P. Bruno, thèse de l'université de Paris XI (1989)
- [BRU92] P. Bruno, C. Chappert, *Phys. Rev. B* 46, 261 (1992)
- [BRU94] P. Bruno, *J. Appl. Phys.* 76, 6972 (1994)
- [BUR74] E. Burstein, A. Harstein, *Polaritons*, Pergamon, New York (1974) (p.89).
- [CAR91] P.F. Carcia, M. Reiley, W.B. Zepper, H.W. van Kerrsteren, *Appl. Phys. Lett.* 58, 191 (1991)
- [CES89] C. Césari, J.P. Faure, G. Nihoul, K. Le Dang, P. Veillet, D. Renard, *J. Magn. Magn. Mat.* 78, 226 (1989)
- [CHA66] R.K. Chang, N. Bloembergen, *Phys. Rev.* 144, 775 (1966)
- [CHE79] C. K. Chen, A. R. B. de Castro, Y. R. Shen, *Optics Lett.* 4, 393 (1979).
- [CHE81A] C.K. Chen, A.R.B. de Castro, Y.R. Shen, *Phys. Rev. Lett.* 46, 145 (1981)
- [CHE81B] C.K. Chen, T.F. Heinz, D. Ricard, Y.R. Shen, *Phys. Rev. Lett.* 46, 1010 (1981)
- [CHE91] Z. Chen, A. Lewis, H. Takei, I. Nebenzahl, *Appl. Opt.* 30, 5188 (1991)

- [CHE99] W.Cheikh-Rouhou, P.Beauvillain, G.Tessier, P.Georges, A.Brun, H.J.Choi, Z.Q.Qiu, Colloque Louis Néel, Dieppe, 3, 4 et 5 Juin 1999.
- [CHI94] J.R.Childress, R.Kergoat, O.Durand, J.M.George, P.Galtier, J.Miltat, A.Schuhl, J. Magn. Magn. Mat. 130, 13 (1994)
- [COR88] P.M. Corkum, F. Brunel, N.K. Sherman, T. Srinivasan-Rao, Phys. Rev. Lett. 61, 2886, (1988)
- [COU87] J.L. Coutaz, *Génération renforcée d'une onde optique à fréquence double sur des réseaux de diffraction en argent par excitation de plasmons de surface*, thèse de doctorat es sciences, INP Grenoble (1987).
- [CRA96] T. M. Crawford, C. T. Rogers, T. J. Silva, Y. K. Kim, Appl. Phys. Lett 68, 1573 (1996).
- [CUL72] B.D. Cullity, *Introduction to magnetic materials*, Addison-Wesley (1972)
- [DEV64] Devoré et Annequin, Cours de physique, Électricité II, Vuibert (1964), Chapitre 14.
- [DUC63] N.Ducuing, N.Bloembergen, Phys.Rev.Lett. 10, 474 (1963)
- [EBE96] H.Ebert, Rep. Prog. Phys. 59, 1665 ,(1996)
- [EES79] G.L.Eesley, J.R.Smith, Solid State Commun. 31, 815 (1979)
- [EES86] G.L. Eesley, Phys. Rev. B 33, 2144 (1986)
- [FAL90] L.Falicov et al., J.Mater. Res. 5, 1299 (1990)
- [FED85] R.Feder (éditeur), Polarized electrons in surface physics, World scientific, Singapour (1985)
- [FER90] J.Ferré, G.Pénissard, C.Marlière, D.Renard, P.Beauvillain, J.P.Renard, Appl. Phys. Lett. 56, 1588 (1990)
- [FER97] S.Ferrer, J.Alvarez, E.Lindgren, X.Torelles, P.Fajardo, F.Boscherini, Phys. Rev. B 56, 9848 (1997)
- [FIE94] M.Fiebig, D.Fröhlich, B.Krichevtsov, R.Pisarev, Phys. rev. lett. 73, 2127 (1994)
- [FIS95] G.L.Fischer, R.W.Boyd, R.J.Gehr, S.A.Jenekhe, J.A.Osaheni, J.E.Sipe, L.A.Weller-Brophy, Phys.Rev.Lett. 74, 10 (1995)
- [FLO94] M.Florscheimer, H.Looser, M.Knupfer, P.Gunter, Thin Solid Films 244, 1001 (1994)
- [FLO97] M.Florscheimer, M.Bosch, C.Brillert, M.Wierschen, H.Fuchs, J. Vac. Sci. Technol. B 15, 1564 (1997)
- [FRA61] P.A. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters, G. Weinreich, Phys. Rev. Lett. 7, 118 (1961)
- [FRE87] A.J. Freeman, C.L. Fu, J. Appl. Phys. 61, 3356 (1987)
- [FRI93] K.A.Friedrich, G.L.Richmond, Chem.Phys.Lett. 213, 491 (1993)
- [FRO98] D.Fröhlich, S.Leute, V.V.Pavlov, R.V.Pisarev, Phys.Rev.Lett. 81, 3239 (1998)
- [FRO99] D.Fröhlich, T.Kiefer, S.Leute, T.Lottermoser, Appl. Phys. B 68, 465 (1999)
- [GAD98] P.Gadanne, F.Brouers, V.M.Shalaev, A.K.Sarychev, J. Opt. Soc. Am. B 15, 68 (1998)
- [GEE94] W. Geerts, T. Katayama, T. Suzuki, Phys. Rev. B 50, 12581 (1994)
- [GIL95] J.F. McGilp, D. Weaire, C.H. Patterson, *Epiptics, linear and nonlinear optical spectroscopy of surfaces and interfaces*, Springer-Verlag, Berlin (1995).
- [GRO93] V.Grolier, D.Renard, B.Bartenlian, P.Beauvillain, C.Chappert, C.Dupas, J.Ferré, M.Galtier, E.Kolb, M.Mulloy, J.P.Renard, P.Veillet, Phys. Rev. Lett. 71, 3023 (1993)
- [GRO96] M.Groot Koerkamp, A.Kirilyuk, W de Jong, T.Rasing, J.Ferré, J.P.Jamet, P.Meyer, R.Mégy, J. Appl. Phys. 79, 5632 (1996)
- [GUY86] P.Guyot-Sionnest, W.Chen, Y.R.Shen, Phys.Rev.B 33, 8254 (1986)
- [GUY88] P.Guyot-Sionnest, Y.R.Shen, Phys.Rev.B 38, 7985 (1988)
- [HAC99] F.Hache, S.K.Andersson, M.-C.Schanne-Klein, C.Flytzanis, Applied Physics B 68, 321 (1999)
- [HAR68] K.J.Harte, Journ. of Appl. Phys. 39, 1503 (1968)

- [HAT97] T.K.Hatwar, Y.S.Tyan, C.F.Brucker, F. Appl. Phys. 81, 3839 (1997)
- [HEI83] T.F. Heinz, H.W.K. Tom, Y.R. Shen, Phys. Rev. A 28, 1883 (1983)
- [HEI85] T.F.Heinz, M.M.T.Loy, W.A.Thompson, Phys.Rev.Lett 54, 63 (1985)
- [HIC88] J.M. Hicks, L.E. Urbach, W. Plummer, H.-L. Dai, Phys. Rev. Lett. 61, 2588 (1988)
- [HIC99] J.M.Hicks, T.Petralli-Mallow, Applied Physics B 68, 589 (1999)
- [HOH98] J.Hohlfeld, U.Conrad, J.G.Müller, S.S.Wellershoff, E.Matthias, dans *Nonlinear optics in metals*, ouvrage collectif édité par K.H. Bennemann, Oxford University Press, Oxford (1998); J.Hohlfeld, *Ultrafast electron-, lattice-, and spin-dynamics in metals*, Verlag für Wissenschaft und Forschung GmbH, Berlin (1998)
- [HON90] S.Honda, H.Tanimoto, T.Kusuda, IEEE Trans.Mag. 26, 2730 (1990)
- [HUA82] S.Huard, Polarisation de la lumière, Dunod ed., Paris (1982)
- [HUB89] W. Hübner, K.H. Bennemann, Phys Rev. B 40, 5973 (1989)
- [HUB90] W. Hübner, Phys. Rev. B 42, 11553 (1990)
- [HUB91] W. Hübner, K.H. Bennemann, Surf. Sci. 242, 299 (1991)
- [HUB95] W. Hübner, K.H. Bennemann, Phys. Rev. B 52, 13411 (1995)
- [HUB97] W.Hübner, K.H.Bennemann, Z.Phys.B 104, 189 (1997)
- [HUB98] W. Hübner, dans *Nonlinear optics in metals*, édité par K.H.Bennemann, Clarendon Press, Oxford (1998)
- [HUB98B] A.Hubert, R.Schäfer, *Magnetic domains*, Springer-Verlag, Berlin (1998)
- [ISH94] H.Ishida, A.Liebsch, Phys.Rev.B 50, 4834 (1994)
- [JAK94] C.Jakobsen, D.Podenas, K.Pedersen, Surf.Sci. 321, 1 (1994)
- [JAN91] S.Jans, D.Bottomley, H.van Driel, R.Timsit, Phys.Rev.Lett. 66, 1201 (1991)
- [JAN93] S.Jans, H.M.van Driel, Int. J. Nonlinear Opt. Phys. 2, 1 (1993)
- [JEA77] M.Fleischmann, P.J.Hendra, A.J.McQuillan, Chem. Phys. Lett. 26,163 (1974)
- [JIA96] A.Jiang, H.N.Yang, G.C.Wang, J. Vac. Sci. Technol. B 14, 3180 (1996)
- [JOH72] P.B. Johnson, R.W. Christy, Phys. Rev. B 6, 4370 (1972); Phys. Rev. B 9, 5056 (1974)
- [JOH74] P.B.Johnson, R.W.Christy, Phys. Rev. B 9, 5056 (1974)
- [JOH92] M.T.Johnson, S.T.Purcell, N.W.E McGee, R.Coehoorn, J.aan de Stegge, W.Hoving, Phys.Rev.Lett. 72, 3112 (1994)
- [KER94] R.Kergoat, *Distributions et mécanismes d'aimantation dans certaines multicouches douces*, thèse de l'université Paris VII (1998)
- [KIE73] S. Kielich, R. Zawodny, Optica Acta, 20, 867 (1973).
- [KIR96] A.Kirilyuk, M.Groot Koerkamp, T.Rasing, R.Mégy, P.Beauvillain, Phys.Rev.Lett. 77, 4608 (1996)
- [KIR96] A.Kirilyuk, T.Rasing, R.Mégy, P.Beauvillain, Phys. Rev. Lett. 77, 4608 (1996)
- [KIR97] A.Kirilyuk, T.Rasing, R.Mégy, P.Beauvillain, J. Appl.Phys. 81, 3919 (1997)
- [KIR97] V.Kirilyuk, A.Kirilyuk, T.Rasing, J. Appl. Phys. 81, 5014 (1997)
- [KIR98] A. Kirilyuk, T. Rasing, M. Haast, J.C. Lodder, Appl. phys. Lett. 72, 2331 (1998)
- [KIR] A. Kirilyuk, Th. Rasing, V. N. Gridnev, V. V. Pavlov, and R. V. Pisarev (sous presse).
- [KIT51] C.Kittel, Phys. Rev. 83, 208 (1951)
- [KOO93] B. Koopmans, A. Anema, H.T. Jonkman, G.A. Sawatzky, F. van der Woude, Phys.Rev. B 48, 2759 (1993)
- [KOO95A] B. Koopmans, M.Groot Koerkamp, T.Rasing, H.v.d.Berg, Phys.Rev.Lett. 74, 3692 (1995)
- [KOO95B] B. Koopmans, A.M.Janner, H.A.Wierenga, T.Rasing, G.A.Sawatzaki, F.v.d.Woude, Appl.Phys. A 60, 103 (1995)
- [KOR85] J.Korecki, U.Gradmann, Phys. Rev.Lett. 55, 2491 (1985)
- [KOS86] V. A. Kosobukin, Sov. Phys. Tech. Phys. 31, 879(1986).
- [KOS96] V. A. Kosobukin, J. Magn. Magn. Mater. 153, 397 (1996).

- [KRE71] E. Kretschmann, Z. Phys. 241, 313 (1971).
- [LAJ67] J. Lajzerowicz, M. Vallade, C.R. Acad. Sc. Paris, 264, 1819 (1967)
- [LON88] Y. Longval-Zhang, *Ondes électromagnétiques de surface: application à l'étude de l'adsorption de polymères à l'interface solide-liquide*, thèse de doctorat en sciences physiques, Université de Paris-Sud (1988).
- [LUC96] T.A.Luce, W.Hübner, K.H. Bennemann, Phys.Rev.Lett. 77, 2810.
- [LUP94] G.Lüpke, D.J.Bottomley, H.M.van Driel, J.Opt.Soc.Am.B 11, 33 (1994)
- [MAA93] M.Maaza, J. Magn. Magn. Mat. 121, 112 (1993)
- [MAL98] C. Malouin, G. Tessier, P. Georges, A. Brun, V.V. Pavlov, P. Meyer, J. Ferré, P. Beauvillain, V. Mathet, Proceedings of SPIE, vol 3733, p22, 1998.
- [MAR76] F. de Martini, Y. R. Shen, Phys. Rev. Lett. 36,216 (1976); F. de Martini, M. Colocci, S. E. Kohn, Y. R. Shen, Phys. Rev. Lett. 38, 1223 (1977).
- [MAR91] C.Marlière, D.Renard, J.P.Chauvineau, Thin Solid Films 201, 317 (1991)
- [MAR93] C.Marlière, mémoire d'habilitation à diriger des recherches, Paris XI (1993)
- [MAR96] M.Maret, M.C.Cadeville, W.Steiger, E.Beaurepaire, R.Poinsot, A.Herr, Thin Solid Films 275, 224 (1996)
- [MAR97] N.Marsot, R.Belkhou, F.Scheurer, B.Bartenlian, N.Barret, M.A.Delaunay, C.Guillot, Surface Sci. 377, 225 (1997)
- [MCG95A] J.F.McGilp, D.Weaire, C.H.Patterson (Eds), *Epioptics, linear and nonlinear spectroscopy of surfaces and interfaces*, Springer-Verlag, Berlin (1995)
- [MCG95B] J.F.McGilp, Prog. Surf. Sci 49, 1 (1995)
- [MCG96] J.F.McGilp, J. Phys. D: Appl. Phys. 29, 1812 (1996)
- [MEG95] R.Mégy, A.Bounouh, Y.Suzuki, P.Beauvillain, P.Bruno, C.Chappert, B.Lecuyer, P.Veillet, Phys. Rev. B 51, 5586 (1995)
- [MEL99] A. Melikyan, H. Minassian, A. Guerra III, W. Wu, Appl. Phys. B 68, 411, (1999)
- [NYE57] J.F. Nye, *Physical properties of crystals* (Oxford University Press, Oxford, 1957).
- [NYV96] M. Nyvlt, *Optical interactions in ultrathin magnetic film structures*, thèse de l'université Charles de Prague (1996)
- [OTT65] A. Otto, Z. Phys. 181, 232 (1965)
- [OUL94] S. Ould-Mahfoud, *Anisotropie magnétique d'interface: étude expérimentale sur des couches ultraminces M/Co/Au(111) (M=Ag, Au, Cu, Pd, Pt)*, Thèse de l'université de Paris XI (1994)
- [PAL85] E.D.Palik, *Handbook of optical constants of solids*, academic press inc. (1985)
- [PAV97] V. V. Pavlov, R. V. Pisarev, A. Kirilyuk, Th. Rasing, Phys. Rev. Lett. 78, 2004 (1997).
- [PAV99] V.V.Pavlov, G.Tessier, C.Malouin, P.Georges, A.Brun, P.Meyer, J.Ferré, P.Beauvillain, Appl. Phys. Lett. 75, 1 (1999)
- [PEN93] G.Pénissard, Thèse de l'université Paris XI (1993)
- [PET88] R. Petit, *Ondes électromagnétiques en radioélectricité et en optique*, Masson, Paris (1988)
- [PET95] A.V.Petukhov, A.Liebsch, Surface Science 331-333, 1335 (1995), et Surface Science 334, 195 (1995)
- [PET96] A.V.Petukhov, Surface Science 347, 143 (1996)
- [PUS93] U. Pustogawa, W. Hübner, K.H. Bennemann, Phys. Rev. B 48, 8607 (1993)
- [PUS94] U. Pustogawa, W. Hübner, K.H. Bennemann, Surf. Sci. 307-309, 1129 (1994)
- [QIU98] Z.Q.Qiu, S.D.Bader, dans l'ouvrage Nonlinear Optics in metals, édité par K.H.Bennemann, Clarendon Press, Oxford (1998)
- [RAS96] T. Rasing, M. Groot Koerkamp, B. Koopmans, H.v.d.Berg, J. Appl. Phys. 79, 6181 (1996)
- [RAS96] T.Rasing, Proceedings of MORIS '96, J. Magn. Soc. Jpn. 20, 13 (1996)

- [RAS98] T.Rasing, dans l'ouvrage collectif *Nonlinear optics in metals*, édité par K.H. Bennemann, Oxford University Press, Oxford (1998)
- [RAS99] T.Rasing, Appl. Phys. B 68, 477 (1999)
- [REA71] J.F. Ready, *Effects of high-power laser radiation*, Academic press, New York, (1971)
- [REI 93] J. Reif, C. Rau, E. Matthias, Phys. Rev. Lett. 71, 1931 (1993).
- [REI91] J. Reif, J. C. Zink, C.-M. Schneider, and J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 67, 2878 (1991).
- [REI99] G.A.Reider, M.Cernusca, M.Hofer, Appl. Phys. B 68, 343 (1999)
- [REN87] D. Renard, G. Nihoul, Phil. Mag. B 55, 75 (1987).
- [RIC88] G.L.Richmond, J.M.Robinson, V.L.Shannon, Prog. Surf. Sci. 28, 1 (1988)
- [RIC99] N. Richard, A.Dereux, T. David, E. Bourillot, J.P. Goudonnet, F. Scheurer, E. Beaurepaire, G. Garreau, Phys. Rev. B 59, 8, 5936 (1999)
- [RUE91] S.Rüegg, G.Schutz, P.Fischer, R.Wienke, W.B.Zepper, H.Ebert, J. Appl. Phys. 73, 1360 (1991)
- [RUP89] Ru-Pin Pan, H.D. Wei et Y.R Shen, Phys. Rev. B 39,1229 (1989)
- [SAF94] V. I. Safarov, V. A. Kosobukin, C. Hermann, G. Lampel, J. Peretti, Phys. Rev. Lett. 73, 3584 (1994).
- [SBI96] R.Sbiaa, *multicouches magnétooptiques de terres rares et de métaux de transition couplées par échange*, thèse de l'université Paris 7, (1996)
- [SCH92] K.A.Schultz, E.G.Seebauer, J. Chem. Phys. 97, 6958 (1992)
- [SCH93] K.A. Schultz, I.I. Suni, E.G. Seebauer, J.Opt.Soc.Am.B, 10 546 (1993)
- [SHA98] V.M. Shalaev, A.K.Sarychev, Phys. Rev. B 57, 13265 (1988)
- [SHE64] Y.R.Shen, Phys.Rev. 133, A51 (1964)
- [SHE84] Y.R. Shen, *The principle of nonlinear optics*, J. Wiley and sons, New York, 1984.
- [SHE86] Y.R. Shen, Annu. Rev. Mater. Sci. 16, 69, (1986)
- [SHE86] Y.R.Shen, dans *Chemistry and Structure at interfaces: new laser and optical techniques*, (p 151) B.Hall et A.B.Eillis Eds., VCH publishers, Deerfield Beach (1986)
- [SHE89] Y.R. Shen, Nature 377, 519 (1989)
- [SIE86] A.E.Siegmann, *Lasers*, University Science Books, Mill Valley (1986)
- [SIM74] H. J. Simon, D. E. Mitchell, and J. G. Watson, Phys. Rev. Lett. 33, 1531 (1974).
- [SIM77] H. J. Simon, R. E. Benner, J. G. Rako, Opt. Commun. 23, 245 (1977).
- [SMI97] L.Smilowitz, Q.X.Xia, X.Yang, D.Q.Li, D.McBranch, S.J.Buelow, J.M.Robinson, J. Appl. Phys. 81, 2051 (1997)
- [SPA94] L.Spanos, E.A. Irene, J. Vac. Sci. Technol. A 12, 2646
- [SPI93a] G. Spierings, V. Koustos, H.A. Wierenga, D. Abraham, Th. Rasing, Surf. Sci. 287, 749 (1993)
- [SPI93b] G. Spierings, V. Koustos, H.A. Wierenga, M.W.J.Prins, D. Abraham, Th. Rasing, J. Magn. Magn. Mat. 121,109 (1993)
- [STO97] R. Stolle, K. J. Veenstra, F. Manders, Th. Rasing, H. v.d. Berg, N. Persat, Phys. Rev. B 55, R4925 (1997).
- [STR95] M. Straub, R. Vollmer, J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 77, p3692, 1995.
- [STR96] M. Straub, R. Vollmer, J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 77, 743 (1996).
- [STU96] B.C.Stuart, M.D.Feit, A.M.Rubenchick, B.W.Shore, M.D.Perry, Phys. Rev. B 53, 1749 (1996)
- [TAN96] H.Tanaka, H.Turokawa, E.Kobayashi, H.Sano, G.Mitzutani, S.Ushioda, Prog. Cryst. Growth Charact. Mater. 33, 129 (1996)
- [TES98] G.Tessier, C.Malouin, P.Georges, A.Brun, V.Pavlov, J.-P.Jamet, P.Meyer, J.Ferré, V.Mathet, P.Beauvillain, *Instrumentation, interdisciplinarité et innovation*, p 285, édité par D.Placko et E.Santander, éditions Hermès, Paris (1998).
- [TES99] G.Tessier, C.Malouin, P.Georges, A.Brun, D.Renard, V.V.Pavlov, P.Meyer, J.Ferré, P.Beauvillain, Appl. Phys.B 68, 545 (1999)

- [TES99] G.Tessier, C.Malouin, P.Georges, A.Brun, V.Pavlov, P.Meyer, J.Ferré, V.Mathet, P.Beauvillain, Technical digest CLEO/ICO, Baltimore, (1999).
- [THI92] A.Thiaville, A.Fert, J. Magn.Magn.Mater. 113, 161 (1992)
- [TOD95] Physics Today, Avril 1995, numéro spécial: magnetoelectronics
- [TOM83] H.W.K.Tom, T.F.Heinz, Y.R.Shen, Phys.Rev.Lett. 51, 1983 (1983)
- [TRA96] C.Train, C.Fermon, C.Chappert, R.Mégy, P.Veillet, P.Beauvillain, J. Magn. Magn. Mat. 156, 87 (1996)
- [TRA97] C. Train, non publié.
- [TRA98] C.Train, *Application de la mesure spectroscopique de l'effet Kerr magnéto-optique à la compréhension des effets magnétiques et magnéto-optiques dans les multicouches métalliques*, Thèse de l'université de Paris XI (1998)
- [VIS93] S.Visnovsky, M.Nyvt, V.Prosser, J.Ferré, G.Pénissard, D.Renard, G.Sczygel, J. Magn. Magn. Mat. 128, 179 (1993)
- [VOL96] R. Vollmer, M. Straub, J. Kirschner, Surf. Sci. 352, 937 (1996)
- [VOL98] R.Vollmer dans *Nonlinear optics in metals*, ouvrage collectif édité par K.H. Bennemann, Oxford University Press, Oxford (1998)
- [WEB96] W.Weber, A.Bischof, R.Allensprach, C.H. Back, J.Fassbendeer, U.May, B.Schirmer, R.M.Jungblut, G.Güntherodt, B.Hillebrands, Phys. Rev. B 44, 4075 (1996)
- [WEI80] D.A.Weitz, T.J.Gramila, A.Z.Genack, J.I.Gersten, Phys. Rev. Lett. 45, 355 (1980)
- [WEL 93] D.Weller, J.Hurst, H.Notarys, H.Brande, R.F.C.Farrow, R.Marks, G.Harp, J.Magn.Soc.Jpn. 17 S1, 72 (1993)
- [WIE94] H.A.Wierenga, M.W.J.Prins, D.L.Abraham, T.Rasing, Phys. Rev. B 50, 1282 (1994)
- [WIE95] H.A. Wierenga, M.W.J. Prins, Th. Rasing, Physica B 204, 281 (1995)
- [WIE95] H.A. Wierenga, Magnetization-induced second harmonic generation on magnetic multilayers, thèse de doctorat de l'Université Catholique de Nijmegen, Pays -Bas (1995)
- [WIE95] H.A. Wierenga, W. de Jong, M.Prins, T.Rasing, R.Vollmer, A. kirilyuk, H.Schwabe, J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 74, 1462 (1995)
- [WOK81] A.Wokaun, J.G.Bergman, J.P.Heritage, A.M.Glass, P.F.Liao, D.H.Olson, Phys. Rev. B 24, 849 (1981)
- [WOL80] E.P. Wolfarth (ed.), *Ferromagnetic materials vol. 1*, North Holland (1980)
- [YEG92] M.S. Yeganeh, J. Qi, J.P. Culver, A.G. Yodh, M.C. Tamargo, Phys. Rev.B 46, 1603, (1992)
- [YOU97] C.-Y.You, S.-C.Shin, S.-Y.Kim, Phys. Rev. B 55, 5953 (1997)
- [ZHO 96] L.Zhong, M.Kim, X. Wang, A.J.Freeman, Phys. Rev. B 53, 9770 (1996)
- [ZHU89] X.D.Zhu, T.Rasing, Y.R.Shen, Phys. Rev.Lett. 61,2883 (1989)

Appendice

**Relations de passage pour une
interface polarisée non linéairement**

Appendice

Relations de passage pour une interface polarisée non linéairement.

Les relations de passage pour une interface polarisée non linéairement ont été déterminées par T.F.Heinz [HEI83] à partir de calculs considérant une couche non linéaire infinitésimale. L'analyse que nous donnons ici est analogue à celle développée par H.A.Wierenga [WIE96] à partir de ces travaux, et restreinte au calcul des sauts de champs utilisés dans ce mémoire.

Pour tous les champs et les polarisations, nous supposons dans cet appendice une dépendance temporelle de la forme: $\mathbf{F}_{2\omega}(\mathbf{r})e^{-2i\omega t}$.

Nous allons ici considérer que l'interface est constituée d'une couche non linéaire d'épaisseur infinitésimale 2δ , centrée sur $z=0$, d'indice $n^i(2\omega)$ et environnée de part et d'autre par le vide. Le déplacement \mathbf{D} est lié au champ électrique et à la polarisation par la relation: $\mathbf{D}=\epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$. \mathbf{P} est ici la polarisation totale de la couche, et peut être écrite $\mathbf{P}=\mathbf{P}_{\text{ind}} + \mathbf{P}_{\text{nl}}$, où \mathbf{P}_{ind} est la polarisation induite et \mathbf{P}_{nl} est la polarisation non linéaire engendrée par le champ fondamental. On peut alors écrire:

$$\mathbf{D}=\epsilon^i(2\omega)\mathbf{E} + \mathbf{P}_{\text{nl}}. \quad (\text{A1})$$

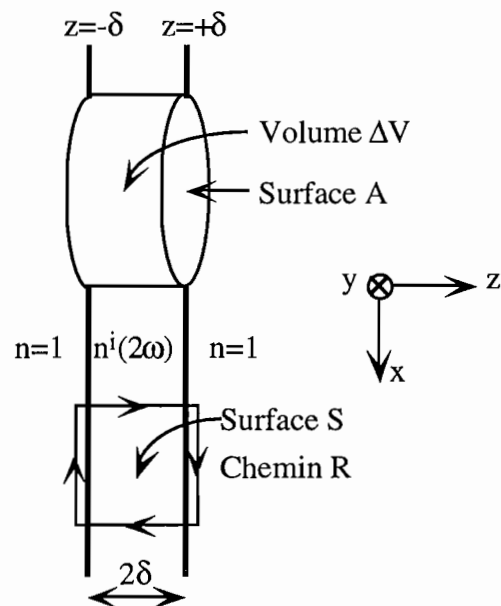


Figure (A.1): Couche non linéaire d'épaisseur infinitésimale, entourée de vide.

Considérons un cylindre découpé dans la couche infinitésimale, dont la base a une surface A , dont le volume vaut $\Delta V=A2\delta$ et dont la surface totale est O (voir figure (A.1)). On peut alors écrire, d'après ce qui précède et en utilisant le théorème de Green-Ostrogradsky [PET88]:

$$\varepsilon^i(2\omega) \int_0 \mathbf{E} \cdot \mathbf{n} d^2 r = - \int_{\Delta V} \nabla \cdot \mathbf{P}_{nl} d^3 r ,$$

où \mathbf{n} est le vecteur unitaire normal à la surface. L'interface nonlinéaire correspond donc à la limite où d tend vers 0. La polarisation totale dans la couche est alors:

$$\text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_{-\delta}^{+\delta} \mathbf{P}_{nl} dz = \mathbf{P}^{(2\omega)} , \quad (\text{A.2})$$

où $\mathbf{P}^{(2\omega)}$ est le moment dipolaire résultant engendré par le champ fondamental par unité de surface dans la couche infinitésimale.

La composante du champ électrique parallèle à l'interface, notée $E_{//}$, étant continue à la traversée d'une interface, ces champs doivent être finis dans la couche non linéaire, et on a:

$$\text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_{-\delta}^{+\delta} \mathbf{E}_{//} dz = 0 . \quad (\text{A.3})$$

Conditions de passage pour \mathbf{E}_x et \mathbf{E}_y

Nous allons à présent calculer les conditions de passage pour les composantes du champ électrique parallèles à l'interface. Considérons tout d'abord (on utilise ici successivement le théorème de Stokes, la loi de Faraday, et le fait que $\mathbf{B}(\mathbf{r},t)=\mathbf{B}(\mathbf{r})e^{-2i\omega t}$):

$$\oint_R \mathbf{E} \cdot d\mathbf{l} = \int_S (\nabla \wedge \mathbf{E}) \cdot \mathbf{n} d^2 r = - \int_S \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \cdot \mathbf{n} d^2 r = i2\omega \int_S B_y dx dz ,$$

où R est un chemin rectangulaire à travers l'interface et dans le plan \mathbf{x}, \mathbf{z} . La partie de ce chemin qui est orientée dans le sens du vecteur \mathbf{z} est située en $x=0$ (voir figure A1). S est la surface dont R est le périmètre, et \mathbf{n} est parallèle à l'axe \mathbf{y} .

Puisque $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$, \mathbf{B} est continu et fini partout dans la couche non linéaire, et on a:

$$\text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_{-\delta}^{+\delta} \mathbf{B} dz = 0 , \quad (\text{A.4})$$

ce qui donne:

$$\text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \oint_R \mathbf{E} \cdot d\mathbf{l} = 0 .$$

En utilisant le fait que $\mathbf{E}_z(L,0,z) = \mathbf{E}_z(0,0,z)e^{ik_x(2\omega)L}$, on peut alors développer l'intégrale précédente et écrire:

$$\int_0^L e^{ik_x(2\omega)x} dx \cdot \text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} [E_x(0,0,+\delta) - E_x(0,0,-\delta)] + (1 - e^{ik_x(2\omega)L}) \cdot \text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_{-\delta}^{+\delta} E_z(0,0,z) dz = 0.$$

En considérant le fait que E_x est continu à la traversée des interfaces en $z=-\delta$ et $z=+\delta$, et en réécrivant le premier terme de l'équation précédente, on obtient:

$$\Delta E_x = ik_x(2\omega) \text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_{-\delta}^{+\delta} E_z(0,0,z) dz. \quad (\text{A.5})$$

La continuité de D_z implique que D_z a une valeur finie, et on a: $\text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_{-\delta}^{+\delta} D_z dz = 0$

En utilisant cette dernière équation ainsi que (A.1) et (A.2), on peut écrire:

$$\varepsilon^i(2\omega) \text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_{-\delta}^{+\delta} E_z dz = -P_z^{(2\omega)} \quad (\text{A.6})$$

On peut à présent utiliser (A.6) pour calculer l'intégrale dans (A.5) et on obtient:

$$\Delta E_x = \frac{-i}{\varepsilon^i(2\omega)} k_x(2\omega) P_z^{(2\omega)},$$

et de la même manière:

$$\Delta E_y = \frac{-i}{\varepsilon^i(2\omega)} k_y(2\omega) P_z^{(2\omega)}.$$

Conditions de passage pour \mathbf{H}_x et \mathbf{H}_y

De manière analogue au calcul précédent, on peut écrire:

$$\oint_R \mathbf{H} \cdot d\mathbf{l} = \int_S (\nabla \wedge \mathbf{H}) \cdot \mathbf{n} d^2 r = \int_S \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \cdot \mathbf{n} dx dz = i2\omega \int_S D_y d^2 r.$$

Ici, on a utilisé le théorème de Stokes, la loi d'Ampère avec $\mathbf{J}=0$, et le fait que $\mathbf{D}(\mathbf{r},t)=\mathbf{D}(\mathbf{r})e^{2i\omega t}$.

En utilisant (A.1) et (A.3), on obtient:

$$\text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \oint_R \mathbf{H} \cdot d\mathbf{l} = -2i\omega \text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_S P_{nl,y} d^2 r$$

En manipulant chacun des termes de cette expression, on obtient:

$$\begin{aligned} & \int_0^L e^{ik_x(2\omega)x} dx \cdot \text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} [H_x(0,0,+\delta) - H_x(0,0,-\delta)] + (1 - e^{ik_x(2\omega)L}) \cdot \text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_{-\delta}^{+\delta} H_z(0,0,z) dz \\ & = -2i\omega \int_0^L e^{ik_x(2\omega)x} dx \text{Lim}_{\delta \rightarrow 0} \int_S P_{nl,y} d^2r \end{aligned}$$

On peut ici supposer $\mathbf{H} \approx \mathbf{B}$ (car $\mu \approx 1$ pour les fréquences optiques, même dans les matériaux magnétiques). On obtient alors, en utilisant (A.2), (A.4), et la continuité de H_x à la traversée des interfaces en $z=-\delta$ et $z=+\delta$:

$$\Delta H_x = -2i\omega P_y^{(2\omega)}$$

et, de manière analogue:

$$\Delta H_y = -2i\omega P_x^{(2\omega)}.$$

**Liste des publications associées à ce
travail de thèse**

Publications dans des revues à comité de lecture international:

(incluant les actes de conférences)

- G. TESSIER, P. BEAUVILLAIN.

Nonlinear optics and magneto-optics in ultrathin metallic films

Publication acceptée. À paraître dans Applied Surface Science.

- G. TESSIER, C. MALOUIN, P. GEORGES, D. RENARD, A. BRUN, V. PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ.

Magnetization-induced second harmonic generation enhanced by surface plasmons in ultrathin Au/Co/Au metallic films.

Applied Physics B 68, 545, 1999.

- V. PAVLOV, G. TESSIER, C. MALOUIN, P. GEORGES, D. RENARD, A. BRUN, P. MEYER, J. FERRÉ, P. BEAUVILLAIN.

Surface plasmons enhancement of magneto-optical second harmonic generation in ultrathin Au/Co/Au films.

Applied Physics Letters, Vol.75, N°2, p1 (1999)

- C. MALOUIN, G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, V. PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ, P. BEAUVILLAIN AND V. MATHET.

Magnetization-induced second harmonic generation in ultrathin Au/Co/Au and Pt/Co/Pt films.

Proceedings of SPIE, ICONO '98, 3733, p 22 (1999).

Communication à des conférences à comité de lecture international:**Avec publication d'actes**

- G. TESSIER, C. MALOUIN, P. GEORGES, A. BRUN, D. RENARD, V. PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ, P. BEAUVILLAIN.

Nonlinear Optics at Interfaces (NOPTI 98), Berlin, Allemagne, 21-24 Septembre 1998.

Magnetization induced second harmonic generation enhanced by surface plasmons in Au/Co/Au ultrathin films. (oral)

- C. MALOUIN, G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, V. PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ, P. BEAUVILLAIN AND V. MATHET.

XVIth International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO'98), Moscou, Russie, 23 Juin-3 Juillet 1998.

Magnetization-induced second harmonic generation in ultrathin Au/Co/Au and Pt/Co/Pt films. (oral)

Sans publication d'actes**1999**

- G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, P. MEYER, J. FERRÉ, P. BEAUVILLAIN, V. MATHET.

ICO 18, 2-6 aout 1999, San Francisco, USA

Magnetization-induced second harmonic generation imaging of buried magnetic interfaces. (poster)

- G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, P. MEYER, J. FERRÉ, P. BEAUVILLAIN, V. MATHET, A. SCHUHL.

International Conference on Lasers and Electro-Optics/CLEO/IQEC 99, Baltimore, USA, Juin 1999.

Imaging of buried magnetic interfaces by magnetization-induced second harmonic generation microscopy. (oral)

1998

- G. TESSIER, C. MALOUIN, P. GEORGES, A. BRUN, V. PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ, V. MATHET, P. BEAUVILLAIN.

CLEO Europe - EQEC, Glasgow, 13-18 Septembre 1998.

Interface sensitivity of magneto optical second harmonic generation from ultrathin cobalt films. (oral)

- G. TESSIER, V.V.PAVLOV, C. MALOUIN, P. GEORGES, A. BRUN, D. RENARD, P. MEYER, J. FERRÉ AND P. BEAUVILLAIN.

International Workshop on Non Linear Magneto-optics. Juin 1998, Noordwijkerhout, Pays-bas.

Magneto-optical second harmonic generation enhanced by surface plasmons in ultrathin Au/Co/Au films. (oral)

- G. TESSIER, C. MALOUIN, V. PAVLOV, P. BEAUVILLAIN, A. BRUN, J. FERRÉ, P. GEORGES, P. MEYER, V. MATHET.

3rd International Symposium on Metallic Multilayers (MML'98), Vancouver, Canada, 14-19 Juin 1998.

Nonlinear Magneto-Optical Kerr effect in Pt/Co/Pt and Au/Co/Au ultrathin multilayers. (poster)

Communication à des conférences à comité de lecture national:**Conférence invitée avec publication d'actes**

G. TESSIER, P. BEAUVILLAIN

Ateliers Surfaces et Interfaces (ASI'99), Porquerolles, 27/9-1/10/99.

Nonlinear optics and magneto-optics in ultrathin metallic films

Avec publication d'actes

- G. TESSIER, C. MALOUIN, P. GEORGES, A. BRUN, J.P. JAMET, P. MEYER, J. FERRÉ, V. MATHET, P. BEAUVILLAIN.

Colloque interdisciplinaire en instrumentation, ENS Cachan, 18-19 Novembre 1998.

Contrôle d'interfaces magnétiques par doublage de fréquence optique. "Instrumentation, interdisciplinarité et innovation", éditions Hermès, p 285 à 292. (oral)

- C. MALOUIN, G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, V. PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ, P. BEAUVILLAIN, R. MÉGY.

5e Colloque sur les lasers et l'optique quantique (Coloq'5), Strasbourg, 8-10 Septembre 1997.

Génération de deuxième harmonique optique appliquée à l'étude d'interfaces magnétiques Au/Co. Annales de Physique, vol.23, Editions EDP Sciences. (poster)

Sans publication d'actes**1999**

- G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, L. BELLIARD, P. MEYER, J. FERRÉ, V. MATHET, P. BEAUVILLAIN, A. SCHUHL.

Colloque Louis Néel, Dieppe (76), 3, 4 et 5 Juin 1999.

Imagerie d'interfaces magnétiques par doublage de fréquence optique. (oral)

- G. TESSIER, C. MALOUIN, P. GEORGES, A. BRUN, D. RENARD, V.V.PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ AND P. BEAUVILLAIN.

Colloque Louis Néel, Dieppe (76), 3, 4 et 5 Juin 1999.

Renforcement de la réponse magnéto-optique non linéaire de Au/Co/Au par plasmons de surface. (poster)

- W. CHEIKH-ROUHO, P. BEAUVILLAIN, G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, H.J. CHOI, Z.Q. QIU.

Colloque Louis Néel, Dieppe (76), 3, 4 et 5 Juin 1999.

Magnéto-optique linéaire et non linéaire au sein de la structure vicinale à angle variable Ag/Fe/Ag (001). (poster)

- G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, L. BELLIARD, P. MEYER, J. FERRÉ, P. BEAUVILLAIN, A. SCHUHL.

Journée de lancement du plan pluri-formation ISARD (Interfaces et Structures Artificielles Réduites en Dimensions), 21 Janvier 1999, Orsay. (poster)

Imagerie magnétique par magnéto-optique non linéaire de couches magnétiques enterrées.

- G. TESSIER, C. MALOUIN, P. GEORGES, A. BRUN, D. RENARD, V.V.PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ AND P. BEAUVILLAIN.

Journée de lancement du plan pluri-formation ISARD21 Janvier 1999, Orsay.

Sélectivité et renforcement par plasmons de surface de la contribution d'interfaces enterrées en magnéto-optique non-linéaire. (poster)

1998

- G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, . FERRÉ, P. BEAUVILLAIN.

4e conférence du GDR Matériaux pour l'Optique Non Linéaire, Marly-le-Roi, 28-30 Octobre 1998.

Vers l'imagerie d'interfaces enterrées dans des films minces magnétiques par doublage de fréquence. (oral)

- G. TESSIER, C. MALOUIN, P. GEORGES, A. BRUN, P. MEYER, J. FERRÉ, V. MATHET, P. BEAUVILLAIN.

3e rencontre du pôle Île de France du réseau doctoral nanotechnologies, Orsay, 27/4/98.

Caractérisation d'interfaces magnétiques par doublage de fréquence optique. (oral)

- G. Tessier.

Colloque jeunes chercheurs Alain Bouyssy, Orsay; 23-24 Mars 1998.

Caractérisation d'interfaces par doublage de fréquence en régime femtoseconde. (poster)

1997

- C. MALOUIN, G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, V. PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ , P. BEAUVILLAIN, ET R. MÉGY.

Congrès de la SFP, Colloque 13: nanophysique sur les surfaces, Paris, Juillet 1997. *Étude d'interfaces magnétiques par génération de deuxième harmonique optique.* (poster)

- C. MALOUIN, G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, V. PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ , P. BEAUVILLAIN, ET R. MÉGY.

3ème Journées des Phénomènes Ultrarapides, Bombannes 26-27 Juin 1997.

Etude d'interfaces magnétiques Au/Co par génération de deuxième harmonique optique à l'aide de lasers femtosecondes. (poster)

- C. MALOUIN, G. TESSIER, P. GEORGES, A. BRUN, V. PAVLOV, P. MEYER, J. FERRÉ, P. BEAUVILLAIN, R. MÉGY.

Colloque Louis Néel, Banyuls sur mer, 5-7 Juin 1997.

Étude de films magnétiques Au/Co par génération de deuxième harmonique: effets des interfaces. (poster)

Séminaires

1999

- G. TESSIER.

Séminaire de l'Institut d'Electronique Fondamentale, 16 Février 1999.

Magnéto-optique non linéaire: un outil pour l'étude d'interfaces magnétiques enterrées

1998

- G. TESSIER.

Présentation des travaux des doctorants de l'Institut d'Optique, Février 1998.

Caractérisation d'interfaces magnétique par doublage de fréquence optique.

1997

- C. MALOUIN, G. TESSIER.

Séminaire de l'Institut d'Optique, 10 Décembre 1997.

Acquisition de données et modélisation numérique à l'aide du logiciel de programmation LabVIEW

Magnetic interfaces characterization by magnetization-induced second harmonic generation

The nonlinear optical Second Harmonic Generation (SHG) process is forbidden in the bulk of amorphous or centrosymmetric materials, but is possible at the interfaces of any medium. Moreover, a magnetization-induced contribution to SHG appears in the presence of magnetic media, delivering informations about interface magnetization.

We have developed a system sensitive to SHG yields as low as 10^{-18} W to selectively characterize the structure and magnetism of buried interfaces in ultrathin metallic films (a few atomic planes).

On simple gold surfaces, we have observed a clear correlation between the SHG yield and the roughness measured by atomic force microscopy.

In Au/Co/Au trilayers, the measured bulk (probed by magneto-optical Kerr effect) and interface magnetic properties are the same, as theoretically predicted. In these systems, surface plasmons can also increase the surface electric field, resulting in an enhancement of the SHG yield, which we have modelized.

In Pt/Co/Pt trilayer systems, we have measured clear differences between the bulk and interface properties of the buried cobalt layer due to the presence of alloys at the interfaces. To explain these results, an imaging system has been developed. We have obtained images of magnetic domains at interfaces with a lateral resolution of the order of one micrometer.

Finally, we studied a $\text{SiO}_2/\text{FeSi}/\text{DyFeCo}$ trilayer, which is closely related to magneto-optical recording media. In this system, we have measured differences between the magnetic properties at each interface of the same buried FeSi layer.

Keywords:

Nonlinear optics, second harmonic generation, magneto-optics, interfaces, surface plasmons