

Magnéto-élasticité et magnéto-acoustique dans le semi-conducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As

Meriam Kraimia

▶ To cite this version:

Meriam Kraimia. Magnéto-élasticité et magnéto-acoustique dans le semi-conducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Sorbonne Université; Faculté des sciences de Bizerte (Tunisie), 2020. Français. NNT: 2020SORUS339. tel-03369755

HAL Id: tel-03369755 https://theses.hal.science/tel-03369755

Submitted on 7 Oct 2021

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.









Université de Carthage Sorbonne Université

École doctorale de la Faculté des Sciences de Bizerte

École doctorale 397 : Physique et Chimie des Matériaux

Laboratoire de Physique des Matériaux : Structure et Propriétés

Institut des NanoSciences de Paris

Thèse de DOCTORAT

Spécialité Physique

présentée par

Meriam Kraimia

Sujet de la thèse

soutenue le 18/09/2020

Devant le jury composé de :

Mme Zoubeida Dhaouadi	Faculté des Sciences de Bizerte	Présidente du jury
M Lauront Bolliard	INSP. Sorbonno Universitá	Co Président
M. Laurent Demard		D
Mme Wissem Cheikhrouhou	Centre de Recherche en Numerique de Sfax	Rapporteur
M. Thierry Amand	INSA, Toulouse	Rapporteur
M. Kaïs Boujdaria	Faculté des Sciences de Bizerte	Directeur de thèse
Mme Catherine Gourdon	INSP, Sorbonne Université	Directrice de thèse
Mme Laura Thevenard	INSP, Sorbonne Université	Invitée

A la mémoire de mon père

Remerciements

A la fin de la rédaction de ce manuscrit, je suis convaincue que la thèse est loin d'être un travail solitaire. En effet, je n'aurais jamais pu réaliser ce travail sans le soutien d'un grand nombre de personnes.

Tout d'abord, je tiens à remercier les différents membres du jury qui ont accepté d'évaluer mon travail. Mes plus vifs remerciements vont à Madame Zoubeida Dhaouadi et Monsieur Laurent Belliard en acceptant de présider le jury de cette thèse. J'exprime aussi ma plus vive reconnaissance à Madame Wissem Cheikhrouhou et Monsieur Thierry Amand d'avoir rapporté ma thèse.

Avoir la possibilité de faire une thèse en co-tutelle, m'a offert la chance d'effectuer des séjours alternés entre le Laboratoire de Physique des Matériaux : Structure et Propriétés et l'Institut des NanoSciences de Paris (4 mois /an).

Je tiens à remercier mon directeur de thèse Monsieur Kaïs Boujdaria pour m'avoir accueilli dans votre équipe et qu'il trouve dans ces quelques lignes toute ma gratitude et ma reconnaissance.

Je tiens à remercier ma directrice de thèse Madame Catherine Gourdon. Sa gentillesse, sa disponibilité permanente et sa patience tout au long de la thèse m'ont profondément touchée. Je vous suis très reconnaissante envers la qualité de vos encadrements dont j'ai eu la chance de bénéficier.

J'aimerai remercier chaleureusement aussi Madame Laura Thevenard. Je lui suis reconnaissante de m'avoir fait bénéficier tout au long de ce travail de sa grande compétence, de sa rigueur intellectuelle, de son dynamisme, certaine que je n'oublierai jamais. Soyez assurée de mon attachement et de ma profonde gratitude.

Pour terminer la partie du travail, je remercie l'ensemble des personnes que j'ai côtoyées quotidiennement, parfois beaucoup sollicitées et qui m'ont fait bénéficier de leurs compétences scientifiques et techniques. Un grand merci pour leur aide, leur gentillesse et leur amitié.

Cette thèse n'aurait pu voir le jour sans les efforts et les sacrifices personnels et économiques de toute ma famille, l'aide de mes amis et collègues. Mes remerciements vont à mes collègues (de l'INSP et de la FSB) pour leurs encouragements, pour toute l'aide qu'ils m'ont apportée et pour l'ambiance agréable tout au long de ce stage. Je n'oublierai pas à remercier Piotr (Doctorant à INSP) pour son aide très précieuse à continuer son travail. Un remerciement spécial à mon amie Rim, ta présence m'a beaucoup aidé à dépasser tous les moments difficiles et tout le stress du travail.

Un grand merci à ma maman sans qui je n'en serais pas là aujourd'hui, merci pour ton amour et ton soutien inconditionnel. Mes frères Mahdi et Malek, merci de me supporter et d'être à mes côtés. Je remercie aussi chaleureusement l'amour de ma vie, mon mari Murat, pour la grande patience, l'encouragement, la confiance le soutien moral et surtout de supporter mes mauvaises humeurs.

Enfin, ma liste n'est pas exhaustive, j'oublie certainement des personnes. Je tiens seulement à ce qu'elles sachent que si leur nom n'est pas cité sur le papier, il est présent dans mes souvenirs. S'ils me lisent, je leur passe le salut et j'attends avec impatience le moment de les revoir!!!

Avant-propos

Ce travail s'inscrit dans le cadre d'une convention de co-tutelle entre la Faculté des Sciences de Bizerte (Tunisie) et Sorbonne Université (France).

Cette thèse a été établie dans le cadre du Projet Partenariat Hubert Curien Utique 2016 N°16G1303 financé par le Ministère des Affaires étrangères et géré par Campus France (N°34914PL) et l'Institut des Nanosciences de Paris sur un financement obtenu du LABEX Matisse.

Résumé

Ce travail de thèse est consacré à l'étude de la dynamique d'aimantation excitée par des ondes acoustiques dans des couches de (Ga,Mn)As. Dans la première partie, nous présentons une étude à la fois expérimentale et théorique sur l'origine de la forte anisotropie magnétique uniaxiale dans le plan de la couche (Ga, Mn)As inattendue pour la structure cristalline cubique. En supposant que cette anisotropie est d'une origine magnéto-élastique, nous avons obtenu en développant un modèle théorique (\mathbf{k},\mathbf{p}) une dépendance linéaire entre les constantes d'anisotropie magnétique et la déformation de cisaillement. À la recherche d'une déformation de cisaillement réelle résultant de la relaxation du réseau, nous effectuons une diffraction des rayons X anomale. Travaillant sur une couche fortement anisotrope de (Ga, Mn)As, la valeur estimée de $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$ n'a pas été trouvée bien qu'elle soit d'un ordre de grandeur au-dessus du seuil de détection. Ces résultats indiquent que l'anisotropie magnéto-cristalline planaire ne peut être décrite que par une déformation effective comme prédit pour une distribution non isotrope des dimères de Mn. Dans la deuxième partie, nous étudions le couplage magnéto-élastique résonant dans une couche de (Ga,Mn)As. La détection temporelle et spatiale de la dynamique magnéto-acoustique a mis en évidence la présence des signatures d'une non-linéarité provenant uniquement de l'onde acoustique du surface comme le doublement de fréquence et de vecteur d'onde, l'évolution quadratique de l'amplitude de précession à $2f_{SAW}$. Un modèle d'oscillateur paramétrique obtenu en linéarisant l'équation de Landau-Lifschitz-Gilbert (LLG) est utilisé pour mieux comprendre les conditions menant à la non-linéarité.

Abstract

This thesis is devoted to the study of the magnetization dynamics excited by acoustic waves in layers of (Ga, Mn) As. In the first part, we present an experimental and theoretical study on the origin of the strong in-plane uniaxial magnetic anisotropy in (Ga,Mn)As layers, unexpected from the cubic crystalline structure. Assuming that this anisotropy has a magnetoelastic origin, we obtained by developing a **k.p** band model a linear dependence between the constant of magnetic anisotropy and the shear srain. Searching for a real shear strain arising from lattice relaxation, we perform anomalous x-ray diffraction. Working on a strongly anisotropic (Ga,Mn)As layer, the estimated $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$ was not found although it lied an order of magnitude above the detection threshold. This ensemble of results indicate that the magneto-crystalline anisotropy planar can be described by an effective deformation as predicted by a non-isotropic distribution of the dimers of Mn. In the second part, we study the resonant magneto-elastic coupling in a layer of (Ga,Mn)As. Temporal and spatial detection of the magneto-acoustic dynamics has highlighted the presence of a non-linearity that arises solely from the surface acoustic wave (SAW) such as frequency and wave-vector doubling in time and space, the quadratic evolution of the precession amplitude at $2f_{SAW}$. A parametric oscillator model obtained by linearization of the Landau-Lifschitz-Gilbert (LLG) equation was adopted to understand the conditions leading to these non-linearities.

Acronymes et constantes physiques

LLG : Landau-Lifschitz-Gilbert (LLG).

 $\mathbf{H}_{sd}, \mathbf{H}_{pd}$: Hamiltonien échange sd et pd.

 $\alpha_{\rm sd}, \beta_{\rm pd}$: intégrales d'échanges.

 $\mathbf{N_0}$: concentration volumique du Ga (N_0 = 2.2 10^{22} \ \mathrm{cm^{-3}}).

 $\mathbf{M}_{\mathbf{s}}$: aimantation à saturation.

 $\mathbf{T_c}$: température de Curie.

 $\mathbf{A}_{\mathbf{F}}$: la constante du liquide de Fermi.

 $\mathbf{B}_{\mathbf{g}}$: paramètre du splitting d'échange $(\mathbf{B}_{\mathbf{g}} = \frac{A_F \beta M_s}{6g_{Mn} \mu_B})$.

g_{Mn} : facteur de Landé.

 ℓm : désaccord de maille relatif ($\ell m = \frac{a_{\perp} - a_{\parallel}}{a_{\parallel}}$).

DMS : Semi conducteur Magnétique Dilué.

SB : structure de bande.

FMR : résonance ferromagnétique.

VSM : magnétomètre à échantillon vibrant (vibrating Sample Magnetometer).

SQUID : abréviation anglaise de Superconducting QUantum Interference Device.

 \mathbf{K}_{i} : constante d'anisotropie magnéto-cristalline.

 \mathbf{B}_i : coefficient du couplage magnéto-élastique.

DRX : diffraction de rayons X.

k, h, l: indices de Miller.

DRXA : diffraction de rayons X anomale.

XPAD : abréviation anglaise de X-ray Pixel Area Detector.

SAW : abréviation anglaise de Surface Acoustic Wave.

SAW – **FMR** : résonance ferromagnétique induite par l'onde acoustique.

IdT : Transducteur Inter-digité.

 λ_i : constante de magnétostriction.

 θ_0, φ_0 : Angles d'équilibre polaire et azimutal de l'aimantation.

 $\theta_{\mathbf{H}}, \varphi_{\mathbf{H}}$: Angles d'équilibre polaire et azimutal du champ magnétique.

 $\delta\theta$: composante dynamique hors-plan de l'aimantation.

 $\delta \varphi$: composante dynamique hors-plan de l'aimantation.

 β : angle de de polarisation de sonde.

 $\mathbf{f_{prec}}$: fréquence de précession de l'aimantation.

 $\mathbf{f_{SAW}}$: fréquence de la SAW.

 $\lambda_{\mathbf{SAW}}$: longueur d'onde fondamentale de SAW.

 $\mathbf{H_{RF}}$: champ effect if généré par la SAW.

Table des matières

In	ntroduction 1			
1	Prés	sentatio	on du semi-conducteur magnétique dilué (Ga,Mn)As	17
	1.1	Struct	ure cristallographique et croissance	18
	1.2	Origin	e du ferromagnétisme	19
	1.3	Hamil	tonien du système et structure de bande	21
	1.4	Propr	iétés magnétiques	27
		1.4.1	Anisotropie magnétique	27
		1.4.2	Expression phénoménologique de l'anisotropie magnétique	28
		1.4.3	Température de Curie	29
	1.5	Carac	térisation des propriétés magnétiques	30
		1.5.1	Mesure d'anisotropie magnétique : résonance ferromagnétique (FMR)	31
		1.5.2	Mesure de l'aimantation et la température de Curie : Magnétomètre à	
			échantillon vibrant (VSM)	33
	1.6	Effets	magnéto-optiques	34
	1.7	Dynar	nique de l'aimantation	38
		1.7.1	Équation de Landau-Lifshitz-Gilbert	38
		1.7.2	Position d'équilibre de l'aimantation	39
		1.7.3	Fréquence de précession	39
2	Anis	sotropie	e magnétique uniaxiale et déformation	42
	2.1	La ma	gnéto-striction	43
	2.2	Aniso	tropie magnéto-élastique	44
		2.2.1	Énergie magnéto-élastique et énergie élastique	44
		2.2.2	Relation entre l'énergie magnéto-cristalline et l'énergie magnéto-élastique $% \mathcal{C}_{\mathcal{C}}$	45
	2.3	L'anis	$otropie\ uniaxiale\ planaire\ dans\ (Ga, Mn) As: une\ origine\ magnéto-élastique\ ?$	
		État d	le l'art	47
	2.4	Cadre	théorique et modélisation	50
		2.4.1	Description microscopique	51
		2.4.2	Principe du calcul	51
		2.4.3	Vérification de la forme d'énergie utilisée	54
	2.5	Aniso	tropie magnétique en fonction de la densité de porteurs	55
		2.5.1	Anisotropie uniaxiale perpendiculaire	56
		2.5.2	Anisotropie cubique	57

	2.6	Anisot	ropie magnétique et déformation	59
		2.6.1	Déformation épitaxiale	59
			2.6.1.1 Modèle à 4 bandes \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	60
			2.6.1.2 Modèle à 6 bandes en approximation sphérique	61
		2.6.2	Déformation de cisaillement	64
	2.7	Détect	ion expérimentale du cisaillement	66
		2.7.1	Contexte d'étude et motivation	66
		2.7.2	Stratégie de mesure	67
		2.7.3	Configuration expérimentale	69
		2.7.4	Diffraction anomale	70
		2.7.5	Détection de déformation de cisaillement	72
3	Mag	gnéto-a	coustique	76
	3.1	Généra	ation et détection des ondes acoustiques de surface	79
	3.2	Détect	tion de la résonance ferromagnétique induite par l'onde acoustique (SAW-	
		FMR)		81
		3.2.1	La résonance ferromagnétique induite par l'onde acoustique (SAW-FMR)	81
		3.2.2	Dépendance de la SAW-FMR avec la température	82
		3.2.3	Dépendance de la SAW-FMR avec la puissance	83
	3.3	Détect	ion du signal magnéto-acoustique	84
		3.3.1	Dispositif expérimental et méthode de détection	84
		3.3.2	Dynamique temporelle de la rotation de polarisation	86
		3.3.3	Dynamique spatiale du signal magnéto-acoustique	88
		3.3.4	Doublement de la fréquence	88
		3.3.5	Importance de la focalisation du faisceau	89
	3.4	Etude	des effets non-linéaires	90
		3.4.1	Dépendance en champ magnétique	90
			3.4.1.1 Méthodologie de mesure	90
			3.4.1.2 Discussion des résultats	91
		3.4.2	Dépendance en température	92
		3.4.3	Interprétation qualitative	93
		3.4.4	Dépendance avec l'amplitude de l'onde acoustique	94
			3.4.4.1 Méthodologie de mesure	94
			3.4.4.2 Discussion des résultats	95
	3.5	Modél	isation des effets non linéaires	97
		3.5.1	Equations linéarisées couplées	97
		3.5.2	Fréquence et amortissement	99
		3.5.3	Amplitudes d'oscillation à f_{SAW} et $2f_{SAW}$	102
Сс	onclu	sion géi	nerale	107
Ar	nexe	9		110

Bibliographie	114
Bibliographie	114
Publications issues de la thèse	124

Introduction

Introduction

En électronique classique, le traitement de l'information est assuré par la charge électrique. Les données peuvent être enregistrées sous une forme binaire où la valeur 1 correspond à la présence d'une charge et 0 à son absence. Cependant, les enjeux de la miniaturisation et de la consommation d'énergie (pertes par effet Joule dans les interconnexions) poussent cette approche à ses limites. L'électronique de spin dite aussi 'spintronique', peut alors remplacer les dispositifs électroniques par des composants basés sur le spin des électrons. Cette thématique ne cesse pas d'évoluer depuis la découverte de la magnéto-résistance géante (GMR) en 1988 dans des multicouches constituées d'alternance de couches de Fer et de Chrome [1, 2]. Il s'agit d'une forte augmentation de la résistance électrique de certaines structures magnétiques multicouches lorsqu'elles sont soumises à un faible champ magnétique. La première application industrielle de composants spintroniques était en 1998, en introduisant des capteurs ultrasensibles aux champs magnétiques à structures artificielles appelées vannes de spins, dans les têtes de lecture des disques durs d'ordinateurs [3]. En quelques années seulement, la totalité de la production mondiale des têtes de lecture/écriture pour disques dur est constituée de têtes magnétorésistives, soit un marché annuel de \sim 5 milliards de dollar. Aujourd'hui, la technologie GMR est progressivement remplacée par la technologie magnétorésistance tunnel à température ambiante qui présente des amplitudes de magnétorésistance très supérieures à celles observées avec la magnétorésistance géante classique. L'effet de magnétorésistance géante est utilisé aussi dans des mémoires non volatiles à accès aléatoire appelées, MRAM (Magnetic Random Access Memories) où l'information est stockée sous la forme d'une direction d'aimantation dans la jonction tunnel magnétique.

Une autre approche propose d'utiliser les excitations élémentaires de l'aimantation, comme vecteur d'information, au lieu d'utiliser l'aimantation macroscopique et statique comme dans les disques durs ou mémoires magnétiques à accès aléatoire. L'interaction entre les spins voisins engendre une perturbation qui peut se propager sous la forme d'une onde, dite onde de spin ou magnon. Cette thématique, qui s'intéresse à la manipulation des ondes de spin, la magnonique [4], a ouvert une ère nouvelle en électronique où l'information serait codée sur l'amplitude des ondes, la figure 0.1) illustrant un des composants proposés. Les magnons permettraient également de miniaturiser des dispositifs fonctionnant dans la gamme du GHz, du fait de leurs petites longueurs d'onde (de l'ordre de quelques nm). Par analogie avec les ondes sonores ou lumineuses, les magnons possèdent la plupart des propriétés inhérentes aux ondes d'autres origines [5]. Ces ondes de spin peuvent être générées et manipulées par le biais d'un champ magnétique [6], par un courant polarisé en spin [7] ou en appliquant des impulsions optiques [8, 9]. Un autre phénomène peut être exploité pour la manipulation des magnons est la magnétostriction, c'està-dire le couplage entre propriétés magnétiques et déformations qui ouvre la voie à des dispositifs de stockage de faible puissance [10]. En particulier, l'application d'une contrainte statique agit sur l'anisotropie magnétique [11] tandis que la contrainte dynamique (ondes acoustiques ou de déformation) exerce un couple sur l'aimantation induisant sa précession avec une amplitude maximale lorsque la fréquence et le vecteur d'onde de l'onde de spin correspondent respectivement à la fréquence et au vecteur d'onde de l'onde acoustique. Cette interaction magnons-phonon a été étudiée expérimentalement sur différents matériaux magnétiques comme le Nickel [12] ou le FeGa [13], et aussi sur des semi-conducteurs magnétiques [14, 15, 16].



FIGURE 0.1 – Porte logique XNOR à ondes de spin. Le panneau en bas présente les signaux d'onde de spin de sortie mesurés pour différentes combinaisons de l'entrée de courant [5]. Les magnons représentent un quanta d'excitation des ondes de spins

Depuis 2010, l'équipe de l'INSP s'était intéressé à l'étude de la dynamique d'aimantation excitée par des ondes acoustiques dans des couches de (Ga,Mn)As. Le choix du ce matériau s'explique par la possibilité de contrôler ses propriétés magnétiques (température de Curie, anisotropie magnétique, aimantation à saturation). La première approche était de déclencher la précession de l'aimantation par des déformations impulsionnelles picoseconde [17]. Cependant, ce mécanisme reste inefficace car le spectre de fréquence de ces impulsions acoustiques est centré autour de fréquences élevées typiquement de l'ordre 20-30 GHz [17], bien au-dessus des fréquences de précession de l'aimantation habituelles (0.5-10 GHz). D'où l'idée d'exploiter les ondes acoustiques de surface, ondes évanescentes se propageant à la surface de la couche, dont on peut ajuster facilement le spectre de fréquence dans la gamme de fréquence des ondes de spin [14]. Lorsque la précession déclenchée par l'onde acoustique est de très grande amplitude, résultant d'effets non-linéaires, nous attendons un renversement de l'aimantation. Ceci a été effectivement observé pour des échantillons de (Ga,Mn)As ayant une aimantation planaire [18] ou perpendiculaire [15]. Ces résultats ont été obtenus par imagerie magnéto-optique statique (avant/après le passage de l'onde acoustique). Il manquait une étude résolue temporellement et spatialement des effets non linéaires de l'interaction d'une onde acoustique avec l'aimantation, ce qui a motivé les travaux de cette thèse.

Dans la configuration adoptée dans ce travail, le couplage d'une onde acoustique de surface à l'aimantation dans une couche de (Ga,Mn)As fortement aimantée dans le plan dépend d'un coefficient de magnétostriction (B₂). Dans un semi-conducteur comme (Ga,Mn)As les propriétés magnétiques dépendent de la structure de bande du matériau. La modélisation par la théorie \mathbf{k} . \mathbf{p} de cette structure de bande rend compte du coefficient magnéto-élastique B₂ par une contrainte de cisaillement. Au delà des aspects phénoménologiques magnétoacoustiques, dans la première partie de la thèse nous nous somme intéressés aux origines microscopiques de ce couplage autrement dit à déterminer l'origine physique de l'anisotropie uniaxiale planaire qui est reliée au coefficient B₂.

Ce manuscrit est organisé comme suit :

Le chapitre 1 est consacré à la présentation du semi-conducteur dilué (Ga,Mn)As. Tout d'abord nous rappellerons la structure cristallographique et électronique, l'origine du ferromagnétisme et l'anisotropie magnétique de ce matériau. Ensuite, nous introduisons le Hamiltonien du système qui permettra d'établir le lien entre la déformation et l'anisotropie planaire. Nous présenterons aussi un aperçu sur les effets magnéto-optiques qui seront utilisés dans le chapitre 3 dans l'étude de la magnéto-acoustique résolue temporellement et spatialement. Dans la seconde partie, nous aborderons quelques notions de la dynamique de l'aimantation nécessaires aussi pour traiter l'interaction magnéto-acoustique dans le chapitre 3. Finalement, nous calculerons les fréquences de précession tout en exploitant les constantes d'anisotropie tirées de la technique de la Résonance Ferromagnétique (FMR).

Dans le chapitre 2, la magnéto-striction ou couplage entre l'aimantation et les contraintes (ou les déformations) sera un concept essentiel. Nous aborderons d'abord les aspects statiques. Nous établirons théoriquement aussi le lien entre les anisotropies magnéto-cristallines uniaxiales et les déformations, via les constantes magnéto-élastiques. Nous nous intéresserons ensuite plus particulièrement à l'anisotropie uniaxaiale planaire. Nous décrirons aussi les expériences de diffraction de rayons-X et leurs résultats pour expliquer l'origine de l'anisotropie uniaxiale.

Dans le chapitre 3 nous nous intéresserons aux aspects dynamiques de la magnéto-striction : nous allons d'abord introduire les ondes acoustiques de surface. Nous décrirons ensuite les expériences de résonance ferromagnétique induite par une onde acoustique de surface montrant l'interaction de l'onde avec la couche magnétique. Nous détaillerons les expériences de détection temporelle et spatiale de la dynamique magnéto-acoustique qui nous ont permis d'obtenir à la fois la dynamique de l'aimantation et le signal de l'onde acoustique. Nous nous concentrerons ensuite sur les résultats importants et originaux de cette thèse concernant les effets magnéto-acoustiques non-linéaires et leur interprétation dans le cadre d'un modèle d'oscillateur paramétrique.

1 Présentation du semi-conducteur magnétique dilué (Ga,Mn)As

Sommaire

1.1		Structure cristallographique et croissance
1.2		Origine du ferromagnétisme
1.3		Hamiltonien du système et structure de bande
1.4		Propriétés magnétiques
	1.4.1	Anisotropie magnétique
	1.4.2	Expression phénoménologique de l'anisotropie magnétique
	1.4.3	Température de Curie
1.5		Caractérisation des propriétés magnétiques
	1.5.1	Mesure d'anisotropie magnétique : résonance ferromagnétique (FMR)
	1.5.2	Mesure de l'aimantation et la température de Curie : Magnétomètre à échantillon vibrant
1.6		Effets magnéto-optiques
1.7		Dynamique de l'aimantation
	1.7.1	Équation de Landau-Lifshitz-Gilbert
	1.7.2	Position d'équilibre de l'aimantation
	1.7.3	Fréquence de précession

Les semi-conducteurs magnétiques dilués (DMS) sont des alliages de semi-conducteurs et d'ions magnétiques (métaux de transition ou terres rares) qui présentent, à basse température, de nombreux effets coopératifs via des interactions d'échange de spin. Ils sont des composés d'un réseau hôte semi-conducteur (SC) dans lequel est réalisé un dopage avec des ions portant un moment magnétique tel que les métaux de transition (Mn, Co, Cr...). Ce dopage substitutionnel est très faible et très souvent à base de Manganèse (Mn) ou de Cobalt car ces ions possèdent un spin total élevé. La combinaison des propriétés électroniques et magnétiques dans le même matériau a ouvert des nouvelles perspectives pour le traitement et le stockage de l'information. Les premiers DMS fabriqués sont à base des SCs de type II-VI (ZnS, CdTe, HgTe...) [19, 20, 21]. Cependant, dans ces composés la température de Curie (T_c) (température au dessus de laquelle le matériau perd son aimantation) demeure faible (inférieur à ou de l'ordre 10 K). Au début des années 90 du siècle dernier, une nouvelle étape a été franchie par le groupe de H. Ohno avec la mise en évidence de l'existence d'une phase ferromagnétique dans les alliages de type III-V (InAs, GaAs) [22, 23]. Ces composés se sont avérés intéressants vu leurs températures de Curie élevées par rapport aux DMS de type II-VI. En effet, dans le (Ga,Mn)As nous pouvons atteindre

une température de Curie de l'ordre de 200 K [24]. Les prédictions théoriques promettant la possibilité d'une T_c pouvant atteindre la température ambiante [25] n'ayant pas été vérifiées expérimentalement, ce matériau a perdu de son attrait pour des applications industrielles. Cependant, il reste le SC ferromagnétique le plus étudié, étant un composé idéal pour aborder de nouvelles approches grâce à la facilité de la modulation de ses propriétés magnétiques. Dans ce chapitre, nous donnerons un aperçu général sur le semi-conducteur magnétique (Ga,Mn)As où nous discuterons l'origine du ferromagnétisme et les propriétés magnétiques. Nous introduirons aussi le Hamiltonien du système utilisé pour déterminer la relation entre la constante d'anisotropie planaire et la déformation.

1.1 Structure cristallographique et croissance

La structure cristallographique des composés (Ga,Mn)As est identique à celle de GaAs. Quelques pourcents des ions gallium (Ga) ont été substitués aléatoirement par des atomes de manganèse (Mn_{Ga}) (voir la figure 1.1), un dopant électrique et magnétique. C'est une structure de type Blende de Zinc, c'est à dire un cristal cubique à face centrée (CFC) constitué de deux sousréseaux l'un d'arsenic (As), l'autre de gallium, imbriqués l'un dans l'autre et décalés d'un vecteur $a_0(\frac{1}{4},\frac{1}{4},\frac{1}{4}), a_0$ étant le paramètre de maille de GaAs. Dans ce dernier, les atomes As et Ga occupent entièrement les deux sous-réseaux CFC, alors que dans le (Ga,Mn)As, les atomes de Mn peuvent occuper préférentiellement les sites du Ga plutôt que ceux de l'As du fait que le Mn a une structure électronique ([Ar] 3d⁵4s²) plus proche du Ga ([Ar] 3d¹⁰4s²4p¹) que de l'As ([Ar] $3d^{10}4s^24p^3$). En effet, le Mn se comporte comme un accepteur noté (A) avec deux configurations électroniques différentes : une neutre, A^0 , ayant pour structure d⁴ ou (d^5+h) , l'autre ionisée, A^- , avec d⁵ comme configuration. Dans notre notation, d désigne l'orbitale considérée et h le porteur de charges, en l'occurrence le trou. Des mesures de Résonance Paramagnétique Électronique ont montré que l'état électronique fondamental du Mn dans le cristal est formé par un trou délocalisé et faiblement couplé au noyau accepteur $(3d^5)$ [26]. Le couplage entre le spin du trou et celui des ions magnétiques est à l'origine du ferromagnétisme médié par les porteurs. Notons que, dans les composés II-VI, le ferromagnétisme est impossible sans codopage du fait que le Mn est isoélectrique.

Lors de leur croissance, les composés (III,Mn)V présentent une difficulté majeure liée à la faible solubilité des atomes Mn dans la matrice hôte. L'incorporation d'une concentration importante du Mn, dépassant la limite de la solubilité, à des températures de croissance traditionnelles (proche de 600°C) entraine l'apparition d'une deuxième phase. Toutefois, le groupe de H. Ohno [28] a pu éviter l'apparition de cette phase secondaire en réussissant à fabriquer, par épitaxie par jets moléculaires à basse température, des échantillons (Ga,Mn)As homogènes ayant une forte concentration d'atome Mn. Une concentration de quelques pourcents du Mn, partiellement compensés par des défauts électriquement actifs (voir la figure 1.1), permet d'avoir des dopages électroniques importants (10^{19} - 10^{20} porteurs/cm³). Durant la phase de croissance à basse température, des atomes d'As peuvent se positionner sur des sites de Ga (As_{Ga}) [29]. Ils agissent alors comme des doubles donneurs d'électrons. Ils vont compenser une partie des trous libérés par le



FIGURE 1.1 – Structure cristallographique de (Ga,Mn)As [27]. Les Mn occupent des sites gallium. Deux types de défaut sont présentés : des arsenics en antisite gallium (As_{Ga}) et des Mn en sites interstitiels (Mn_i).

Mn et provoquent ainsi une diminution de la concentration des porteurs de charges. D'autre part, la faible solubilité du Mn dans la matrice GaAs (généralement de quelques pourcents) entraine son apparition en position interstitielle (Mn_I) . Ces derniers, comme d'ailleurs les As_{Ga} , vont agir comme des donneurs. Dans le cas où les Mn interstitiels et substitutionnels sont des proches voisins, ils se couplent par une interaction antiferromagnétique (AF) provoquant une diminution de concentration ferromagnétiquement active en Mn. Par conséquent, nous considérons uniquement la concentration effective (x_{eff}) en ions magnétiques en excluant les paires de premiers voisins bloquées par l'interaction AF. Il faut aussi mentionner que ces défauts $(Mn_I \text{ et } As_{Ga})$ sont en concentrations plus faibles que celle en Mn_{Ga} [30].

1.2 Origine du ferromagnétisme

La phase ferromagnétique de l'alliage (Ga,Mn)As trouve son origine dans l'interaction d'échange, d'une part entre les atomes de Mn et les porteurs délocalisés, et d'autre part entre les impuretés magnétiques. L'échange direct entre ces impuretés ne peut pas être considéré comme le mécanisme dominant du ferromagnétisme car le recouvrement des orbitales d est faible vu que la distance entre les Mn, est grande, typiquement de l'ordre de 7 Å pour une concentration de Mn égale à 10%, devant 2 - 3 Å pour le Fer. Cette interaction sera négligée par la suite. Ainsi, les propriétés magnétiques des composés (Ga,Mn)As sont principalement déterminées par l'interaction d'échange entre deux systèmes de spins différents : le premier de spin $\frac{1}{2}$ lié aux porteurs de charges du semi-conducteur, et le second de spin $\frac{5}{2}$ lié aux ions Mn [31].

Pour modéliser ce couplage porteurs/manganèses, nous adoptons un Hamiltonien de type Heisenberg :

$$H_{ech} = \sum_{ij} J_{ij} S_i s_j \tag{1.1}$$

où S_i est l'opérateur de spin associé à l'atome Mn, s_j est celui relatif au porteur de charges. J_{ij} est l'interaction d'échange entre les électrons de spin S_i localisés et les porteurs de charges de spin s_j . Cet Hamiltonien résulte de la transformation de Schrieffer-Wolff qui permet de décrire le mélange des fonctions d'ondes s ou p des électrons délocalisés avec les fonctions d'onde d des spins localisés [32].

En utilisant l'approximation de champ moyen, le Hamiltonien échange H_{ech} s'écrit alors :

$$H_{ech} = H_{sd} + H_{pd} \tag{1.2}$$

avec

 $H_{sd} = -x_{eff}N_0\alpha_{sd} < S > s$: Hamiltonien traduisant l'interaction ferromagnétique avec $N_0\alpha_{sd} > 0.$

 $H_{pd} = -x_{eff}N_0\beta_{pd} < S > s$: Hamiltonien représentant l'interaction antiferromagnétique avec $N_0\beta_{pd} < 0$.

où x_{eff} : concentration effective de Mn (en unité de N_0). N_0 est la concentration volumique du Ga ($N_0 = 2.2 \ 10^{22} \,\mathrm{cm}^{-3}$). α_{sd} et β_{pd} sont les intégrales d'échanges respectivement entre les porteurs de la bande de conduction et la bande de valence et l'orbitale d du Mn. Elles sont définies comme suit :

$$\alpha_{sd} = \langle S_c \mid J_{sd} \mid S_c \rangle \tag{1.3}$$

$$\beta_{pd} = < X \mid J_{pd} \mid X > = < Y \mid J_{pd} \mid Y > = < Z \mid J_{pd} \mid Z >$$
(1.4)

où $|S_c\rangle$ est l'état de la bande de conduction de symétrie s, ($|X\rangle$, $|Y\rangle$, $|Z\rangle$) désignent les états de la bande de valence de symétrie p.

Généralement, on utilise $N_0 \alpha_{sd} \simeq 0.09 \pm 0.03 \text{ eV}$ [33] et $N_0 \beta_{pd} \simeq -1.2 \text{ eV}$ [34]. Vu ces ordres de grandeur, c'est le couplage associé à l'intégrale d'échange β_{pd} qui domine.

Nous pouvons réécrire ces Hamiltoniens en introduisant le paramètre du splitting d'échange, B_g , qui est proportionnel à l'aimantation de saturation, M_s . Il est donné par l'expression suivante :

$$B_g = \frac{A_F \beta M_s}{6g_{Mn}\mu_B} \tag{1.5}$$

où A_F est la constante du liquide de Fermi qui permet de rendre compte des interactions porteurs-porteurs [25], elle est prise égale à 1.2 (calculée dans le cadre de l'approximation de la densité de spin locale), g_{Mn} est le facteur de Landé, μ_B étant le magnéton de Bohr. Pour l'échantillon considéré dans le cadre de cette thèse, à basse température (T = 4 K), l'énergie décrivant l'éclatement de l'échange est estimée à -30 meV pour une aimantation à saturation de l'ordre de 51.3 kA/m correspondant à une concentration effective de Mn égale à 5%.

1.3 Hamiltonien du système et structure de bande

Après avoir explicité l'origine de la phase ferromagnétique dans les composés (Ga,Mn)As, une description de sa structure de bande (SB) s'avère indispensable. Plusieurs approches théoriques ont été proposées pour décrire les propriétés magnétiques d'un DMS. Dietl et collaborateurs [25] ont étudié ces propriétés dans le cadre de la théorie k.p. Ils introduisent dans le Hamiltonien du système un terme supplémentaire traduisant l'échange (voir le paragraphe 1.2) et qui tient compte du couplage anti-ferromagnétique entre le trou totalement délocalisé et le spin local du Mn. Il faut aussi tenir compte de l'effet des contraintes du fait que le système étudié est en contrainte épitaxiale. Les auteurs de la référence [25] modélisent cet effet en introduisant uniquement la contrainte biaxiale résultant de l'épitaxie en régime de croissance pseudo-morphique.

En s'inspirant de l'approche de Dietl et dans le but d'étudier les propriétés magnétiques des composés (Ga,Mn)As, nous considérons le Hamiltonien suivant pour les bandes de valence :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\mathbf{kp}} + \mathcal{H}_{pd} + \mathcal{H}_{cont} \tag{1.6}$$

où $\mathcal{H}_{\mathbf{kp}}$ est le Hamiltonien de Kohn-Luttinger, \mathcal{H}_{pd} est le Hamiltonien d'échange p-d, \mathcal{H}_{cont} est le Hamiltonien traduisant les effets de contrainte dans lequel nous avons introduit la contrainte biaxiale et une contrainte de cisaillement dont nous verrons la justification plus loin (chapitre 2).

$\mathbf{u}_1 = rac{1}{\sqrt{2}}(X+iY)$	$\mathrm{u}_4 {=} i rac{1}{\sqrt{2}} (X - i Y) {\downarrow}$
$\mathbf{u}_2 = i \frac{1}{\sqrt{6}} \left[(X + iY) \downarrow - 2Z^{\uparrow} \right]$	$\mathrm{u}_5 \!= rac{1}{\sqrt{3}} \left[(X + iY) \!\!\downarrow \!+ \!\mathrm{Z} \!\uparrow ight]$
$\mathrm{u}_3 = rac{1}{\sqrt{6}} \left[(X - iY) \! \uparrow \! + \! 2\mathrm{Z} \! \downarrow ight]$	$\mathrm{u}_6 \!= i rac{1}{\sqrt{3}} \left[- (X - iY) \!\!\uparrow \! + \! \mathrm{Z} \!\!\downarrow ight]$

Pour la représentation matricielle, nous adoptons la base suivante [25] :

TABLE 1.1 – Base utilisée pour représenter le Hamiltonien \mathcal{H}

Hamiltonien de Kohn- Luttinger

Ce Hamiltonien, $\mathcal{H}_{\mathbf{kp}}$, décrit un modèle $\mathbf{k.p}$ à 6 bandes incluant la bande de valence de symétrie p. La projection de $\mathcal{H}_{\mathbf{kp}}$ sur les états décrivant les bandes Γ_8 et Γ_7 , c'est-à-dire sur la base { $u_1, u_2, u_3, u_4, u_5, u_6$ } (voir le tableau 1.1), conduit à la matrice suivante :

$$\mathcal{H}_{\mathbf{kp}} = \frac{-\hbar^2}{2m_0} \begin{pmatrix} P+Q & L & M & 0 & iL/\sqrt{2} & -i\sqrt{2}M \\ L^* & P-Q & 0 & M & -i\sqrt{2}Q & i\sqrt{3/2}L \\ M^* & 0 & P-Q & -L & -i\sqrt{3/2}L^* & -i\sqrt{2}Q \\ 0 & M^* & -L^* & P+Q & -i\sqrt{2}M^* & -iL^*/\sqrt{2} \\ -iL^*/\sqrt{2} & i\sqrt{2}Q & i\sqrt{3/2}L & i\sqrt{2}M & P+\Delta & 0 \\ i\sqrt{2}M^* & -i\sqrt{3/2}L^* & i\sqrt{2}Q & iL/\sqrt{2} & 0 & P+\Delta \end{pmatrix}$$

où

$$P = \gamma_1 k^2, \qquad Q = \gamma_2 (k_x^2 + k_y^2 - 2k_z^2),$$

$$L = -i2\sqrt{3}\gamma_3(k_x - ik_y)k_z, \qquad M = \sqrt{3}[\gamma_2(k_x^2 - k_y^2) - i2\gamma_3k_xk_y],$$

$$\Delta = \frac{2m_0\Delta_0}{\hbar^2}$$

Les γ_{ℓ} ($\ell = 1, 2, 3$) sont les paramètres de Luttinger.

Dans ce présent travail, nous utilisons les paramètres de Luttinger de GaAs : $\gamma_1 = 6.85$, $\gamma_2 = 2.1$ et $\gamma_3 = 2.9$. En ne considérant que $\mathcal{H}_{\mathbf{kp}}$, c'est-à-dire en l'absence des effets dus aux contraintes et à l'échange, les bandes de trous-lourds (HH) $(j_z = \pm \frac{3}{2})$ et de trous-légers (LH) $(j_z = \pm \frac{1}{2})$ formant la bande Γ_8 sont quatre fois dégénérées au centre de la zone de Brillouin (point Γ). La bande « split-off », Γ_7 , est séparée de ces dernières par le couplage spin-orbite, Δ_0 , qui est de l'ordre de 340 meV pour GaAs.

Hamiltonien d'échange

Le Hamiltonien d'échange H_{pd} (voir 1.2) projeté sur la base { $u_1, u_2, u_3, u_4, u_5, u_6$ } s'écrit :

$$\mathcal{H}_{pd} = B_g \begin{pmatrix} 3b_x w_z & i\sqrt{3}b_x w_- & 0 & 0 & \sqrt{6}b_x w_- & 0\\ i\sqrt{3}b_x w_+ & (2b_z - b_x)w_z & 2ib_z w_- & 0 & i\sqrt{2}(b_x + b_z)w_z & -\sqrt{2}b_z w_-\\ 0 & -2ib_z w_+ & -(2b_z - b_x)w_z & i\sqrt{3}b_x w_- & \sqrt{2}b_z w_+ & -i\sqrt{2}(b_x + b_z)w_z\\ 0 & 0 & -i\sqrt{3}b_x w_+ & -3b_x w_z & 0 & -\sqrt{6}b_x w_+\\ \sqrt{6}b_x w_+ & -i\sqrt{2}(b_x + b_z)w_z & \sqrt{2}b_z w_- & 0 & -(2b_x - b_z)w_z & ib_z w_-\\ 0 & -\sqrt{2}b_z w_+ & i\sqrt{2}(b_x + b_z)w_z & -\sqrt{6}b_x w_- & -ib_z w_+ & (2b_x - b_z)w_z \end{pmatrix}$$

où

$$w_z = \frac{M_z}{M}, \quad w_\pm = \frac{(M_x \pm iM_y)}{M},$$

$$b_z = \frac{\beta_z}{\beta}, \qquad b_x = \frac{\beta_x}{\beta},$$

Notons que pour un matériau cubique, nous avons $b_z = b_x = 1$.

Hamiltonien de la contrainte

La croissance de (Ga,Mn)As sur un substrat brise légèrement la symétrie cubique de la maille en introduisant une déformation tétragonale. En effet, l'épitaxie de la couche sur un substrat (GaAs) produit une contrainte de compression alors qu'une croissance sur l'alliage (In,Ga)As impose une contrainte de tension sur le composé (Ga,Mn)As. Cette brisure de symétrie lève la dégénérescence entre les bandes HH et LH en centre de zone de Brillouin. Il faut mentionner aussi que la déformation biaxiale est suffisamment faible (splitting associé faible) pour que la tétragonalité de la maille de (Ga,Mn)As demeure une perturbation. Nous pouvons ainsi continuer à utiliser un hamiltonien cubique. Le Hamiltonien traduisant les effets de la contrainte biaxiale a la même symétrie que le $\mathcal{H}_{\mathbf{kp}}$, en respectant les substitutions suivantes :

$$k_{\alpha}k_{\beta} \to \epsilon_{\alpha\beta}, \quad \frac{-\hbar^2}{2\,m_0}\gamma_1 \to a_1, \ \frac{-\hbar^2}{2\,m_0}\gamma_2 \to \frac{a_2}{2}, \ \frac{-\hbar^2}{2\,m_0}\gamma_3 \to \frac{a_3}{2\sqrt{3}}$$

avec a_1 , a_2 , a_3 sont les potentiels de déformation, $\epsilon_{\alpha\beta}$ sont du tenseur de déformation. Le Hamiltonien de la contrainte biaxiale est décrit par la matrice suivante [35] :

$$\mathcal{H}_{BS} = \begin{pmatrix} H_{hh}^{s} & 0 & -c^{s} & 0 & 0 & i\sqrt{2}c^{s} \\ 0 & H_{\ell h}^{s} & 0 & -c^{s} & -id^{s} & 0 \\ -c^{s*} & 0 & H_{\ell h}^{s} & 0 & 0 & -id^{s} \\ 0 & -c^{s*} & 0 & H_{hh}^{s} & i\sqrt{2}c^{s*} & 0 \\ 0 & id^{s} & 0 & -i\sqrt{2}c^{s} & 0 & 0 \\ -i\sqrt{2}c^{s*} & 0 & id^{s} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

où

$$H_{hh}^{s} = \frac{a_2}{2} (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} - 2\epsilon_{zz}), \qquad H_{\ell h}^{s} = -\frac{a_2}{2} (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} - 2\epsilon_{zz})$$

$$c^s = \frac{a_2}{2}\sqrt{3}(\epsilon_{yy} - \epsilon_{xx}) + i \, a_3\epsilon_{xy}$$

$$d^{s} = \frac{a_{2}\sqrt{2}}{2} \left[\left(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} \right) - 2 \epsilon_{zz} \right]$$

$a_1 (\mathrm{eV})$	$a_2 (eV)$	$a_3 (\mathrm{eV})$	$C_{12} (10^{11} \text{dyn c} m^{-2})$	$C_{12} (10^{11} \mathrm{dyn} \ \mathrm{cm}^{-2})$
-1.16	-2.00	-4.80	11.26	5.71

TABLE 1.2 – Les différents paramètres intervenant dans le Hamiltonien \mathcal{H} [36].

Les composantes ϵ_{xx} , ϵ_{yy} , ϵ_{zz} sont les éléments du tenseur de déformation. Elles prennent des valeurs typiques allant de 10^{-4} à 10^{-3} . Elles ont pour expression :

$$\epsilon_{zz} = \frac{\left(1 - \frac{C_{11}}{C_{11} + 2C_{12}}\right)\ell m}{1 + \ell m \frac{C_{11}}{C_{11} + 2C_{12}}}, \qquad \epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = -\frac{C_{11}}{2C_{12}}\epsilon_{zz}$$

Le paramètre ℓm désigne le désaccord de maille relatif. Il est défini par :

$$\ell m = \frac{a_{\perp} - a_{\parallel}}{a_{\parallel}} \tag{1.7}$$

où a_{\parallel} est le paramètre de maille du matériau substrat, GaAs, et a_{\perp} est le paramètre de maille de la couche (Ga,Mn)As perpendiculaire au plan de la couche. C_{11} et C_{12} sont les constantes d'élasticité. Dans le tableau (1.2), nous donnons les valeurs numériques de a_1 , a_2 , a_3 , C_{11} et C_{12} utilisées dans le présent travail.

Nous discutons dans la suite (voir Chapitre 3) l'utilité d'ajouter un terme supplémentaire dans le Hamiltonien \mathcal{H}_{cont} , décrivant la contrainte de cisaillement, ϵ_{xy} , dans le plan des couches.

La levée de dégénérescence de la BV en $\mathbf{k} = 0$ due aux contraintes est décrite par \mathcal{H}_{BS} . Les bandes HH et LH sont complètement découplées. En première approximation, nous prenons $\epsilon_{xy} = 0$ et sachant que $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$, l'élément de matrice c^s de la matrice \mathcal{H}_{BS} est nul. Par conséquent, l'effet des contraintes sur les bandes HH au centre de zone est simplement un décalage vers les hautes énergies de la quantité d'énergie $\frac{a_2}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} - 2\epsilon_{zz})$. L'effet sur les bandes LH est un décalage vers les basses énergies de la quantité $\frac{a_2}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} - 2\epsilon_{zz}) - \frac{2a_2^2(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy})^2}{E_{u_2} - E_{u_5}}$. En absence échange, l'éclatement entre les bandes HH et LH est de l'ordre de 15 meV au centre de la zone de Brillouin, pour un désaccord de maille égale à3860 ppm. Il est donc plus faible que le splitting d'échange. Notons que ℓm a été déterminé par Olivia Mauguin (C2N) pour les échantillons de (Ga,Mn)As en utilisant la diffraction de rayons X (DRX).

Il existe une partie hydrostatique de la contrainte qui modifie les niveaux énergétiques du bas de la bande de conduction de symétrie s et le sommet de la bande de valence de symétrie p. Elle est décrite par le Hamiltonien :

 $\mathcal{H}_{HS} = -a_1(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \,\mathcal{I}_6$

Il faut mentionner que cette notation n'est valable que pour les bandes de valence. \mathcal{I}_6 étant la matrice identité d'ordre 6.

Le Hamiltonien de la contrainte est la somme du Hamiltonien de la contrainte biaxiale et hydrostatique :

 $\mathcal{H}_{cont} = \mathcal{H}_{BS} + \mathcal{H}_{HS}$

En première approximation, nous nous contentons de négliger la contribution du Hamiltonien \mathcal{H}_{HS} vu que les transitions inter-bandes valence-conduction n'ont pas été prises en compte et le dopage est fortement de type p. Nous n'aurons donc pas besoin de la contribution hydrostatique au hamiltonien dans le modèle.

Diagramme de bandes

La SB de l'alliage de type (Ga,Mn)As présente des caractéristiques similaires à celle de GaAs. La diagonalisation du Hamiltonien total, \mathcal{H} , permet de tracer les relations de dispersion de l'échantillon. Nous allons donner dans la figure (1.2) le diagramme de bande de (Ga,Mn)As, traité dans un modèle à 6 bandes pour une concentration de Mn de 5%.



FIGURE 1.2 – a : Schéma de bandes de GaAs. b : Relation de dispersion de la bande de valence de symétrie p de (Ga,Mn)As pour une concentration x = 5%, $\ell m = 3860$ ppm, $\epsilon_{xy} = 0$ et pour une aimantation parallèle à [100]. En $\mathbf{k} = 0$, on a : HH $(\pm \frac{3}{2})$, LH $(\pm \frac{1}{2})$, SO $(\pm \frac{1}{2})$. E_F désigne le niveau de Fermi.

En l'absence de l'échange et de la contrainte, nous observons sur la figure 1.2(a) que le quadruplet Γ_8 est formé de deux bandes HH et deux bandes LH. Il est 4 fois dégénéré en $\mathbf{k} = 0$. La troisième bande « split-off » est due au couplage spin-orbite, elle est située à une énergie Δ_0 du sommet de la BV. Notons que l'origine des énergies est prise au sommet de la bande de valence. Sur la figure1.2(b), nous constatons que les effets de la contrainte et de l'échange se manifestent en particulier au voisinage du centre de la zone de Brillouin ($\mathbf{k} = 0$) pour la bande de valence de symétrie p. La contrainte épitaxiale induit un éclatement entre les bandes HH et LH. L'interaction d'échange crée un effet Zeeman géant levant aussi la dégénérescence entre les bandes HH et LH (voir la figure 1.2(b)). En effet, les HH ont une séparation en énergie trois fois plus grande que les LH. Le comportement différent des bandes HH et LH est dû au fait que leurs fonctions d'ondes sont différentes, autrement dit, en $\mathbf{k} = 0$ les trous lourds sont des états purs de spin « up » : $|\frac{1}{\sqrt{2}}(X+iY)\uparrow$ > ou spin « down » $|\frac{1}{\sqrt{2}}(X-iY)\downarrow$ >, alors que les trous légers sont des états mixtes de spin avec une composante « \uparrow » et une autre « \downarrow » : $|i\frac{1}{\sqrt{6}}[(X+iY)\downarrow-2Z\uparrow]>$, $|\frac{1}{\sqrt{6}}[(X-iY)\uparrow+2Z\downarrow]$ >. Pour une aimantation parallèle à l'axe [100], les bandes HH sont séparées en énergie de la quantité 6 B_g . Pour des concentrations élevées de trous, le niveau de Fermi descend profondément dans la BV, la distinction « lourds-légers » n'est plus pertinente, les états de trous correspondant à des grandes valeurs \mathbf{k} seront peuplés. Nous constatons que la SB est fortement anisotrope, dû à l'effet de la contrainte épitaxiale ($\epsilon_{xy} = 0$), de l'échange et du couplage spin-orbite. Cette structure de bande complexe est à l'origine de l'anisotropie magnétique comme nous allons l'expliciter dans le paragraphe suivant.

Avant de clore cette partie, nous rappelons que Yahyaoui et collaborateurs [37] ont entrepris une étude comparative de la SB du composé (Ga,Mn)As issue d'un modèle à 6 bandes et celui à 40 bandes. Ce dernier modèle fait appel aux états de conduction et de valence de symétrie s, p, d, s^* . Il traduit l'effet des bandes éloignées sur la dispersion en énergie des états de trous associées à la bande de symétrie p: HH, LH et SO. La figure 1.3 montre clairement que les SB issues des deux modèles convergent au voisinage du centre de la zone de Brillouin, soit jusqu'à $\mathbf{k} \approx 0.1 \ \text{A}^{-1}$. Nous estimons qu'aux alentours du point Γ , le modèle à 6 bandes est suffisant pour décrire les propriétés électroniques d'un composé (Ga,Mn)As dont la concentration de porteurs de charges est inférieure à $5 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$.



FIGURE 1.3 – Comparaison entre des résultats issus du modèle à six bandes (trait plein) avec ceux déduits du modèle à 40 bandes (trait pointillé) [37, 38]. E_F représente le niveau de Fermi qui est de l'ordre de 110 meV pour une concentration de l'ordre de 5×10^{20} cm⁻³. Le paramètre B_g était de 26 meV.

La densité de porteurs dans l'échantillon étudié dans ce travail, estimée à partir de la température de Curie (voir 1.4.3), est de l'ordre de 4×10^{20} cm⁻³ soit une énergie de Fermi de l'ordre de 250 meV. Ainsi, nous adoptons dans nos calculs le modèle à 6 bandes qui assure la simplicité des simulations numériques et permet d'évaluer l'impact de divers paramètres (contrainte de cisaillement (ϵ_{xy}), contrainte biaxiale liée au désaccord de maille (ℓm), splitting d'échange (B_g)) sur la SB. Ce modèle microscopique basé sur une approche de théorie **k**.**p**, sera utile pour étudier l'anisotropie magnétique du semi-conducteur magnétique dilué (Ga,Mn)As.

1.4 Propriétés magnétiques

1.4.1 Anisotropie magnétique

L'anisotropie magnétique traduit la variation de l'énergie libre d'un système de moments magnétiques en fonction de l'orientation de l'aimantation par rapport aux axes cristallographiques de l'échantillon ou aux axes de symétrie. Dans ce paragraphe, nous allons brièvement expliciter les différentes contributions à l'anisotropie magnétique.

i) anisotropie de forme : Elle est liée à la présence d'un champ démagnétisant, $\mathbf{B}_{\mathbf{d}}$, propre au matériau ferromagnétique. Il est dû aux interactions dipôle-dipôle, et proportionnel à l'aimantation à saturation. Pour un film mince à aimantation perpendiculaire, le champ démagnétisant est donné par $\mathbf{B}_{\mathbf{d}} = -\mu_0 \mathbf{M}_s$ où \mathbf{M}_s étant l'aimantation de saturation de la couche. Dans les composés (Ga,Mn)As, le dopage en ions magnétiques est faible, donnant des aimantations à saturation typiques de l'ordre de $M_s = 50 \text{ kA/m}$ et un champ d'anisotropie de forme de l'ordre de 0.006 T (inférieur à la valeur du champ d'anisotropie uniaxiale perpendiculaire au plan $B_{2\,perp} = 0.33 \text{ T}$). Nous en déduisons que l'anisotropie de forme est faible devant les champs d'anisotropie magnétocristalline.

ii) anisotropie magnéto-cristalline : Elle dépend de deux mécanismes microscopiques : le champ cristallin qui décrit l'interaction électrostatique entre la distribution de charges de l'environnement et les orbitales des électrons de l'atome magnétique et/ou le couplage spin-orbite. Pour les éléments 3d, le couplage spin-orbite est une perturbation vis-à-vis du champ cristallin [39]. Pour les ions Mn^{2+} ayant un moment orbital nul (état orbital de symétrie s), il n'y a pas d'effet dû au champ cristallin. L'anisotropie magnéto-cristalline résulte alors du couplage spin-orbite. L'interaction entre les spins localisés est médiée par les trous qui ont un moment orbital non nul, induisant alors le couplage spin-orbite. Ce couplage impose la direction de l'aimantation qui minimise l'énergie totale des porteurs et provoque une SB fortement anisotrope. En comparant l'énergie totale du système pour différentes orientations de l'aimantation, on peut déterminer l'axe facile. Ces effets sont essentiellement liés au couplage complexe entre les bandes de trous et le remplissage de la BV. Ainsi, l'anisotropie magnétique dépend de la contrainte, du splitting d'échange B_g et du couplage spin-orbite (Δ_0). Elle dépend également de la densité de porteurs et par conséquent de l'énergie de Fermi. La dépendance de B_g avec la température conduit à un changement de l'anisotropie magnétique avec celle-ci [40].

A travers des mesures de magnétométrie SQUID (abréviation anglaise de Superconducting QUantum Interference Device) sur des couches (Ga,Mn)As, Sawicki et collaborateurs [41] ont

présenté l'orientation de l'axe facile de l'aimantation en fonction de la température et la densité de porteurs (voir la figure 1.4). Pour une combinaison appropriée de la contrainte et de la concentration du trous, un changement de la température permet de basculer l'axe facile entre les deux directions (dans le plan/hors plan). En effet, à basse température une augmentation de la densité de trous induit une transition de l'anisotropie perpendiculaire vers une anisotropie planaire pour une couche en compression ayant une concentration du Mn de 5.3%.



FIGURE 1.4 – Variation du rapport des températures de réorientation et de Curie en fonction de la densité de porteurs dans le composé de (Ga,Mn)As [41]. Les chiffres entre crochets ou entre soufflets indiquent les axes de facile aimantation. Pour x = 5.3%, les valeurs expérimentales (points pleins) et calculées (lignes épaisses) représentent la transition d'anisotropie magnétique hors plan/ dans le plan. Pour x = 3% (cercle ouvert), cette transition n'est pas détectée au-dessus de 5K. Les lignes pointillées indiquent les températures attendues pour la réorientation de l'axe facile dans le plan entre les directions < 100 > et < 110 > .

1.4.2 Expression phénoménologique de l'anisotropie magnétique

Phénoménologiquement, l'anisotropie magnétique est décrite par la variation de l'énergie libre du système magnétique en fonction de coefficients K_i [42], des angles sphériques du champ magnétique (θ_H, φ_H), et ceux de l'aimantation (θ, φ). Nous donnons ainsi l'énergie magnétique totale pour une couche magnétique dans un champ magnétique :

$$E_m(\theta,\varphi) = -\mu_0 M_s H \left[\cos\theta \cdot \cos\theta_H + \sin\theta \cdot \sin\theta_H \cos(\varphi - \varphi_H) \right] + \frac{\mathbf{B}_d}{2} M_s \cos^2\theta - K_{2\perp} \cos^2\theta$$

$$-\frac{1}{2}K_{4\perp}\cos^4\theta - \frac{K_{4\parallel}}{2}\frac{(3+\cos4\varphi)}{4}\sin^4\theta - K_{2\parallel}\sin^2\theta\sin^2(\varphi - \frac{\pi}{4})$$
(1.8)

Le premier terme est l'énergie Zeeman, le deuxième correspond à l'anisotropie de forme. Les derniers termes reflètent l'anisotropie magnéto-cristalline.



FIGURE 1.5 – Repère de coordonnées utilisé pour décrire l'anisotropie magnéto-cristalline.

Nous allons maintenant donner la signification de chaque coefficient K_i représentant les ordres de l'anisotropie magnéto-cristalline.

- Dans un matériau cubique (couche sans contraintes), il n'existe qu'une constante d'anisotropie cubique K_4 . Ce coefficient décrit la différence d'énergie du système magnétique pour une orientation de l'aimantation suivant les axes <100> et <111>. La présence des contraintes épitaxiales biaxiales dans le plan (001) abaisse la symétrie du matériau qui devient tétragonale suivant l'axe [001]. Nous introduisons alors le coefficient d'anisotropie uniaxiale $K_{2\perp}$ qui traduit la différence d'énergie pour l'aimantation suivant z ou dans le plan (x,y). Nous avons aussi maintenant deux coefficients $K_{4\perp}$ et $K_{4\parallel}$, qui décrivent l'écart d'énergie pour une aimantation suivant les axes <100> et <110> dans le plan de la couche.
- Le coefficient d'anisotropie uniaxiale, $K_{2\parallel}$, traduit un abaissement de symétrie supplémentaire, il a été observé expérimentalement [40, 43, 44]. Il distingue les directions [110] et [$\overline{1}10$] dans le plan de la couche. Nous consacrerons le chapitre 2 à une étude numérique et expérimentale détaillée d'une des hypothèses mise en avant pour cette anisotropie : la présence d'une déformation épitaxiale de cisaillement dans la couche de (Ga,Mn)As.

Les constantes d'anisotropie magnéto-cristalline sont généralement exprimées en énergie par unité de volume. Elles sont de l'ordre de $10^3 - 10^4 \text{Jm}^{-3}$ pour les métaux 3d de symétrie cubique (Nickel, Fer) et peuvent aller jusqu'à $10^7 - 10^8 \text{Jm}^{-3}$, dans certains alliages de terres rares [39]. Pour déterminer ces constantes d'anisotropie nous aurons recours à des calculs numériques qui seront détaillés dans le chapitre 2. Nous pouvons d'autre part les mesurer expérimentalement grâce à des expériences de résonance ferromagnétique (FMR) (1.5.1).

1.4.3 Température de Curie

Selon une approche du champ moyen, la température de Curie est donnée par [25] :

$$T_c = \frac{\beta^2 x_{eff} N_0 S(S+1) \rho(E_F)}{12 k_B} - T_{AF}$$
(1.9)

où $\rho(E_F)$ est la densité d'états au niveau de Fermi et T_{AF} représentant une correction à la température de Curie, conséquence de l'interaction antiferromagnétique entre deux atomes Mn premiers voisins.

L'équation (1.9) indique qu'une augmentation de T_c est possible dès qu'on incrémente la concentration en atomes du Mn ou/et la densité de trous. Un fort couplage d'échange β favorise également une augmentation de cette température de Curie.

Considérons un gaz de trous libres de masse effective m_{eff} et ayant une relation de dispersion isotrope : $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{eff}}$. Après intégration tridimensionnelle dans l'espace des k, il vient que $p = \frac{k_F^3}{3\pi^2}$, où p est la concentration de trous. Finalement, nous obtenons :

$$T_c \approx x_{eff} \ p^{\frac{1}{3}} N_0 \beta^2 \tag{1.10}$$

La valeur de $|N_0\beta|$ augmente en diminuant le paramètre de la maille hôte [25]. Ainsi, une augmentation de la température de Curie est prédite par exemple pour l'alliage (Ga, Mn)As_{1-y}P_y [45] (y représentant la concentration en phosphore).

A partir de l'équation (1.9), nous estimons une température T_c proche de l'ambiante pour une densité de porteurs égale à $3.5 \, 10^{20} \text{cm}^{-3}$ et une concentration en Mn de 12%. Expérimentalement, la plus haute température de Curie mesurée est de 200 K [24]. Cette approche du champ moyen surestime la valeur de T_c car les concentrations effectives en Mn et en porteurs de charge sont plus basses que leurs valeurs nominales. C'est en fait les effets de compensation à la fois électrique et magnétique dans le composé (Ga,Mn)As qui provoquent cette diminution. De plus, Khazen et collaborateurs [46] attribuent cette limitation de T_c à la faible portée de l'interaction ferromagnétique, en raison du faible libre parcours moyen des trous (de l'ordre de 5 Å).

1.5 Caractérisation des propriétés magnétiques

Toutes les caractérisations et les mesures qui seront présentées dans la suite ont été réalisées sur une couche de (Ga,Mn)As d'épaisseur 50 nm, ayant une concentration effective en manganèse de 5%. La fabrication de l'échantillon est effectuée au sein du Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N) par Aristide Lemaître. La couche est déposée sur un substrat de GaAs. Elle est en compression et l'aimantation adopte une configuration planaire. La couche a subi des recuits post-croissance à des température de l'ordre de 200° C pendant 16 h. Notons que la procédure du recuit permet de contrôler les défauts donneurs (voir 1.1) en favorisant la diffusion des Mn_I hors de la matrice hôte [47]. Nous observons ainsi une augmentation de la température de Curie [48]. Nous appelons notre échantillon 4EQ64r1 ou 4EQ64r2 où le suffixe (r1 où r2) désigne le recuit.

1.5.1 Mesure d'anisotropie magnétique : résonance ferromagnétique (FMR)

La caractérisation des constantes d'anisotropie a été réalisée par M. Cubukcu et J. Von Bardeleben au sein de l'Institut des NanoSciences de Paris (INSP), grâce à des expériences de FMR. Son principe est basé sur le mouvement de précession de l'aimantation dans un faible champ radio-fréquence (RF) de fréquence fixe. L'échantillon est placé, entre les deux pôles d'un aimant (voir figure 1.6(a)), dans une cavité de fréquence généralement de l'ordre de 9.4 GHz. On applique un champ externe statique (généralement supérieur à 0.1 T) avec une orientation (θ_H, φ_H) , de préférence avec une valeur suffisamment forte pour aligner l'aimantation suivant son axe. Pour mesurer ce champ continu, un capteur à effet Hall a été utilisé. La fréquence du champ RF étant fixe, nous balayons ainsi celle associée à l'aimantation en variant le champ statique. Lorsque la fréquence de la précession de l'aimantation est égale à la fréquence du champ RF, la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique présente une forte absorption due à variation de l'onde RF.

La fréquence de résonance ferromagnétique c'est la fréquence de précession du mode propre uniforme de l'aimantation, $f_{prec} = \frac{\omega}{2\pi}$. Nous l'exprimerons de façon explicitée pour (Ga,Mn)As en fin de manuscrit (voir § 3.5). Elle est définie par rapport aux dérivées d'ordre deux de l'énergie libre [49] :

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{1}{M_s^2 sin^2\theta} \left[E_{\theta\theta} E_{\varphi\varphi} + E_{\theta\varphi}^2\right] \tag{1.11}$$

où $E_{\theta\theta} = \frac{d^2E}{d\theta^2}$, $E_{\varphi\varphi} = \frac{d^2E}{d\varphi^2}$ et $E_{\theta\varphi} = \frac{d^2E}{d\theta d\varphi}$ sont les dérivées partielles de l'énergie libre E, elles sont évaluées par rapport aux angles (θ,φ) qui minimisent l'énergie libre. A résonance, la fréquence propre magnétique (ω) est égale à la fréquence du champ RF (ω_{RF}) . $\gamma > 0$ est le facteur gyromagnétique, donnée par $\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar}$ où g est le facteur de Landé.

Pour $\theta = 0$, une direction fréquemment utilisée dans les expériences FMR, l'équation (1.11) n'est plus définie. Baselgia et collaborateurs [50] ont proposé une formule plus complète qui contourne cette divergence non physique en $\theta = 0$:

$$\left(\frac{\omega_{RF}}{\gamma}\right)^2 = \frac{1}{M_s^2} \left[E_{\theta\theta} \left(\frac{1}{\sin^2\theta} E_{\varphi\varphi} + \frac{\cos\theta}{\sin\theta} E_{\theta}\right) - \left(\frac{1}{\sin\theta} E_{\theta\varphi} - \frac{\cos\theta}{\sin^2\theta} E_{\varphi}\right)^2 \right]$$
(1.12)

Si le champ magnétique appliqué est orienté suivant les axes de hautes symétries (H || respectivement aux directions [001], [100], [110] et $[1\overline{1}0]$) et pour une aimantation parallèle à ce champ, nous pouvons écrire, pour chaque direction considérée, le champ correspondant à la résonance (H_{res}) comme :

$$\left(\frac{\omega_{RF}}{\gamma}\right)^{2} = \left(H_{res}^{[001]} - \mu_{0}M_{s} + \frac{2K_{2\perp}}{M_{s}} + \frac{2K_{4\perp}}{M_{s}}\right)\left(H_{res}^{[001]} - \mu_{0}M_{s} + \frac{2K_{2\perp}}{M_{s}} + \frac{2K_{4\perp}}{M_{s}} - \frac{2K_{2\parallel}}{M_{s}}\right) (1.13)$$

$$\left(\frac{\omega_{RF}}{\gamma}\right)^2 = \left(H_{res}^{[100]} + \frac{2K_{4\parallel}}{M_s}\right)\left(H_{res}^{[100]} + \mu_0 M_s - \frac{2K_{2\perp}}{M_s} + \frac{2K_{4\parallel}}{M_s} + \frac{K_{2\parallel}}{M_s}\right)$$
(1.14)

$$\left(\frac{\omega_{RF}}{\gamma}\right)^2 = \left(H_{res}^{[110]} - \frac{2K_{4\parallel}}{M_s} - \frac{2K_{2\parallel}}{M_s}\right)\left(H_{res}^{[110]} + \mu_0 M_s - \frac{2K_{2\perp}}{M_s} + \frac{K_{4\parallel}}{M_s}\right)$$
(1.15)

$$\left(\frac{\omega_{RF}}{\gamma}\right)^2 = \left(H_{res}^{[1\bar{1}0]} - \frac{2K_{4\parallel}}{M_s} + \frac{2K_{2\parallel}}{M_s}\right)\left(H_{res}^{[1\bar{1}0]} + \mu_0 M_s - \frac{2K_{2\perp}}{M_s} + \frac{K_{4\parallel}}{M_s} + \frac{2K_{2\parallel}}{M_s}\right)$$
(1.16)

 H_{res} étant un champ mesuré pour diverses orientations (θ_H, φ_H) . Il dépendra principalement des constantes d'anisotropie, de l'aimantation à saturation qui peut être mesurée avec un VSM (abréviation anglaise de Vibrating Sample Magnetometer) (voir 1.5.2) et du facteur de Landé g. En effet, un ajustement itératif de la dépendance angulaire du champ de résonances déterminés par FMR, permet d'obtenir ces derniers. Pour réduire le nombre des inconnues dans ce système, le facteur de Landé g est généralement pris égal à celle de l'ion Mn^{2+} ($g_{Mn} = 2$). Cependant, Liu et collaborateurs [51] ont montré que cette hypothèse n'est pas toujours valable. En réalité, l'aimantation totale est la somme de deux contributions : l'une provenant du moment magnétique de Mn^{2+} (plus précisément du Mn_{Ga}), et l'autre relative au moment magnétique de trous. En raison de la contribution des trous dans le facteur de Landé (mesuré par FMR), la valeur du facteur de Landé, g, est inférieure à 2 tout en variant en fonction de la concentration de trous.

Pour déterminer ce facteur, Sliwa et Dietl [52]ont proposé d'utiliser la relation phénoménologique suivante :

$$\frac{n_{Mn}Sg_{Mn} + M_c/\mu_B}{g_{eff}} = Sn_{Mn} + sn_h P$$

où s et S sont les valeurs de spin respectivement de l'atome du Mn et du trou, M_c et P sont respectivement l'aimantation et la polarisation du trou et n_{Mn} , n_h présentent la concentration effective du Mn_{Ga} et de trous.

De plus, Khazen et collaborateurs [42] ont obtenu un bon accord entre les champs de résonance simulés et ceux mesurés uniquement pour g inférieure à 2. Ils ont montré que le facteur gvarie de 1.97 pour l'échantillon à faible concentration de porteurs (de l'ordre de $3.2 \, 10^{19} \text{cm}^{-3}$) à g = 1.90 pour l'échantillon avec la concentration de trou la plus élevée (de l'ordre de 10^{21} cm^{-3}).

Des spectres typiques obtenus en FMR, mesurés en fonction de la température, sont portés dans la figure 1.6(b). La faible largeur de raie montre l'homogénéité de l'échantillon. En augmentant la température, ce dernier se déplace progressivement vers le deuxième champ traduisant la réorientation de l'aimantation.



FIGURE 1.6 – a : Schéma explicatif du principe de la FMR [53]. b : Des mesures de FMR pour (Ga,Mn)As avec le champ appliqué le long de l'axe facile et difficile (échantillon 4EQ64r1).

Après avoir mesuré H_{res} pour chaque direction, nous pouvons résoudre le système d'équations (1.13-1.16) et donc déterminer les coefficients phénoménologiques K_i . Nous récapitulons dans le tableau (1.3), l'évolution des coefficients K_i « déterminés par FMR » en fonction de la température pour l'échantillon étudié dans ce travail.

$T\left(K\right)$	$K_{2\perp}(\mathrm{Jm}^{-3})$	$K_{4\perp}(\mathrm{Jm}^{-3})$	$K_{4\parallel} (\mathrm{Jm}^{-3})$	$K_{2\parallel}(\mathrm{Jm}^{-3})$	$M ({ m kA/m})$
4	-8493	-747.4	410.7	1037	51.3
20	-8133	-708	242.6	942.4	48.8
40	-7320	-592	126.2	760.7	44.2
60	-6214	-527.1	89.9	544.2	39
80	-4826	-353.2	68.5	341.6	32.4
100	-2781	-190.8	53.2	131.2	20.6
120	-551	-54.4	12.2	14.7	4.9

TABLE 1.3 – Les coefficients phénoménologiques, $K_i \ll déterminée par FMR \gg en fonction de la température pour l'échantillon 4EQ64r1 de (Ga,Mn)As ayant une concentration effective de 5%.$

1.5.2 Mesure de l'aimantation et la température de Curie : Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

La courbe de l'aimantation de saturation $M_s(T)$ a été caractérisée par VSM. Le principe de cette expérience est basé sur la mesure de la variation d'induction magnétique due au mouvement

oscillant de l'échantillon à travers les deux bobines de détection (voir figure 1.7(a)). L'échantillon est collé sur une tige oscillante verticalement. Un champ magnétique, de 50 mT, est appliqué lors du balayage en température pour saturer l'échantillon. La courbe $M_s(T)$ présentée sur la figure 1.7 (b), suit une loi de Brillouin. La température T_c est estimée comme étant la température pour laquelle l'aimantation s'extrapole à une valeur quasiment nulle, son incertitude est de quelques Kelvins. Pour l'échantillon étudié dans cette thèse, T_c est de l'ordre de 125 K.



FIGURE 1.7 – a : Schéma descriptif de VSM (wikipedia). b : La variation de l'aimantation en fonction de la température pour l'échantillon 4EQ64r2.

1.6 Effets magnéto-optiques

Dans ce paragraphe, nous présentons les effets magnéto-optiques qui seront utilisés dans le chapitre 3 pour détecter la composante dynamique de l'aimantation dans l'étude de la magnétoacoustique résolue temporellement et spatialement. Les effets magnéto-optiques sont liés à la modification de la polarisation de la lumière, lors de son interaction avec un milieu magnétique. Le faisceau de lumière polarisé rectilignement peut être décomposé en deux polarisations circulaires droite et gauche ayant la même vitesse de phase et la même amplitude. En raison de la biréfringence magnétique circulaire (du dichroïsme magnétique circulaire), sa transmission (réflexion) dans un matériau magnétique, entraine un déphasage et une différence d'amplitude entre ses deux composantes, d'où la rotation de l'axe de polarisation et l'apparition d'une ellipticité. Ce couplage magnéto-optique peut s'interpréter en terme de force de Lorentz (traduisant l'effet du champ magnétique appliqué), agissant sur le nuage électronique en tenant compte du couplage spin-orbite (joue le rôle d'un champ effectif). Ces effets magnéto-optiques se différencient en fonction de l'orientation de l'aimantation par rapport à la normale du plan d'incidence. Ils peuvent être classifiés selon leurs configurations, en transmission (effet Faraday) ou en réflexion (effet Kerr). Ces effets permettent d'étudier les propriétés magnétiques de nos échantillons et de sonder les composantes d'aimantation dans et hors du plan de la couche.

Effet Faraday

En 1845, Michael Faraday a observé que le plan de polarisation peut tourner pour un faisceau lumineux polarisé rectilignement transmis (à travers le verre) dans une direction parallèle à celle d'un champ magnétique appliqué. Cette observation traduit la première démonstration du lien existant entre le magnétisme et la lumière. La rotation Faraday résulte de la différence d'indice de réfraction associé aux deux états de polarisation circulaire, droite et gauche. Les angles de rotation Faraday peuvent atteindre des valeurs élevées, allant de 10^5 à 10^6 deg.cm⁻¹ pour les métaux 3d (Fer, Cobalt, Nickel) dans le visible à température ambiante [39]. Le substrat de (Ga,Mn)As n'est pas transparent aux longueurs d'ondes disponibles du laser, nous ne pouvons pas utiliser la rotation Faraday pour l'échantillon considéré. Cependant, en enlevant le substrat, les auteurs de la référence [54] ont réussi à mesurer cette rotation Faraday qui de l'ordre de $6 \, 10^4 \, \text{deg.cm}^{-1}$ à $T = 4 \, \text{K}$.

Effet Kerr

Cet effet traduit la réflexion de la lumière sur une surface aimantée. Suivant l'orientation du vecteur d'aimantation par rapport à la surface réfléchissante et le plan d'incidence du faisceau lumineux, nous distinguons trois configurations d'effets magnéto-optiques de Kerr : polaire, longitudinal et transverse. Ils peuvent être classés par rapport aux composantes de l'aimantation détectés dans chaque configuration. Pour un vecteur d'onde ayant une composante non nulle parallèle à \mathbf{M} , si l'aimantation est perpendiculaire à la surface, nous parlons d'une géométrie polaire, alors que si elle est dans le plan, la configuration est dite longitudinale. Pour la géométrie transverse, l'aimantation est toujours dans le plan de la couche, et elle est perpendiculaire au plan d'incidence (voir figure 1.8).
Nom	(a) Polaire	(b) Longitudinal	(c) Transverse
configuration			× M
Détection	hors du plan	dans le plan	dans le plan
Variation de polarisation	Rotation Ellipticité	-07	
Mesures	Détermination de l'angle de rotation du plan de polarisation		Variation de l'intensité réfléchie

FIGURE 1.8 – Les trois configurations de l'effet Kerr magnéto-optiques (le trait pointillé correspond au plan d'incidence) [55].

Selon la configuration utilisée en pratique, nous pouvons avoir accès à l'évolution d'une composante donnée de l'aimantation (statique ou dynamique) et mesurer les effets magnétooptiques. Dans le cas d'une configuration polaire ou longitudinale, nous pouvons déterminer l'angle de rotation du plan de polarisation, θ_K , qui est proportionnel à l'aimantation. Pour une géométrie transverse, la mesure portera sur la variation de l'intensité transmise (voir figure 1.8). Généralement ces différentes configurations de l'effet Kerr donnent des rotations assez faibles (< 1 degré) et les variations d'intensité sont de l'ordre de 10^{-3} [39]. Pour des métaux de transition, les angles de rotation Kerr (en configuration polaire), à l'ambiante et dans le visible (domaine spectrale), sont de l'ordre de -7.28 mrad pour le Fe et de l'ordre de -2.31 mrad pour le Ni [39]. Pour le composé (Ga,Mn)As, l'angle de rotation Kerr est égale à 10 mrad à basse température [56].

Effet Voigt

Cet effet se manifeste lorsque la direction de propagation de la lumière est perpendiculaire à une composante de l'aimantation. Il traduit une biréfringence magnétique linéaire (BML) entre deux modes propres orthogonaux d'une polarisation rectiligne ou un dichroïsme magnétique linéaire (DML). Cet effet est quadratique par rapport à l'aimantation. Pour les composés (Ga,Mn)As, la rotation de polarisation du à l'effet Voigt est estimée à 0.85 mrad [57].

L'ensemble de ces effets sont représentés par un tenseur diélectrique généralisé. Pour les cristaux cubiques, ce tenseur a la forme suivante [58] :

$$\epsilon_r = \epsilon \begin{pmatrix} 1 & -iQm_z & iQm_y \\ iQm_z & 1 & -iQm_x \\ -iQm_y & iQm_x & 1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} B_1m_x^2 & B_2m_xm_y & B_2m_xm_z \\ B_2m_xm_y & B_1m_y^2 & B_2m_ym_z \\ B_2m_xm_z & B_2m_ym_z & B_1m_z^2 \end{pmatrix}$$
(1.17)

où ϵ représente à la constante diélectrique du matériau, Q est le paramètre de Voigt, (m_x, m_y, m_z) sont les composantes cartésiennes de l'aimantation réduite $(m_j = \frac{M_j}{M_S}, j=x,y,z)$, et B_1 et B_2 sont des paramètres magnéto-optiques décrivant l'effet Voigt. Pour un matériau isotrope, (B_1, B_2) sont égaux mais pour des cristaux présentant une symétrie cubique ils sont généralement différents.

En pratique, nous excitons l'échantillon avec une polarisation linéaire en incidence normale. Nous nous limitons alors dans la suite du travail aux effets Kerr polaire (détection de la composante perpendiculaire) et Voigt (détection de la composante planaire). Il faut noter aussi que l'effet Kerr polaire est indépendant de la direction de la polarisation linéaire dans le plan.

Afin d'illustrer les effets magnéto-optiques étudiés dans ce manuscrit, nous présentons un cycle d'hystérésis obtenu respectivement par effet Kerr polaire (voir la figure 1.9 (a)) et effet Voigt (voir la figure 1.9 (b)). Considérons une couche de (Ga,Mn)As épitaxiée en tension sur un substrat (Ga,In)As, nous constatons que le cycle d'hystérésis obtenu en effet Kerr (voir la figure 1.9 (a)) est carré, indiquant que l'axe cristallographique [001] est un axe facile d'aimantation [59]. Pour le cycle d'hystérésis obtenu grâce à l'effet Voigt (voir la figure 1.9 (b)), nous prenons un échantillon de (Ga, Mn)As_{0.957}P_{0.043} déposé sur un substrat de GaAs, en dessous de T = 60 K. Nous observons que la forme du cycle, avec une variation continue du signal (trajet (1,4)) et les "switching steps" (2) et (3), est typique d'une anisotropie magnétique biaxiale dans le plan [60].



FIGURE 1.9 – a : Cycle d'hystérésis correspondant en l'effet Kerr à T = 30K [59]. b : Cycle d'hystérésis obtenu grâce à l'effet Voigt [60].



FIGURE 1.10 – Schéma présentant la précession d'un moment magnétique \mathbf{M} autour d'un champ magnétique effectif \mathbf{B}_{eff}

1.7 Dynamique de l'aimantation

1.7.1 Équation de Landau-Lifshitz-Gilbert

Nous nous intéressons maintenant à la dynamique de l'aimantation qui sera étudiée expérimentalement dans le chapitre 3 dans le cadre du couplage magnéto-élastique. L'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) qui décrit cette dynamique, elle s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{B}_{eff} + \alpha \mathbf{M} \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}$$
(1.18)

où le champ effectif \mathbf{B}_{eff} est la somme du champ magnétique appliqué, du champ d'anisotropie et du champ démagnétisant. Il est défini par le gradient de l'énergie libre E_m par rapport à l'aimantation.

$$\mathbf{B}_{eff} = -\nabla_{\mathbf{M}} E_{\mathbf{m}} \tag{1.19}$$

Le premier terme dans l'équation (1.18) est le couple qui impose la précession de l'aimantation autour du champ effectif. En effet le retour à la position d'équilibre de l'aimantation est réalisée lorsque par $\mathbf{M}//\mathbf{B}_{eff}$. Le deuxième terme représente l'amortissement, qui amène l'aimantation à l'état (parallèle au champ effectif) où l'énergie est minimale.

Nous rappelons que pour estimer les coefficients K_i par FMR (voir 1.5.1), nous avons négligé l'effet d'amortissement ($\alpha \ll 1$). Pour le (Ga,Mn)As, α est de l'ordre de 0.03 [61]. La précession de l'aimantation est décrite uniquement par le premier terme.

1.7.2 Position d'équilibre de l'aimantation

La position d'équilibre de l'aimantation (θ_0, φ_0) est définie par la minimisation de l'énergie totale E_m , par rapport à θ et φ en utilisant les coefficients K_i mesurés par FMR. Pour l'échantillon étudié dans ce manuscrit, nous trouvons $\theta_0 = \frac{\pi}{2}$ ce qui correspond à une aimantation planaire. Nous présentons sur la figure (1.11), la variation de la position d'équilibre φ_0 en fonction du champ appliqué à différentes températures.



FIGURE 1.11 – Évolution de la position d'équilibre de l'aimantation en fonction du champ appliqué suivant la direction [110] pour l'échantillon 4EQ64r2. φ_0 est défini par rapport à [100] et $\theta_0 = \frac{\pi}{2}$.

A champ nul, l'anisotropie de la couche impose une aimantation spontanée orientée suivant l'axe facile [$\overline{1}10$]. L'augmentation progressive du champ appliqué selon la direction [110], modifie φ_0 et rapproche sa position de celle correspondante à l'orientation du champ. De plus, l'augmentation de la température adoucira le système et par conséquent diminuera le champ de saturation. C'est cette géométrie que nous utiliserons dans le chapitre 3.

1.7.3 Fréquence de précession

L'approximation de la précession aux petits angles, permet de linéariser l'équation LLG [14] :

$$-\dot{\delta\theta} = \frac{\gamma}{M_s \sin\theta_0} (E_{\varphi\varphi}\delta\varphi + E_{\varphi\theta}\delta\theta) + \alpha\dot{\delta\varphi} \frac{\sin\theta_0}{M_s}$$
(1.20)

$$\dot{\delta\varphi} = \frac{\gamma}{M_s \sin\theta_0} (E_{\theta\theta}\delta\theta + E_{\theta\varphi}\delta\varphi) + \frac{\alpha}{M_s \sin\theta_0}\dot{\delta\theta}$$
(1.21)

Dans notre cas l'aimantation est dans le plan de l'échantillon $(\theta_0 = \frac{\pi}{2}), E_{\theta\varphi} = 0 \forall \varphi_0$. Nous pouvons déterminer alors la fréquence de précession, Ω_p à partir de l'expression suivante :

$$\Omega_p = \frac{1}{\sqrt{1+\alpha^2}} \sqrt{\Omega_0^2 - \frac{\alpha^2 \gamma^2 \left(E_{\theta\theta} + E_{\varphi\varphi}\right)^2}{4M^2 \left(1+\alpha^2\right)}}$$
(1.22)

avec $\Omega_0 = \frac{\gamma}{M_s} \sqrt{E_{\theta\theta} E_{\varphi\varphi}}$.

Nous présentons sur la figure 1.12, les fréquences de précession calculées en utilisant l'équation (1.22). En champ nul, les fréquences de précession peuvent atteindre 3 GHz, une valeur trop élevée pour les exciter par des ondes acoustiques (<1 GHz). Si le champ appliqué est suivant l'axe difficile de l'aimantation, la fréquence diminue jusqu'à s'annuler au champ de saturation puis elle remonte et converge vers γH . Notons qu'en appliquant le champ le long de l'axe facile, nous ne pouvons qu'augmenter la précession de la fréquence. Il faut noter également que l'augmentation de la température diminue la fréquence de précession à champ donné du fait la dépendance des constantes d'anisotropie magnétique avec la température. Dans le chapitre 3, nous utiliserons l'abaissement de la fréquence avec le champ appliqué dans la géométrie choisie ici pour ajuster la fréquence de précession avec la fréquence d'une onde acoustique et étudier ainsi l'interaction magnéto-acoustique.



FIGURE 1.12 – Fréquence de précession calculée en fonction du champ appliqué suivant l'axe difficile [110] pour l'échantillon 4 EQ64r1 pour différentes valeurs de T.

Conclusion

A travers ce chapitre, nous avons présenté les propriétés électroniques et magnétiques d'un semi-conducteur magnétique dilué, en l'occurrence (Ga,Mn)As. Après avoir rappelé la structure

cristallographique et la croissance de ce matériau, nous avons donné un aperçu de l'origine du ferromagnétisme. Nous avons ainsi introduit les outils théoriques nécessaires pour les deux chapitres suivants : d'une part le Hamiltonien du système qui permettra dans le chapitre 2 de faire le lien entre déformation de cisaillement et anisotropie uniaxiale planaire, d'autre part les équations de la dynamique d'aimantation qui permettront de traiter l'interaction magnétoacoustique dans le chapitre 3.

2 Anisotropie magnétique uniaxiale et déformation

Sommaire

2.1		La magnéto-striction
2.2		Anisotropie magnéto-élastique
	2.2.1	Énergie magnéto-élastique et énergie élastique
	2.2.2	Relation entre l'énergie magnéto-cristalline et l'énergie magnéto-élastique
2.3		L'anisotropie uniaxiale planaire dans (Ga, Mn)As : une origine magnéto-élastique?
		État de l'art
2.4		Cadre théorique et modélisation
	2.4.1	Description microscopique
	2.4.2	Principe du calcul
	2.4.3	Vérication de la forme d'énergie utilisée
2.5		Anisotropie magnétique en fonction de la densité de porteurs
	2.5.1	Anisotropie uniaxiale perpendiculaire
	2.5.2	Anisotropie cubique
	2.5.3	Comparaison avec la FMR
2.6		Anisotropie magnétique et déformation
	2.6.1	Déformation épitaxiale
	2.6.2	Déformation de cisaillement
2.7		Détection expérimentale du cisaillement
	2.7.1	Contexte d'étude et motivation
	2.7.2	Stratégie de mesure
	2.7.3	Configuration expérimentale
	2.7.4	Diffraction anomale
	275	Détection de déformation de cisaillement

Nous commençons le présent chapitre en introduisant le couplage entre l'aimantation d'un matériau et ses déformations. Après avoir rappelé les expressions des énergies magnéto-élastiques, nous établissons les relations entre les constantes magnéto-cristallines et les coefficients magnétoélastiques. En supposant que la constante d'anisotropie magnétique uniaxiale planaire provient d'une origine magnéto-élastique, nous nous proposons un modèle théorique pour calculer cette constante d'anisotropie en fonction de la déformation. Nous cherchons ainsi à estimer la déformation de cisaillement qui rend compte de cette anisotropie en utilisant les mesures de FMR. Par la suite, nous tentons de prouver expérimentalement, à travers des expériences de DRX, l'existence d'une telle déformation.

2.1 La magnéto-striction

Les interactions entre spins, responsables du ferromagnétisme, sont sensibles à la distance inter-atomique. A courte distance, des forces d'origine purement quantiques tels que les forces d'échange de Heisenberg [62] qui s'exercent entre les atomes magnétiques engendrent une déformation homogène de la maille. Le couplage magnéto-élastique décrit par cette simple variation de volume qui n'affecte pas la symétrie du cristal, traduit la magnétostriction spontanée de l'échange.

En appliquant un champ magnétique sur des matériaux ferromagnétiques, leurs moments magnétiques atomiques s'orientent suivant une même direction provoquant une déformation de la maille. En effet, les orbitales des atomes sont déformées par la présence du moment magnétique de spin. Ce phénomène traduisant ce couplage entre l'aimantation du matériau et les déformations, appelé magnétostriction anisotrope, trouve son origine dans les interactions d'échange anisotrope et les effets de champ cristallin. Il a été découvert en 1842 par le physicien anglais James Prescott Joule en remarquant qu'un barreau de fer se dilate suivant la direction du champ auquel il est soumis. Sur la figure (2.1), nous illustrons l'effet de la magnétostriction anisotrope sur une substance ferromagnétique désaimantée isotrope ayant la forme d'une sphère [39]. L'application du champ magnétique transforme cette sphère en ellipsoïde de révolution. Inversement, lorsqu'une contrainte est exercée sur une substance magnétique, nous observons une modification de la direction de de l'aimantation. Dans cette thèse, nous nous intéresserons à ce dernier effet.



FIGURE 2.1 – Schéma illustrant les deux modes principaux de la magnétostriction [39].

2.2 Anisotropie magnéto-élastique

2.2.1 Énergie magnéto-élastique et énergie élastique

En l'absence de contrainte, l'anisotropie magnéto-cristalline impose la direction de l'aimantation. Pour un cristal déformable, à cette contribution purement magnétique s'ajoutent l'énergie magnéto-élastique (E_{mel}) et l'énergie élastique (E_{el}) dues au couplage entre les déformations et l'état de l'aimantation.

Tout d'abord, nous présentons l'expression de l'énergie magnéto-élastique qui s'écrit, en se limitant à l'ordre 1 en déformation ϵ_{ij} et à l'ordre 2 en m_i , sous la forme suivante [39] :

$$E_{mel} = B_1 \epsilon_{ii} (m_i^2 - \frac{1}{3}) + B_2 \epsilon_{ij} m_i m_j$$
(2.1)

où les m_i représentent les cosinus directeurs de l'aimantation, B_1 et B_2 sont appelés les coefficients de couplage magnéto-élastique et nous avons utilisé ici la convention de sommation des indices répétés.

Nous présentons aussi l'expression de l'énergie élastique [63], en fonction des éléments du tenseur d'élasticité C_{ijkl} et le tenseur de déformation ϵ_{ij} , ϵ_{kl} , sous la forme suivante :

$$E_{el} = \frac{1}{2} C_{ijkl} \epsilon_{ij} \epsilon_{kl} \tag{2.2}$$

avec les indices i, j, k, l = x, y, z.

Pour expliciter cette énergie, nous commençons par présenter le tenseur d'élasticité sous une forme matricielle en effectuant une contraction des indices : $((i, j)(k, l)) \rightarrow (\mu, \nu)$. Pour un cristal cubique, les éléments non nuls de la matrice d'élasticité C_{ij} sont donnés :

$$C_{ij} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix}$$

Nous pouvons ainsi déterminer l'expression de l'énergie élastique :

$$E_{el} = \frac{1}{2}C_{11}(\epsilon_{xx}^2 + \epsilon_{yy}^2 + \epsilon_{zz}^2) + C_{12}(\epsilon_{yy}\epsilon_{zz} + \epsilon_{xx}\epsilon_{zz} + \epsilon_{xx}\epsilon_{yy}) + 2C_{44}(\epsilon_{xy}^2 + \epsilon_{yz}^2 + \epsilon_{zx}^2) \quad (2.3)$$

Nous remarquons que E_{el} ne dépend que de la déformation du cristal. De plus, nous pouvons déterminer la position d'équilibre de l'aimantation ainsi que la déformation qui résulte de l'orientation de l'aimantation en minimisant la quantité $(E_{mel} + E_{el})$ par rapport à ϵ_{ij} . Les composantes de cette déformation d'équilibre sont données comme suit :

$$\epsilon_{ii} = \frac{B_1(C_{12} - m_i^2(C_{11} + C_{12}))}{3(C_{11} - C_{12})(C_{11} + 2C_{12})}$$
(2.4)

$$\epsilon_{ij} = \frac{-2B_2}{C_{44}} m_i m_j \ (i \neq j) \tag{2.5}$$

Cette déformation résultant de la magnétostriction peut aussi être interprétée en termes des constantes de magnétostriction λ_{100} et λ_{111} . Pour les composés massifs, les coefficients de couplage magnéto-élastiques peuvent être calculés à partir des constantes de magnétostriction :

$$\lambda_{100} = -\frac{2}{3} \frac{B_1}{C_{11} - C_{12}} \tag{2.6}$$

$$\lambda_{111} = -\frac{1}{3} \frac{B_2}{C_{44}} \tag{2.7}$$

où λ_{100} (λ_{111}) représente l'allongement maximal mesuré selon la direction [100] (la direction [111]).

Pour les composés de type (Ga, Mn)As, nos calculs montreront (voir § 2.6.2) que la déformation résultante de la magnétostriction peut atteindre une valeur de 0.001% qui demeure faible par rapport à la déformation épitaxiale qui est de l'ordre de 0.2% pour l'échantillon étudié dans ce travail.

2.2.2 Relation entre l'énergie magnéto-cristalline et l'énergie magnéto-élastique

L'énergie magnéto-élastique peut être déterminée dans le cas du cristal libre où la déformation résulte de l'orientation de l'aimantation ou bien dans le cas de contrainte d'origine nonmagnétique. Dans ce travail, nous nous intéressons au dernier cas du fait que lorsque la couche mince est épitaxiée sur un substrat, elle n'est plus libre de se déformer en fonction de l'orientation de l'aimantation. Nous exprimons alors d'une autre façon l'énergie magnéto-élastique en fonction des constantes de magnétostriction et de la contrainte appliquée [64] :

$$E_{mel} = -\frac{3}{2}\lambda_{100}\sum_{i}\sigma_{ii}(m_i^2 - \frac{1}{3}) - 3\lambda_{111}\sum_{i>k}\sigma_{ik}(m_im_k)$$
(2.8)

où σ_{ij} est le tenseur de contrainte avec $\sigma_{ij} = C_{ijkl}\epsilon_{kl}$.

Pour les composés de type (Ga, Mn)As, il existe d'une part des contraintes biaxiales provenant de l'épitaxie de la couche dans le plan (voir chapitre 1 §1.3), et d'autre part une contrainte de cisaillement réelle ou effective. Dans la suite, nous présenterons (voir 2.3) une revue détaillée de la littérature discutant l'existence de la contrainte de cisaillement et ses origines possibles. En respectant les conditions aux limites de l'échantillon et en utilisant les relations reliant contrainte et déformation, nous déduisons l'expression suivante :

$$E_{mel} = -\lambda_{100}(C_{11} - C_{12})(\epsilon_{zz} - \frac{\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}}{2})(m_z^2 - \frac{m_x^2 + m_y^2}{2}) + 6\lambda_{111}C_{44}\epsilon_{xy}m_xm_y$$
(2.9)

Nous pouvons maintenant comparer cette expression (2.9) avec la forme habituelle de l'anisotropie magnéto-cristalline (E_{mc}) :

$$E_{mc} = -K_{2\perp}m_z^2 - \frac{1}{2}K_{4\perp}m_z^4 - \frac{K_{4\parallel}}{2}(m_x^4 + m_y^4) - \frac{1}{2}K_{2\parallel}(m_y - m_x)^2$$
(2.10)

L'identification des termes du second ordre par rapport à l'aimantation réduite m, à savoir $K_{2\parallel}$ et $K_{2\perp}$, conduit alors aux relations suivantes :

$$K_{2||} = 2B_2\epsilon_{xy} = -6C_{44}\lambda_{111}\epsilon_{xy} \tag{2.11}$$

$$K_{2\perp} = -\frac{2C_{12} + C_{11}}{2C_{12}}B_1\epsilon_{zz} + B_2\epsilon_{xy}$$

$$=\frac{3}{2}\frac{(2C_{12}+C_{11})(C_{11}-C_{12})}{2C_{12}}\lambda_{100}\epsilon_{zz}-3C_{44}\lambda_{111}\epsilon_{xy}$$
(2.12)

D'après les équations (2.11-2.12), nous constatons que $K_{2\parallel}$ dépend uniquement de ϵ_{xy} contrairement à $K_{2\perp}$ qui est liée à la fois à la déformation biaxiale et à la déformation de cisaillement. Ceci introduit un lien entre $K_{2\perp}$ et $K_{2\parallel}$ (ou entre λ_{100} et λ_{111}) quoique nous avons montré précédemment (voir 2.2.1) que les paramètres décrivant l'interaction magnéto-élastique sont indépendants.

Pour l'échantillon étudié dans ce travail, nous obtenons à partir des constantes d'anisotropie magnétique uniaxiale calculées à T = 4 K (voir 2.6) : $\lambda_{100} \simeq -27$ ppm et $\lambda_{111} \simeq -26$ ppm qui sont comparables aux valeurs d'autres métaux magnétostrictifs ferromagnétiques tels que le Nickel ($\lambda_{100} \simeq -46$ ppm, $\lambda_{111} \simeq -24$ ppm) et le Fer ($\lambda_{100} \simeq 20$ ppm, $\lambda_{111} \simeq -21$ ppm). Nous constatons aussi que $\lambda_{100} \simeq \lambda_{111}$ indiquant une magnétostriction quasi isotrope pour le composé (Ga, Mn)As. Remarquons que pour le même composé (Ga, Mn)As nos prédictions sont assez proches des mesures de Bihler et collaborateurs [65] ($\lambda_{111} \simeq 3$ ppm) et Masmanidis et collaborateurs [66] ($\lambda_{111} \simeq 7.5$ ppm). Ce désaccord peut être expliqué par le fait que leurs échantillons ne sont bien optimisés (faible température de Curie 57 K et 85 K). L'origine physique de l'anisotropie magnétique uniaxiale planaire est encore largement débattue, nous consacrons le paragraphe suivant à donner un aperçu sur cette anisotropie en présentant une synthèse sur les résultats des travaux théoriques et expérimentaux existants dans la littérature.

2.3 L'anisotropie uniaxiale planaire dans (Ga, Mn)As : une origine magnéto-élastique? État de l'art

L'anisotropie magnétique uniaxiale planaire joue un rôle important dans la réalisation des dispositifs de stockage d'information par le biais d'un codage binaire dû à l'orientation locale de l'aimantation suivant deux directions opposées. L'élaboration de ces composants exige une compréhension approfondie de cette anisotropie uniaxiale. Pour une maille cubique de type blende de zinc, les axes cristallographiques < 110 > sont équivalents. Toutefois de nombreuses études expérimentales sur (Ga,Mn)As, basées sur des mesures magnéto-optiques [67], de magnéto-transport [68], de magnétométrie [40] et de résonance ferromagnétique [69, 70], ont montré que les axes [110] et [110] sont magnétiquement distincts. Cette brisure de symétrie traduit l'existence d'un champ d'anisotropie magnétique uniaxiale. Pour une couche de (Ga,Mn)As déposée en compression sur un substrat GaAs et ayant une aimantation à saturation M_s de l'ordre de 50 kA/m, le champ d'anisotropie magnétique uniaxiale planaire a une valeur maximale à basse température, estimé à 0.04 T. Il est dix fois plus faible que le champ d'anisotropie magnétique uniaxiale perpendiculaire au plan de la couche, qui est de l'ordre de 0.33 T. Cette anisotropie planaire existe dans d'autres matériaux cubiques, en couches de quelques nanomètres comme par exemple des couches de Fe épitaxiées sur un substrat GaAs [71]. Il s'agit ainsi d'un effet d'interface qui disparait pour des couches épaisses. Induire une anisotropie planaire uniaxiale pour des couches non-épitaxiées reste difficile à réaliser. Pour cela il est possible d'imposer un angle d'incidence entre la source par rapport au substrat pendant la croissance ou bien « l'exchange bias » avec une couche anti-ferromagnétique en dessous ou au dessus.

L'origine physique de l'anisotropie magnétique uniaxiale planaire dans le (Ga,Mn)As et les paramètres dont elle dépend font l'objet d'un débat profond dans la communauté qui est loin d'être résolu jusqu'à maintenant. Ces dernières années, des études à la fois expérimentales [40, 72, 73, 74, 75, 76, 43, 44] et théoriques [77, 78, 79, 80] en lien avec ce problème se sont poursuivies afin d'élucider la cause de cette anisotropie.

Sawicki et collaborateurs [40] à travers des mesures de magnétométrie SQUID sur des couches (Ga,Mn)As, ont montré que cette anisotropie dépend de la concentration des trous et de la température. En effet en soumettant leurs échantillons à un recuit à basse température, ils ont observé que l'axe facile de l'aimantation peut pivoter de la direction [110] vers la direction [110] à partir d'une valeur seuil de la densité de porteurs égale à 6×10^{20} cm⁻³ (voir figure 2.2 (a)). Pour interpréter leurs résultats, les auteurs de la référence [40] ont adopté le modèle de Zener en introduisant, dans le Hamiltonien du système, un terme traduisant une déformation de cisaillement ϵ_{xy} . Ils ont calculé les champs d'anisotropie magnétique uniaxiale dans le plan pour $\epsilon_{xy} = 0.05 \%$ en fonction respectivement de la densité des trous, du splitting d'échange de la bande de valence, B_g , et de la température (voir figure 2.2 (b)). De cette étude, il ressort la tendance suivante : un basculement de l'axe facile de l'aimantation de la direction [110] vers la direction [110] en



FIGURE 2.2 – (a) L'orientation de l'axe facile en fonction respectivement de la densité de porteur, la concentration en Mn et la température (b) Variation du champ d'anisotropie uniaxiale en fonction de la densité de porteur pour différentes valeurs de splitting d'échange dans le (Ga,Mn)As [40]

augmentant la densité de porteurs et la température. Il s'en suit que la température et la densité de porteurs constituent des outils pertinents pour manipuler l'anisotropie magnétique uniaxiale. En revanche, Thevenard et collaborateurs [72], en exploitant la technique de la passivation par plasma d'hydrogène mono-atomique de la couche de (Ga,Mn)As, ont montré que la variation de l'anisotropie uniaxiale planaire en fonction de la densité du porteur est faible. L'effet de la densité de porteurs sur l'anisotropie magnétique n'est donc pas clair : il pourrait être plutôt l'effet de la polarisation de spin.

En outre, il est possible d'imposer une anisotropie post-croissance en exploitant la technique de la lithographie. Hashimoto et collaborateurs [73] ont observé, après la gravure d'un barreau de (Ga,Mn)As de largeur $1 \sim 3 \,\mu$ m, que la reconstruction de la surface d'échantillon induit une relaxation des contraintes suivant la direction perpendiculaire à l'orientation de la barre. Ils ont mis en évidence, à travers des mesures de la résistivité de Hall, que la relaxation de la contrainte fait disparaitre l'anisotropie uniaxiale. De même, Wunderlich et collaborateurs [75] ont observé que les barreaux de (Ga,Mn)As, gravés selon les directions [110] et [110], relaxent différemment induisant une anisotropie uniaxiale différente de celle observée habituellement dans des films de (Ga,Mn)As. Une autre méthode proposée par Rushforth et collaborateurs [76], consiste à moduler l'anisotropie uniaxiale en introduisant une contrainte de cisaillement ϵ_{xy} dans le plan variant de 2×10^{-4} à 3×10^{-4} . Ils ont placé une couche de (Ga,Mn)As sur des transducteurs piézo-électriques entrainant une déformation ce qui provoque la rotation de l'anisotropie uniaxiale planaire.

Une autre hypothèse envisage l'existence d'un gradient de la contrainte biaxiale. Ceci a pour effet d'abaisser la symétrie du cristal, de D_{2d} à C_{2v} , et donc d'induire une anisotropie uniaxiale. Zhou et collaborateurs [74] ont montré, via des mesures RBS/C (Abréviation anglaise de Rutherford backscattering/channeling spectrometry), l'existence d'une distorsion tétragonale dans les couches de (Ga,Mn)As indépendante de l'épaisseur. Toutefois, il faut noter que la barre d'erreur dans leurs mesures est du même ordre de grandeur que la déformation mettant en doute la fiabilité de leur résultat.

Le fait que l'anisotropie uniaxiale peut provenir d'une déformation trigonale de la maille

cubique (décrite par une contrainte de cisaillement) est une hypothèse envisageable. Toutefois, Welp et collaborateurs [43] ont démontré, via des mesures de diffraction de rayons X, que cette contrainte semble être trop faible pour être détectée expérimentalement. De plus, ils suggèrent par des calculs numériques que l'anisotropie uniaxiale est plutôt due à l'incorporation préférentielle des atomes de Mn selon certaines directions du plan du substrat GaAs (001) lors de la croissance. Une autre alternative pour expliquer l'origine de cette anisotropie magnétique a été proposée par Kopecky et collaborateurs [44]. En effet, à travers des expériences de diffraction de rayons X, ils ont observé des fautes d'empilement dans les plans (111) et (1-11) et ceci uniquement dans les couches de (Ga,Mn)As (post-croissance ou recuit). Il semble que ces défauts attirent préférentiellement le Mn dans certaines directions engendrant une anisotropie structurelle exempte de contrainte.

En parallèle, des études théoriques modélisant l'anisotropie magnétique uniaxiale ont été entreprises afin d'interpréter les données expérimentales disponibles dans la littérature. Ces modèles théoriques s'appuient sur des approches distinctes. La première, basée sur la théorie **k.p** multibandes et des considérations de symétrie, utilise les approximations du champ moyen et du cristal virtuel dans lesquelles la distribution des manganèses (en site substitutionnel) est remplacée par un atome moyen. Zemen et collaborateurs [77], mettent en évidence une compétition entre l'anisotropie cubique selon < 100 > et l'anisotropie uniaxiale suivant < 110 >. Dans leur formalisme, ils utilisent un modèle \mathbf{k} . \mathbf{p} à 6 bandes incluant la bande de valence de symétrie p. Ils introduisent de façon phénoménologique un terme supplémentaire dans le Hamiltonien du système qui décrit la contrainte de cisaillement, ϵ_{xy} , dans le plan des couches. Ceci a pour effet d'abaisser la symétrie du système, de tétragonale à C_{2v} , et donc de discerner les directions [110] et [$\overline{1}10$]. A faible contrainte de cisaillement, c'est à dire pour des contraintes de l'ordre $\epsilon_{xy} = 0.01$ %, c'est l'anisotropie cubique qui impose l'orientation de l'aimantation (l'axe facile). Pour une contrainte de cisaillement $\epsilon_{xy} = 0.03 \,\%$, l'anisotropie cubique n'est plus dominante, l'axe facile commence à basculer vers la direction $[1\overline{1}0]$. L'aimantation finira par s'orienter totalement vers la direction $[1\bar{1}0]$ pour des contraintes de cisaillement $\epsilon_{xy} \gtrsim 0.05 \%$. Les prédictions théoriques issues de ce modèle ont été confrontées aux résultats expérimentaux. Les figures 2.3 issues de l'article [77] présentent la variation de l'énergie d'anisotropie magnétique en fonction de la densité de trous et de la température, pour une contrainte $\epsilon_{xy} = 0.01 \%$ et une concentration de Mn respectivement égale à x = 3% et x = 7%. Les flèches en trait plein indiquent les réorientations d'axes faciles observées expérimentalement [67, 41, 81]. Ce calcul théorique rend bien compte qualitativement des résultats expérimentaux

Une deuxième approche théorique utilise des calculs ab-initio faisant appel à la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Elle met en jeu principalement des interactions Coulombiennes entre deux types porteurs de spin opposés. Contrairement à la méthode **k.p**, ce modèle emploie peu de paramètres ajustables et ne fait pas intervenir des termes phénoménologiques. L'énergie du système est exprimée en fonction de la densité électronique et de la position des atomes dans la maille. Récemment, Birowska et collaborateurs [80] ont calculé les énergies d'anisotropie magnétique dans le (Ga,Mn)As en arrangeant les ions Mn en dimères. Ils ont prouvé que la formation de la paire Mn-Mn sur la surface (001) est énergétiquement plus favorable suivant



FIGURE 2.3 – La variation de l'énergie d'anisotropie magnétique en fonction de la densité de trous et de la température, pour une contrainte $\epsilon_{xy} = 0.01\%$ et une concentration de Mn respectivement égale à x = 3% (a) et x = 7% (b). Les codes couleurs indiquent l'axe facile d'aimantation et les flèches en trait plein indiquent les réorientations d'axes faciles observées expérimentalement [77]

la direction [110]. Cette distribution préférentielle en dimères équivaut à l'ajout d'un terme de même symétrie qu'une déformation de cisaillement dans le Hamiltonien **k.p**. Leur modélisation prédit $\epsilon_{xy} = 0.70$ %, valeur nettement supérieure à celle issue du modèle **k.p** qui permet de rendre compte de l'anisotropie magnétique uniaxiale déterminée expérimentalement $\epsilon_{xy} = 0.05$ %.

Un modèle en liaisons fortes à N corps a été proposé par Subramanian et collaborateurs [78] dans lequel l'hypothèse d'un alignement en dimère pour les ions Mn n'a pas été retenue. Les ions Mn sont considérés comme isolés et chaque Mn^{2+} substitutionnel est situé dans un site tétraédrique formant quatre liaisons avec les atomes d'arsenic (As) proche voisins. Dans leur modélisation, en tenant compte d'une distorsion locale autour de Mn, ils ont introduit une dissymétrie suivant z en déplaçant l'ion Mn. Ceci a pour effet d'allonger deux des liaisons Mn-As et de raccourcir les deux autres. Le Mn interagit préférentiellement avec la paire d'As proche voisin. Dans ces conditions, une anisotropie uniaxiale planaire a été mise en évidence accompagnée d'un basculement de l'axe facile de l'aimantation entre les directions [110] à [110].

2.4 Cadre théorique et modélisation

Après cette discussion des alternatives possibles pour l'origine de l'anisotropie magnétique uniaxiale planaire, nous présentons une approche théorique et numérique afin de modéliser les constantes d'anisotropie magnétique uniaxiale et d'estimer la déformation de cisaillement nécessaire pour obtenir $K_{2\parallel}$ compatible avec les valeurs expérimentales issues des mesures FMR. Nous présenterons ensuite (§ 2.7) nos tentatives pour détecter cette déformation à partir des mesures DRX.

2.4.1 Description microscopique

L'anisotropie magnétique traduit la dépendance de l'énergie libre du système de moments magnétiques en fonction de l'orientation de l'aimantation. Le champ effectif qui agit sur l'aimantation est déterminé à partir du gradient de l'énergie magnétique par rapport à l'aimantation **M**. De plus, les auteurs de la référence [82] définissent ce champ effectif comme suit :

$$B_{eff} = -\frac{\partial F_c(\mathbf{M})}{\partial M} + B_{ext} \tag{2.13}$$

où F_c est l'énergie totale des trous et B_{ext} est le champ extérieur.

Nous pouvons alors déterminer l'anisotropie magnétique à partir de l'énergie $F_c(\mathbf{M})$. Dans le cadre de la théorie statistique microscopique, l'énergie $F_c(\mathbf{M})$ est évaluée à travers l'expression suivante [82] :

$$F_c(\mathbf{M}) = -k_B T \int d\varepsilon \,\rho(\varepsilon) \ln(1 + \exp(-\frac{\varepsilon(\mathbf{M}) - \varepsilon_F(p, \mathbf{M})}{k_B T})) + p\varepsilon_F(p, \mathbf{M})$$
(2.14)

où $\rho(\varepsilon)$ désigne la densité des états, ε_F l'énergie de Fermi et p la densité de porteurs.

Pour une énergie de Fermi $\varepsilon_F \gg k_B T$, nous avons $\ln(1 + \exp(-\frac{\varepsilon(\mathbf{M}) - \varepsilon_F(p, \mathbf{M})}{k_B T})) \approx -\frac{\varepsilon(\mathbf{M}) - \varepsilon_F(p, \mathbf{M})}{k_B T}$ Dans la gamme d'énergie et de température considérées, l'énergie libre coïncide avec l'énergie interne du système (chapitre 1 §1.4.2). L'équation (2.14) devient alors :

$$F_c(\mathbf{M}) = \int_0^p dp' \varepsilon_F(\mathbf{M}, p') \tag{2.15}$$

Pour calculer $F_c(\mathbf{M})$, nous devons intégrer l'énergie de Fermi par rapport à la concentration en trous pour diverses orientations de l'aimantation. Remarquons que la contribution dominante dans l'énergie libre provient de l'effet du couplage spin-orbite sur les porteurs de la BV [25]. Nous pouvons alors déterminer l'anisotropie magnéto-cristalline à partir de la variation de $F_c(M)$ en fonction de l'aimantation par rapport aux axes cristallographiques [25]. A température nulle, F_c coïncide avec l'énergie moyenne de porteurs : $F_c = E = E_{c,moy}$.

2.4.2 Principe du calcul

Nous calculons l'énergie moyenne des porteurs, $E_{c,moy}(p, M)$, en fonction de la densité de trous pour différentes orientations de l'aimantation. Dans notre modélisation, nous avons adopté le modèle développé par Dietl et collaborateurs [82] utilisant un Hamiltonien effectif \mathcal{H} , englobant le Hamiltonien de Kohn-Luttinger à six bandes [83], un Hamiltonien d'échange et un Hamiltonien traduisant les effets de la contrainte (voir chapitre 1, paragraphe 1.3). Nous avons ajouté une déformation de cisaillement ϵ_{xy} , dans le Hamiltonien des contraintes, pour rendre compte de l'anisotropie magnétique uniaxiale planaire (voir chapitre 2) [77]. Nous exprimons l'énergie moyenne des porteurs en fonction de la densité de trous :

$$E_{c,moy}(p,\mathbf{M}) = \int_{0}^{p} (E_{0max}(\mathbf{M}) - E_F(\mathbf{M}, x))dx$$
(2.16)

où E_{0max} désigne l'énergie du sommet de la BV et $E_F > 0$.

$$E_{c,moy}(p,\mathbf{M}) = E_{0max}(\mathbf{M}) p - \int_{0}^{p} E_F(\mathbf{M}, x) dx$$
(2.17)

La méthodologie du calcul de cette énergie consiste à déterminer la relation entre la densité de porteurs et l'énergie de Fermi. Nous commençons par calculer les relations de dispersion de la BV à partir du Hamiltonien \mathcal{H} . Nous rappelons que la détermination de E_{0max} et E_F en fonction de p dépend de l'orientation de l'aimantation.

La densité de porteurs en fonction de l'énergie s'obtient en intégrant sur l'ensemble de la BV :

$$p = \sum_{n \text{ bandes}} \int_{E_{0max,n}}^{E_{0max}-E_F} \rho(E) \, dE \tag{2.18}$$

avec $\rho(\varepsilon) = \frac{\partial p}{\partial \epsilon}$.

Dans l'espace réciproque, p est exprimée comme suit :

$$p = \frac{1}{(2\pi)^3} \sum_{n=1}^6 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} d\theta \int_0^{k_{F_n}} k(\theta, \varphi)^2 \sin(\theta) dk$$
(2.19)

où $\frac{1}{(2\pi)^3}$ est le terme de densité d'états dans l'espace réciproque, qui représente le volume élémentaire dans l'espace réciproque, et k_{F_n} est le vecteur d'onde de Fermi pour la bande d'indice n.

Numériquement, nous avons utilisé la méthode d'intégration de Gauss-Legendre, dont la formule de base est donnée par :

$$\int_{a}^{b} P(x)dx = \frac{b-a}{2} \sum_{i=1}^{n} w_i P(\frac{b-a}{2}x_i + \frac{a+b}{2})$$

où x_i est le ième zéro du polynôme de Legendre P(x) et $w_i = \frac{2}{(1-x_i^2)(P'(x_i))^2}$ désigne le poids associé à chaque point de l'intégration.

Le recours à cette méthode est utile afin de raccourcir le temps de calcul des intégrales en réduisant le nombre de points et obtenir ainsi la densité de porteurs en fonction de l'énergie de Fermi.

Une fois le calcul de la concentration de porteurs en fonction de l'énergie de Fermi pour chaque orientation de l'aimantation réalisé, nous pouvons alors déterminer l'énergie moyenne des porteurs à partir de l'équation (2.17). Une comparaison entre la théorie microscopique et la description phénoménologique de l'anisotropie magnéto-cristalline (voir chapitre 1, paragraphe 1.4.2) permettra de déterminer les coefficients d'anisotropie magnétique. Nous explicitons cidessous, le système reliant l'énergie magnéto-cristalline E_m , à l'énergie électronique $E_{c,moy}$ en champ nul. Nous rappelons que l'expression de E_m est donnée par [42] (cf. (1.8) avec $\mu_0 H = 0$ et $\mathbf{B}_{\mathbf{d}} = 0$) :

$$E_m(\theta,\varphi) = -K_{2\perp}\cos^2\theta - \frac{1}{2}K_{4\perp}\cos^4\theta - \frac{K_{4\parallel}}{2}\frac{(3+\cos^4\varphi)}{4}\sin^4\theta - K_{2\parallel}\sin^2\theta\sin^2(\varphi - \frac{\pi}{4})$$
(2.20)

Pour une aimantation hors plan du substrat et suivant les directions [001] et [101], nous obtenons :

$$E_m(\theta = 0, \varphi = 0) = E_0 - K_{2\perp} - \frac{K_{4\perp}}{2} = -E_{c,moy}(M/[001])$$
(2.21)

$$E_m(\theta = \frac{\pi}{4}, \varphi = 0) = E_0 - \frac{K_{2\perp}}{2} - \frac{K_{4\perp}}{8} - \frac{K_{4\parallel}}{8} - \frac{K_{2\parallel}}{4} = -E_{c,moy}(M/[101])$$
(2.22)

Pour une aimantation dans le plan du substrat, respectivement suivant les directions [100], [110] et $[1\overline{1}0]$, nous avons :

$$E_m(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = 0) = E_0 - \frac{K_{4\parallel}}{2} - \frac{K_{2\parallel}}{2} = -E_{c,moy}(M/[100])$$
(2.23)

$$E_m(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = \frac{\pi}{4}) = E_0 - \frac{K_{4\parallel}}{4} = -E_{c,moy}(M/[110])$$
(2.24)

$$E_m(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = \frac{3\pi}{4}) = E_0 - \frac{K_{4\parallel}}{4} - K_{2\parallel} = -E_{c,moy}(M/[1\bar{1}0])$$
(2.25)

où E_0 est une énergie de référence mais qui n'intervient pas dans le calcul des coefficients K_i .

La résolution du système d'équations (2.21 - 2.25) permettra alors de déterminer les constantes d'anisotropie pour une concentration p donnée. Par exemple, le coefficient d'anisotropie magné-

tique uniaxiale $K_{2\parallel}$ est obtenu à partir de la différence de l'énergie totale de porteurs pour les deux directions d'aimantation [110] et [110] :

$$K_{2\parallel} = E_{c,moy}(M/[110] - E_{c,moy}(M/[1\bar{1}0])$$
(2.26)

D'autres combinaisons de directions de l'aimantation permettent de déduire les autres coefficients d'anisotropie magnétique.

2.4.3 Vérification de la forme d'énergie utilisée

L'objectif des calculs microscopiques discutés ci-dessus est tout d'abord de justifier l'expression phénoménologique de l'anisotropie magnétique, et ensuite d'expliciter la dépendance des constantes d'anisotropie magnétique avec la densité de porteurs ainsi que la déformation.

Nous nous proposons d'étudier la dépendance de E_m dans les plans (010) et (001) par rapport à l'aimantation de référence prise suivant la direction [110]. Il faut donc évaluer numériquement $\Delta E_m = E_m (\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = \frac{\pi}{4}) - E_m(\theta, \varphi)$, avec $E_m (\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = \frac{\pi}{4}) = E_m$ (direction de l'aimantation de référence). Les résultats obtenus (voir la figure 2.4) seront alors ajustés par un fit en utilisant d'une part l'équation (2.27) pour les variations en fonction de θ en fixant $\varphi = \frac{\pi}{4}$, et d'autre part l'équation (2.28) pour la dépendance en φ en fixant $\theta = \frac{\pi}{4}$:

$$\Delta E_m(\theta) = E_m(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = \frac{\pi}{4}) - E_m(\theta, \varphi = \frac{\pi}{4}) = K_{2\perp} \cos^2\theta + \frac{K_{4\perp}}{2} \cos^4\theta + \frac{K_{4\parallel}}{4} \sin^4\theta \tag{2.27}$$

$$\Delta E_m(\varphi) = E_m(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = \frac{\pi}{4}) - E_m(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi) = -K_{4\parallel}(1 + \cos 4\varphi) + K_{2\parallel}\sin^2(\varphi - \frac{\pi}{4})$$
(2.28)



FIGURE 2.4 – Variation de ΔE pour $p = 4.10^{20} \text{ cm}^{-3}$ en fonction de (a) l'angle polaire θ , (b) l'angle azimutal φ . (c) Position de l'aimantation par rapport aux directions cristallographiques considérées.

L'ajustement excellent des résultats issus de la théorie microscopique montre que l'énergie libre des spins des ions Mn est bien décrite par la description phénoménologique qui fait appel aux constantes d'anisotropie magnétiques $(K_{2\perp}, K_{4\perp}, K_{4\parallel}, K_{2\parallel})$. Cette approche microscopique que nous venons d'exposer sera utilisée pour étudier l'évolution des constantes d'anisotropie magnétique en fonction de la densité de porteurs sachant qu'il est possible de contrôler expérimentalement cette densité [84]. L'effet de la déformation à la fois épitaxiale et de cisaillement sur les propriétés magnétiques sera aussi abordé.

2.5 Anisotropie magnétique en fonction de la densité de porteurs

De nombreux travaux expérimentaux [40, 72, 76, 73] ont mis en évidence que la direction de l'axe facile d'aimantation est sensible à différents paramètres comme la densité de porteurs et la déformation épitaxiale. Ceci a pour conséquence de modifier la position relative de la BV en lien avec les effets combinés de la contrainte et de l'échange, et d'influencer son remplissage c'est à dire la position du niveau de Fermi. Nous commençons tout d'abord par étudier l'influence de la densité de porteurs. Notons que les calculs numériques exposés dans ce chapitre concernent l'échantillon 4EQ64r1 ayant une aimantation à saturation de l'ordre 51.3 kA/m correspondant à $B_g = -30$ meV avec $N_0\beta_{pd} \approx -1.2$ eV [34] et $A_F = 1.2$ [25]. De plus, le désaccord de maille de cet échantillon, 3860 ppm, impose qu'on soit dans un régime de déformation en compression avec $\epsilon_{xx} = -0.2\%$.

2.5.1 Anisotropie uniaxiale perpendiculaire

L'évolution de $K_{2\perp}$ en fonction de la densité de porteurs est représentée sur la figure (2.5):



FIGURE 2.5 – La variation de la constante d'anisotropie $K_{2\perp}$ en fonction de la concentration des porteurs pour $B_g = -30$ meV, $\epsilon_{xx} = -0.2\%$ et $\epsilon_{xy} = 0$.

Un changement de signe est observé lors de la variation de $K_{2\perp}(p)$. A faible densité de porteurs, soit $p \leq p_c \approx 1.15 \ 10^{20} \ \mathrm{cm}^{-3}$, la constante d'anisotropie $K_{2\perp}$ prend des valeurs positives indiquant que l'axe facile d'aimantation est orienté suivant la direction [001]. Dans ce domaine correspondant à $K_{2\perp} > 0$, seule la bande de trous lourds $(j_z = \frac{3}{2})$ est peuplée, le moment cinétique **j** des porteurs étant orienté selon l'axe [001] (direction de croissance) [41]. L'aimantation est alors placée perpendiculairement au plan de la couche afin de maximiser l'énergie d'échange. Aux alentours de p_c , l'aimantation tend à s'orienter dans le plan de la couche. A forte densité de porteurs $p > p_c (K_{2\perp} < 0)$, le spin des trous se place dans le plan de la couche conséquence du remplissage de la bande de trous légers (voir chapitre 1, § 1.3) minimisant ainsi l'énergie du système de moments magnétiques. Un tel comportement de l'anisotropie magnétique uniaxiale perpendiculaire a été étudié par Dietl et collaborateurs [82] à travers un modèle à 6 bandes mais dans lequel ils considèrent des déformations épitaxiales cinq fois plus élevées que les ϵ_{xx} expérimentales.

2.5.2 Anisotropie cubique

En l'absence de contrainte, l'anisotropie magnétique cubique K_4 qui reflète la non-équivalence des directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$ domine l'anisotropie de forme. Suivant le signe de K_4 , les axes faciles de l'aimantation sont orientés le long de la famille (100) pour $K_4 > 0$ et selon les diagonales (110) dans le cas contraire [82]. Pour un matériau non contraint tel que le Fer, K_4 a pour valeur $5.2 \, 10^4 \, \text{Jm}^{-3}$ [85]. En présence de déformations biaxiales, nous avons deux constantes d'anisotropie $K_{4\parallel}$ et $K_{4\perp}$ décrivant respectivement l'anisotropie cubique dans le plan et hors plan. Dans la figure (2.6), nous représentons la variation de ces coefficients en fonction de la densité de trous, pour une déformation épitaxiale en compression ($\epsilon_{xx} = -0.2\%$). Ces deux constantes d'anisotropie présentent des allures identiques avec des extrema légèrement décalés ayant 10% de différence au niveau de leurs amplitudes. L'anisotropie cubique est intrinsèque à la structure cubique du matériau et dépend légèrement des contraintes d'épitaxies comme le montre la faible différence entre $K_{4\parallel}$ et $K_{4\perp}$.



FIGURE 2.6 – La variation des constantes d'anisotropie cubique $(K_{4\parallel}, K_{4\perp})$ en fonction de la concentration des porteurs pour $B_g = -30 \text{ meV}, \epsilon_{xx} = -0.2\%$ et $\epsilon_{xy} = 0$.

2.5.3 Comparaison avec la FMR

Pour valider notre approche théorique, nous comparons nos résultats avec des données expérimentales issues des mesures FMR réalisées sur l'échantillon 4EQ64r1 à T = 4 K. Une description de cette expérience a été déjà donnée dans le chapitre 1, §1.5.1. Les mesures FMR donnent : $K_{2\perp}^{FMR} = -8.49 \times 10^3$ Jm⁻³, $K_{4\perp}^{FMR} = -0.74 \times 10^3$ Jm⁻³ et $K_{4\parallel}^{FMR} = 0.41 \times 10^3$ Jm⁻³. Ces données indiquent que la constante d'anisotropie dominante est $K_{2\perp}$, son comportement en fonction de (p, B_g) nous renseignera sur les valeurs adéquates à adopter pour obtenir un bon accord théorie-expérience pour les autres paramètres $(K_{4\perp}, K_{4\parallel})$. Sur la figure (2.7), nous présentons la variation des coefficients d'anisotropie magnétique $(K_{2\perp}, K_{4\perp}, K_{4\parallel})$ en fonction de p pour différentes valeurs de B_g . La droite en pointillés désigne la valeur expérimentale des K_i^{FMR} . Il s'avère nécessaire d'ajuster la valeur de l'énergie décrivant le splitting d'échange pour obtenir un bon accord entre simulation et expérience. Concernant $K_{2\perp}$, ceci est réalisé pour $B_g = -40$ meV (voir figure 2.7(a)). La condition $K_{2\perp}^{FMR} \simeq K_{2\perp}(p)$ est réalisée pour $p \gtrsim 3\,10^{20}$ cm⁻³ où $K_{2\perp}$ varie très peu avec la densité p. Pour s'aligner avec les valeurs expérimentales de $(K_{4\perp}, K_{4\parallel})$, nous obtenons la valeur appropriée suivante pour la densité de trous : $p = 3.5\,10^{20}$ cm⁻³. En adoptant $(B_g = -40 \text{ meV}, p = 3.5\,10^{20} \text{ cm}^{-3})$, nous trouvons $K_{2\perp} = -8.7\,10^3$ Jm⁻³, $K_{4\perp} = 0.44\,10^3$ Jm⁻³ et $K_{4\parallel} = 0.41\,10^3$ Jm⁻³. L'ensemble de ces valeurs sont compatibles avec les résultats FMR.

A partir de $(B_g = -40 \text{ meV}, p = 3.5 \, 10^{20} \text{ cm}^{-3})$, nous pouvons déduire $(M_s = 68 \text{ kA/m}, E_F = 260 \text{ meV})$. Cette valeur de l'aimantation à saturation est supérieure à la valeur mesurée pour l'échantillon considéré. Par ailleurs, la mesure expérimentale de la température de Curie T_c et l'équation (1.9) du chapitre 1 fournissent $p_{T_C} \approx 2 \, 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ qui est inférieure à la valeur adoptée précédemment. Ces écarts peuvent provenir de (i) l'approche de champ moyen qui néglige les fluctuations thermodynamiques [86], (ii) l'approximation du cristal virtuel qui ne prend pas en considération le désordre, (iii) l'incertitude sur la détermination expérimentale de M_s et sur les mesures FMR, (iv) l'imprécision concernant les valeurs adoptées numériquement de A_F et β_{pd} [87].



FIGURE 2.7 – La variation des constantes d'anisotropie $K_{2\perp}$, $K_{4\perp}$, $K_{4\parallel}$ en fonction de la concentration des porteurs pour différentes valeurs de B_g pour $\epsilon_{xx} = -0.2\%$ et $\epsilon_{xy} = 0$. Le trait pointillé désigne la valeur expérimentale.

2.6 Anisotropie magnétique et déformation

Dans cette partie, nous explicitons la dépendance de l'anisotropie magnétique vis-à-vis des contraintes. Pour valider notre approche, nous commençons par étudier l'influence de la déformation épitaxiale ϵ_{xx} afin de comparer nos résultats avec ceux existants dans la littérature.

2.6.1 Déformation épitaxiale

Lors de la croissance de la couche de (Ga, Mn)As en régime pseudomorphique, la déformation de la maille imposée par le substrat induit une contrainte biaxiale. Cette déformation agit sur l'anisotropie magnétique en modifiant la position relative des sous-bandes (HH et LH). Dans ce paragraphe, nous commençons par étudier le comportement de $K_{2\perp}$ en fonction de ϵ_{xx} (voir la figure 2.8).



FIGURE 2.8 – La variation de la constante d'anisotropie $K_{2\perp}$ en fonction de la concentration des porteurs pour différentes valeurs de ϵ_{xx} pour $B_g = -40$ meV.

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent (2.5), $K_{2\perp}$ varie en fonction de la densité de porteurs. De plus, l'amplitude et le signe de la constante d'anisotropie uniaxiale perpendiculaire dépendent de la déformation épitaxiale. Dans le régime de compression ($\epsilon_{xx} < 0$) et si $p > 1.7 \times 10^{20}$ cm⁻³, l'aimantation se situe dans le plan, elle est hors plan pour le régime de tension ($\epsilon_{xx} > 0$). Un tel comportement est en accord avec l'étude rapportée dans la référence [82]. Remarquons que les courbes de $K_{2\perp}$ pour différentes déformations épitaxiales s'annulent aux alentours d'une même densité de porteurs (p_c) laissant présager que cette densité de croisement varie très peu avec ϵ_{xx} .

Nous représentons sur la figure 2.9 un agrandissement au voisinage de cette densité de croisement p_c . En réalité, nous observons que cette constante d'anisotropie ne s'annule pas tout à fait pour la même valeur de concentration de trous. Dans le but de traiter la dépendance de $K_{2\perp}$ avec la densité de porteurs et la déformation, nous proposons dans la suite deux approches simples susceptibles de nous fournir davantage d'informations sur le comportement de $K_{2\perp}$ au voisinage de p_c .



FIGURE 2.9 – Agrandissement au voisinage de la densité de porteurs pour laquelle $K_{2\perp}$ s'annule, avec $\gamma_2 \neq \gamma_3$.

2.6.1.1 Modèle à 4 bandes

Dans un premier temps, nous allons nous restreindre au cas d'un Hamiltonien de Luttinger décrivant la bande Γ_8 . Nous adoptons aussi l'approximation sphérique qui consiste à prendre $\gamma_2 = \gamma_3 = \gamma_s$ avec $\gamma_s = \frac{2\gamma_2 + 3\gamma_3}{5}$ [88] dans l'écriture standard du Hamiltonien. Nous obtenons ainsi deux bandes paraboliques deux fois dégénérées, de masses effective $m_{LH} = \frac{m_0}{\gamma_1 + 2\gamma_s}$ pour les trous légers et $m_{HH} = \frac{m_0}{\gamma_1 - 2\gamma_s}$ pour les trous lourds. Notons que les énergies ne dépendent pas de la direction de \mathbf{k} mais uniquement de sa norme. Par la suite, nous introduisons un Hamiltonien des contraintes qui décrit uniquement la déformation biaxiale résultant de l'épitaxie d'un échantillon ayant un axe de croissance suivant [001]. Nous avons aussi pris en considération le Hamiltonien d'échange. Malgré la simplicité du modèle (pas de couplage spin-orbite, approximation isotrope), la diagonalisation du Hamiltonien total fournit des énergies propres dont la dépendance en fonction de B_g , $a_2\epsilon$ ($\epsilon = \epsilon_{zz} - \epsilon_{xx}$), m_{HH} et m_{LH} n'est pas simple. Il semble alors difficile d'avoir une expression analytique de $K_{2\perp}$. En utilisant la même procédure de calcul que celle ci-dessus (voir §2.4.2), nous avons donc déterminé numériquement $K_{2\perp}$ en fonction de la densité de porteurs jusqu'à une énergie de Fermi maximale égale à 480 meV. Le choix de cette valeur de E_F , différente de 320 meV utilisée précédemment, est due au fait que $K_{2\perp}$ ne change pas de signe avec la densité de trous (voir la figure 2.10). Pour les besoins de la figure 2.10, nous avons utilisés les paramètres suivant lm = 3860 ppm, $\epsilon_{xx} = -0.20\%$, $a_2 = -2$ eV et $B_g = -40$ meV.



FIGURE 2.10 – La variation de la constante d'anisotropie $K_{2\perp}$ en fonction de la concentration des porteurs pour $B_g = -40 \text{ meV}$, $\epsilon_{xx} = -0.2\%$ et $\epsilon_{xy} = 0$ pour un modèle à 4 bandes.

Le modèle adopté néglige le couplage spin-orbite existant entre Γ_8 et Γ_7 qui a tendance à « aplatir » les dispersions en énergie des bandes des trous lourds et trous légers. Ceci a pour conséquence d'avoir une densité d'état plus grande aux petites énergies et donc de fortes densités de porteurs pour des énergies de Fermi pas très grandes devant l'énergie spin-orbite. Il faut donc aller au delà de ce modèle simple à 4 bandes pour espérer avoir une description plus réaliste du système.

2.6.1.2 Modèle à 6 bandes en approximation sphérique

Toujours dans le but de mieux comprendre cette densité de porteurs critique pour laquelle $K_{2\parallel}$ s'annule, nous considérons maintenant le modèle à 6 bandes en conservant l'approximation sphérique tout en négligeant la différence entre $K_{4\parallel}$ et $K_{4\perp}$. La différence des densités d'énergie volumique pour les deux directions d'aimantation [001] et [100] fournie l'expression de $K_{2\perp}$ (voir §2.4.2 équation 2.14) :

$$K_{2\perp}(p) = \left(E_{max}^{M\parallel[001]} - E_{max}^{M\parallel[100]}\right)p - \int_0^p \left(E_F^{M\parallel[001]}\left(p'\right) - E_F^{M\parallel[100]}\left(p'\right)\right)dp$$
(2.29)

où $E_{max}^{M\parallel u}$ est l'énergie maximale des bandes de valence pour une aimantation M parallèle à u, $E_F^{M\parallel u}(p)$ étant l'énergie de Fermi.

La figure (2.11. a) résume les résultats issus du présent modèle. Contrairement aux résultats de la figure 2.10, $K_{2\perp}$ change bien de signe en faisant varier la densité de porteurs avec une densité de croisement qui semble être indépendante de la déformation biaxiale. La figure (2.11. b), rappelant les résultats du modèle à 6 bandes dans le cas où $\gamma_2 \neq \gamma_3$ (voir 2.4.2) montre que l'approximation sphérique de la Fig. (2.11. (a)) surestime d'une part l'ordre de grandeur de $K_{2\perp}$ et sous-estime d'autre part la densité de porteurs au point de croisement ($p_c^{sph} \approx 9.10^{19}$ cm⁻³ et $p_c \approx 1.7 \, 10^{20}$ cm⁻³). Les deux approches donnent le même comportement de $K_{2\perp}(p)$. Abstraction faite des ordres de grandeur, ceci indique que le « warping » de la bande de valence a peu d'incidence sur l'annulation de $K_{2\perp}$.



FIGURE 2.11 – La variation de la constante d'anisotropie $K_{2\perp}$ en fonction de la concentration des porteurs pour $B_g = -40$ meV et $\epsilon_{xy} = 0$ (a) pour un modèle à 6 bandes en approximation sphérique (b) pour un modèle complet à 6 bandes.

Considérons à présent les deux contributions à $K_{2\perp}$, $\left[\left(E_{max}^{M\parallel[001]} - E_{max}^{M\parallel[100]}\right)p\right]$ et $\left[\int_{0}^{p} \left(E_{F}^{M\parallel[001]}\left(p'\right) - E_{F}^{M\parallel[100]}\left(p'\right)\right)dp\right]$. Nous portons sur la figure (2.12), leurs variations en fonction de la densité de porteurs.



FIGURE 2.12 – Les deux contributions à $K_{2\perp}$ en fonction de densité de porteurs pour $B_g = -40 \text{ meV}$ et $\epsilon_{xx} = -0.2\%$.

La première contribution, provenant du déplacement du haut de la bande de valence en

fonction de l'orientation de l'aimantation, est linéaire en p:

$$\left(E_{max}^{M\parallel[001]} - E_{max}^{M\parallel[100]}\right)p = -\frac{3}{2}a_2 \epsilon p \tag{2.30}$$

La seconde contribution est due à la variation de l'énergie de Fermi avec p pour différentes directions de l'aimantation **M**. A faible p, elle est sous-linéaire devenant quasi-linéaire à plus forte densité et croisant ainsi la première contribution. Nous pouvons alors l'ajuster par une fonction affine $(\alpha + \beta p)$. Un ajustage numérique montre que les paramètres α et β sont quasiment linéaire en fonction de ϵ . Au total, nous obtenons :

$$\int_{0}^{p} \left(E_{F}^{M \parallel [001]} \left(p' \right) - E_{F}^{M \parallel [100]} \left(p' \right) \right) dp \approx \alpha + \beta p \qquad (2.31)$$
$$\approx \alpha_{0} \epsilon + \beta_{0} \epsilon p$$

où α_0 et β_0 sont des constantes indépendantes de ϵ et p.

En faisant la différence de ces deux contributions, nous déduisons :

$$K_{2\perp} = \left(E_{max}^{M\parallel [001]} - E_{max}^{M\parallel [100]} \right) p - \int_0^p \left(E_F^{M\parallel [001]} \left(p' \right) - E_F^{M\parallel [100]} \left(p' \right) \right) dp$$

$$\approx -\frac{3}{2} a_2 \epsilon p - \left(\alpha_0 \epsilon + \beta_0 \epsilon p \right)$$
(2.32)

La densité de porteurs pour la quelle $K_{2\perp}$ s'annule est donc donnée par :

$$p(K_{2\perp} = 0) \approx \frac{-\alpha_0}{\beta_0 + \frac{3}{2}a_2}$$
(2.33)

La concentration de croisement est indépendante de ϵ , elle est estimée à 9×10^{19} cm⁻³ en bon accord avec la Fig. 2.11(a).

Pour conclure, le croisement des courbes $K_{2\perp}$ en fonction de la déformation biaxiale résulte d'une compétition entre la position du haut de la BV, qui varie sous l'effet combiné de la contrainte et de l'échange, et le remplissage des bandes en lien avec le niveau de Fermi. Il est raisonnable que toutes ces quantités soient linéaires en ϵ car $a_2\epsilon$ (8 meV) peut être traité comme une perturbation vis-à-vis de B_g (-40 meV) et de Δ_0 (340 meV).

En conclusion, le couplage spin-orbite ne peut pas être négligé dans cette description microscopique de $K_{2\perp}$. Il est nécessaire pour obtenir la densité critique de croisement p_c . Le « warping » de la bande de valence n'est pas nécessaire mais il affecte la valeur de p_c . Dans la suite, nous étudions l'effet de la déformation de cisaillement, ϵ_{xy} , sur les constantes d'anisotropie uniaxiale.

2.6.2 Déformation de cisaillement

Le modèle adopté par Dietl [82] ne rend pas compte de l'anisotropie uniaxiale $K_{2\parallel}$ qui distingue les axes [110] et [110]. Dans la littérature, aucun modèle théorique n'a réussit à bien reproduire le comportement de cette constante d'anisotropie vu que son origine microscopique n'est pas encore établie (§2.3). Une hypothèse envisageable serait de considérer que la maille de (Ga,Mn)As subisse une déformation trigonale, la déformation de cisaillement ϵ_{xy} qui en résulte serait à l'origine de cette anisotropie. Pour modéliser $K_{2\parallel}$, nous avons adopté la même démarche que Zemen et collaborateurs [77], en introduisant dans le Hamiltonien de contrainte une déformation de cisaillement ϵ_{xy} . Rappelons qu'aucune preuve expérimentale n'a mis en évidence l'existence de ϵ_{xy} (§2.3).

L'échantillon considéré ayant une aimantation planaire, l'orientation de son axe facile est le résultat d'une compétition entre l'anisotropie planaire uniaxiale $K_{2\parallel}$ et biaxiale $K_{4\parallel}$, décrite par $\sin 2\varphi_0 = -\frac{K_{2\parallel}}{K_{4\parallel}}$. Sur la figure (2.13), nous présentons l'évolution de $(K_{2\parallel}, K_{4\parallel})$ en fonction de la densité de trous pour $\epsilon_{xy} = 0$ et $\epsilon_{xy} = 0.05\%$, en prenant $\epsilon_{xx} = -0.2\%$ dans les deux cas.



FIGURE 2.13 – La variation des constantes d'anisotropie $(K_{2\parallel}, K_{4\parallel})$ en fonction de la concentration des porteurs pour $B_g = -40$ meV et $\epsilon_{xx} = -0.2\%$.

Les courbes montrant les variations, en fonction de p, de $K_{4\parallel}(\epsilon_{xy} = 0)$ et $K_{4\parallel}(\epsilon_{xy} = 0.05\%)$ se superposent, ce qui n'est pas le cas pour $K_{2\parallel}$ laissant présager que cette dernière dépend de ϵ_{xy} . Remarquons que $K_{2\parallel}$ a une valeur nulle dans le cas où $\epsilon_{xy} = 0$. Les résultats présentés dans la figure (2.13) sont en bon accord avec ceux issus des références [40] et [77].

Nous étudions maintenant l'effet de la variation de ϵ_{xy} sur les constantes d'anisotropie uniaxiale. Ceci est représenté sur la figure (2.14. a) où nous observons une dépendance linéaire de $K_{2\perp}$, $K_{2\parallel}$.



FIGURE 2.14 – a) La variation des paramètres d'anisotropie magnétique $K_{2\perp}$, $K_{2\parallel}$ en fonction de la déformation de cisaillement ε_{xy} pour $p = 3.5 \, 10^{20} \, \mathrm{cm}^{-3}$ et $\varepsilon_{xx} = -0.20\%$. b) Constante d'anisotropie magnétique $K_{2\perp}$ versus la constante d'anisotropie $K_{2\parallel}$ pour différentes couches de (Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P) à basses températures [89].

Ce comportement était prévisible vu que $K_{2\parallel}$ est proportionnel à $K_{2\perp}$ (Fig. 2.14. a) [89]. En effet, des données expérimentales de FMR pour divers échantillons de type (Ga, Mn)As et (Ga, Mn)(As, P) montrent clairement cette proportionnalité dans le cas où ces dernières sont en compression [89]. Pour une déformation de cisaillement de $\varepsilon_{xy} = 0.01\%$, nos simulations fournissent $K_{2\perp} = -8.2 \, 10^3 \text{Jm}^{-3}$ et $K_{2\parallel} = 0.96 \, 10^3 \text{Jm}^{-3}$ ce qui est en bon accord avec les valeurs expérimentales issues des expériences FMR : $K_{2\perp}^{FMR} = -8.5 \, 10^3 \, \text{Jm}^{-3}$ et $K_{2\parallel}^{FMR} = 1 \, 10^3 \, \text{Jm}^{-3}$. Cette valeur de ε_{xy} concorde bien avec les estimations existantes dans la littérature [40, 77] : de 10^{-4} à 5. 10^{-4} . Cependant, Birowska et collaborateurs [79] prédisent que $K_{2\perp}$ varie très peu avec ε_{xy} , contredisant ainsi les données expérimentales de la référence [89], bien qu'ils observent un comportement linéaire pour $K_{2\parallel}$. Notons que les auteurs de la référence [79] soulignent, sans véritable explication, les différences entre les résultats de leur modèle ab-initio et la théorie **k.p**, celle-ci étant en bien meilleur accord avec l'expérience pour la dépendance des constantes d'anisotropie avec la contrainte épitaxiale. La configuration adoptée (uniquement des paires de Mn premiers voisins seulement alignées selon la direction [-110]) est certainement trop éloignée de la véritable distribution des Mn. Dans la suite du travail (voir 2.7), nous présentons une tentative de mesure de la déformation du cisaillement au synchrotron.

2.7 Détection expérimentale du cisaillement

2.7.1 Contexte d'étude et motivation

Le but de cette partie est d'identifier le mécanisme microscopique qui brise la symétrie $[110]/[1\overline{1}0]$. Il existe plusieurs hypothèses quant à l'origine de cet effet :

- Une déformation de cisaillement réelle où la couche relaxe partiellement de manière anisotrope (Fig. 2.15.a). Elle peut être observée en diffraction de rayons X par un paramètre de maille équivalent pour les directions [h0l] et [0hl] et différent pour des directions [hhl] et [-hhl] (avec k, h, l sont les indices de Miller).
- Une déformation effective qui est probablement due à une incorporation de dimères de Mn en densité différente suivant [110] ou [-110] (Fig. 2.15.b).



FIGURE 2.15 – a) Couche de (Ga,Mn)As épitaxie sur un substrat de GaAs ayant partiellement relaxé dans une direction [110] ou [-110]. $a_{(Ga,Mn)As}^{[110]} \neq a_{(Ga,Mn)As}^{[-110]}$ et $a_{GaAs}^{[110]} \neq a_{GaAs}^{[-110]}$. b) Couche de (Ga,Mn)As avec concentration de dimères de Mn différente suivant [110] et [-110] en parfaite epitaxie sur un substrat de GaAs.

A l'heure actuelle aucune preuve expérimentale de l'existence d'une telle distorsion n'a été observée. A notre connaissance, les seuls essais publiés dans la littérature sont les références [44] et [43]. Des études de diffraction des rayons X (DRX) ont été effectuées par Welp et colaborateurs [43] sur des couches épaisses de (Ga,Mn)As pour une énergie de 12.40 keV en réalisant des balayages selon les plans (k = hhl). En effet, l'idée des auteurs de la référence [43] pour détecter cette déformation de cisaillement, est d'identifier une variation de la distance inter-réticulaire pour une famille de plan hhl, c'est-à-dire un déplacement de la position des pics de diffraction de Bragg. Cependant, ils ont observé que la position et la forme des pics de GaAs et (Ga,Mn)As sont identiques en effectuant un balayage selon les plans de réflexion (224) et (224) (voir la figure 2.16). De plus, Kopecky et collaborateurs [44] ont mentionné, sans présenter leurs données, qu'ils ont observé à travers des expériences DRX, le même paramètre de maille suivant les directions [110] et [110]. La déformation, si elle existe, est trop faible pour être observée.



FIGURE 2.16 – (a) Schéma de différent réflexions et balayages dans l'espace réciproque. (b), (d) Balayages dans le plan suivant les réflexions (224) et (2-24) tracés en fonction h.

2.7.2 Stratégie de mesure

Pour un composé de (Ga, Mn)As non contraint, la maille est cubique. Dans le cas où le (Ga, Mn)As est épitaxié sur un substrat de GaAs, elle se déforme tétragonalement (ϵ_{zz}), et peut-être aussi dans le plan (ϵ_{xy}). Si tel est le cas, la maille serait rectangulaire dans la base <110>. Nous pouvons observer deux signatures différentes de la déformation de cisaillement (voir la figure 2.17). Elle peut être évaluée en effectuant des mesures de diffraction des rayons X où la stratégie consiste à montrer que les normes des vecteurs [110] et $[1\overline{10}]$ sont différentes ou que l'angle entre [100] et [010] diffère de 90°. En effet, comme première approche (voir la configuration (2.17. a), nous cherchons à trouver des distances inter-atomiques différentes pour les directions [110] et [110]. Afin de montrer cette non-équivalence, nous effectuons des balayages angulaires en ω (voir la figure 2.18. a) dans le plan pour 4 azimuts (espacés de 90°) et nous reconstruisons ainsi des cartographies $Q_x Q_z$. En comparant les positions des pics du substrat et de la couche selon la direction Q_x pour l'azimut i (ΔQ_i) , cette différence est équivalente à la déformation de cisaillement. Notons qu'en raison de la présence d'une contrainte épitaxiale dans la couche de l'échantillon, les pics du substrat et de la couche seront observés à des Q_z différents. Pour les raies (hhl) et pour deux azimuts successifs, cette différence selon la direction Q_x est équivalente à:

$$\frac{\Delta Q_i}{Q_{GaAs}} - \frac{\Delta Q_{i+1}}{Q_{GaAs}} \approx 2\epsilon_{xy} \tag{2.34}$$

avec $\Delta Q_i = Q_x^{GaAs} - Q_x^{(Ga,Mn)As}$. Pour une valeur de $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$, l'écart attendu est de l'ordre de 2.10⁻⁴



FIGURE 2.17 – Illustration schématique montrant l'effet de la déformation de cisaillement dans le plan sur les amplitudes (a) et les angles des vecteurs du réseau réciproque (b).

Une autre approche consiste à trouver des angles différents de 90° entre les directions <100> dans le plan de la couche (Ga,Mn) As. Autrement dit, nous espérons observer que les axes <100> de (Ga,Mn)As dans le plan ne coïncident pas avec ceux de GaAs. Nous avons effectué alors des balayages en φ autour de trois azimuts dans le plan espacés de 90°, et les avons comparés aux balayages [110]/[110] pour lesquels aucune différence de position de pic n'est attendue. Pour une valeur de $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$, nous pouvons avoir entre les pics de raies (*hol*) un écart défini comme suit :

$$\Delta \varphi = \varphi_{GaAs,i} - \varphi_{(Ga,Mn)As,i} = (-1)^{i} 12 \operatorname{mdeg}$$
(2.35)

Comme la couche que nous voulons étudier n'a qu'une épaisseur de 50 nm, très inférieure à la profondeur typique de pénétration des rayons X dans la gamme de quelques keV, nous avons suivi une approche qui consiste à utiliser la diffraction anomale (DRXA) pour diminuer la contribution du substrat de GaAs. Cette méthode consiste à ajuster l'énergie des rayons X au voisinage du seuil d'absorption d'un des éléments constituants le cristal. Schulli et collaborateurs [90] ont réussi à supprimer la contribution du substrat de GaAs. En effectuant des expériences DRXA sur des boîtes quantiques InAs épitaxiées sur un substrat de GaAs. En effet, ils ont montré que les intensités diffractées relatives aux boîtes quantiques et au substrat subissent un changement significatif en fonction de l'énergie des rayons X proche du seuil d'absorption de l'arsenic. D'où l'idée de réaliser des expériences sur la ligne de lumière Diffabs du synchrotron français SOLEIL (Source Optimisée de Lumière d'Énergie Intermédiaire du LURE), source de rayons X intense. Outre que la puissance du rayonnement synchrotron est bien plus grande qu'un « simple » diffractomètre de laboratoire, la large étendue en fréquence du rayonnement permet d'ajuster l'énergie des rayons X nécessaire pour se trouver en conditions anomales.



FIGURE 2.18 – a) Illustration schématique de l'expérience DRX. Les angles liés aux mesures effectuées sont ω : angle d'incidence; 2θ : angle de diffraction; φ : angle d'azimut, ψ : angle d'inclinaison entre la normale à la surface et la normale aux plans diffractés. b) une représentation des vecteurs dans l'espace réciproque. k_i , (k_f) représente le vecteur d'onde incident (émergent). Pour une surface de l'échantillon suivant un plan cristallographique (001), Q_x , (Q_z) définit la direction dans le plan de la couche (la direction perpendiculaire au plan de la couche).

2.7.3 Configuration expérimentale

Pour effectuer des mesures de diffraction X, l'échantillon (4EQ64) est positionné au centre d'un goniomètre Kappa dans le plan de diffraction. Il peut alors tourner suivant l'angle ω et/ou φ (voir la figure 2.18. a). Nous avons adopté deux configurations expérimentales :

— Un balayage en ω : après avoir localisé sur le détecteur à pixels hybrides XPAD (X-ray Pixel Area Detector) à la fois le pic du substrat et de la couche, nous avons réalisé un balayage en ω pour chaque valeur de θ . Mentionnons que le détecteur utilisé est fixe. Une fois le cliché est enregistré, on le convertit en une carte d'intensité en fonction de $(\psi, 2\theta)$ (voir la figure 2.19). Ces données permettent par la suite de construire des cartographies $Q_x Q_z$ de l'espace réciproque (voir la figure 2.18. a) en intégrant sur une portion de la carte, comme par exemple autour de $\psi = 0$, et en utilisant les équations de conversion suivantes :

$$Q_x = \delta k \times \cos(\frac{\pi}{2} - (\theta - \omega)) \tag{2.36}$$

$$Q_z = \delta k \times \sin(\frac{\pi}{2} - (\theta - \omega)) \tag{2.37}$$

avec $\delta k = \frac{\sin\theta}{\lambda}$.

— Un balayage en φ : après avoir placé le pic de la couche ou du substrat sur le XPAD, nous

effectuons un balayage en φ soit de façon continue soit pas à pas afin d'obtenir des scans Q_y .

Cette expérience a été effectuée à température ambiante. Si l'anisotropie magnétique uniaxiale dans le plan est due à une déformation de cisaillement réelle, elle devrait persister à cette température. Dans le paragraphe ci-dessous, nous présentons les résultats des DRX en explicitant les méthodologies suivies pour mettre en évidence la déformation de cisaillement.



FIGURE 2.19 – Une carte des intensités. Les lignes en pointillés délimitent la fenêtre d'intégration choisie.

2.7.4 Diffraction anomale

Le paramètre fondamental dans l'analyse des structures cristallines par diffraction des rayons X, est le facteur de structure F_{hkl} , qui s'écrit pour le GaAs sous la forme suivante :

$$F_{hkl} = f_{Ga} + f_{As} \exp(-i\frac{\pi}{2}(h+k+l))$$
(2.38)

 f_{Ga} et f_{As} sont respectivement le facteur de diffusion de Ga et As. Pour une énergie incidente proche du seuil d'absorption, f n'est plus réel.

Pour tout h, k et l satisfaisant la relation h + k + l = 2(2n + 1), comme par exemple le plan (200), le facteur de structure F_{hkl} devient :

$$F_{hkl} = (f_{Ga} - f_{As}) (2.39)$$

D'après l'équation 2.39, nous remarquons qu'une variation des facteurs de diffusion atomique peut avoir un effet important sur l'intensité diffractée. En effet, nous constatons que si la norme de la différence est nulle on peut inhiber la contribution du substrat. Pour minimiser la forte contribution de diffusion du substrat de GaAs, nous avons effectué des expériences de diffraction anomale en balayant l'énergie des photons X (voir la figure 2.20), comme l'avaient fait avec succès Schülli et collaborateurs [90].



FIGURE 2.20 – a) La valeur absolue de la partie réelle du facteur de diffusion de Ga et As. b) La valeur absolue de $|f_{Ga} - f_{As}|$. Les lignes verticales (tirets) désignent les points d'intersection de $|f_{1Ga}|$ et $|f_{1As}|$.

Nous avons réalisé des scans $\theta/2\theta$ à différentes énergies au voisinage de E = 12.35 keV correspondant au deuxième point d'intersection (voir la figure 2.20). Sur la figure 2.21, nous avons présenté les amplitudes de la raie (200), de celle non anomale (220) et de leur rapport. Rappelons que seule la raie (200) devrait donner une diffraction anomale. Cependant nous avons constaté qu'il n'y a pas de diminution significative de l'amplitude de la raie (200) au voisinage de 12.35 keV. L'intensité du pic de Bragg reste donc 100 fois plus élevé que celui de la couche en condition de diffraction anomale.


FIGURE 2.21 – a) Variation de l'amplitude du pic (200) et (220) en fonction de l'énergie au voisinage de l'énergie anomale. b) Rapport de l'amplitude du pic (200) et (220) en fonction de l'énergie.

2.7.5 Détection de déformation de cisaillement

En adoptant la configuration (2.17.a), nous cherchons à comparer les différences entre les positions du pic du substrat et du pic de la couche le long de la direction Q_x et les comparer pour différents azimuts. Rappelons que pour $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$, nous estimons mettre en évidence un écart de l'ordre de $2 10^{-4}$. Sur la figure 2.22, nous présentons une cartographie $Q_x Q_z$ pour le pic (226). De plus, nous intégrons les intensités des pics obtenues dans la cartographie dans une fenêtre en Q_z en les représentant en fonction de Q_x . Nous remarquons ainsi l'existence d'un écart de l'ordre $-2\pm 0.5.10^{-4}$ à la fois pour les pics successifs et opposés. Pour ces derniers, nous nous attendions à l'absence d'un tel écart. Notons qu'aucune différence particulière n'a été observée entre deux pics consécutifs ou opposés sachant que les mesures ont été répétées plusieurs fois pour chaque azimut (afin de vérifier la reproductibilité de l'expérience). Il est donc possible de conclure que s'il existe une différence de la norme de vecteurs [110] et [110], elle est alors plus faible que 210^{-4} .



FIGURE 2.22 – a) Cartographie $Q_x Q_z$ reconstruite à partir de balayages ω pour le pic de diffraction (226) (échelle logarithmique). b) Projection des pics de diffraction du substrat et de couche selon la direction Q_x en effectuant une intégration entre les lignes pointillées.

Pour la configuration (2.17.b), nous avons essayé de mettre en évidence l'existence d'un écart entre le pic de Bragg et le pic de la couche pour la raie (h0l) en effectuant des balayages en φ autour de trois azimuts, dans le plan, espacés de 90°. De plus, nous avons comparé ces résultats avec ceux détectés pour la raie (hhl), où aucune différence de position de pic n'est attendue. Notons que nous avons pris $l \neq 0$ pour séparer le pic de la couche et celui du substrat. Sur la figure (2.23), nous avons présenté des balayages en φ pour les raie (226) et (206). Pour la direction (226), nous avons remarqué un dés-alignement angulaire entre le pic de Bragg et le pic de la couche de l'ordre de -0.2 ± 0.3 mdeg contrairement à la raie (206), $\Delta \varphi \approx 0$. Remarquons que ce résultat est reproductible pour les différents azimuts mesurés. Cependant, cet écart est de même signe pour deux azimuts successifs indiquant une rotation en masse de la couche dans le plan par rapport au substrat, plutôt qu'un cisaillement. De plus, nous soulignons l'apparition «des ailes» inattendues autour des pics de Bragg pour la raie (226). Celles-ci pourraient être liées à la présence d'une couche tampon de GaAs de mauvaise qualité. Pareil que pour la configuration (2.17.a), si cette déformation de cisaillement existe, elle est plus faible que celle estimée à partir de la relation 2.35.



FIGURE 2.23 – Scans typiques en φ a) pour la raie (206) b) pour la raie (226). On définit $\Delta \varphi = \varphi_{GaAs} - \varphi_{(Ga,Mn)As}$.

Vu la non-reproductibilité des mesures et la faible résolution expérimentale de la DRX, la déformation de cisaillement attendue et dont l'origine serait une relaxation anisotrope de la maille dans l'épaisseur de la couche n'a pas été détectée. De plus, nous nous sommes tournés vers une autre méthode potentiellement plus sensible aux contraintes : l'effet photo-élastique où la déformation de cisaillement induit une biréfringence [89]. Pour $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$, nous estimons que la rotation d'une polarisation linéaire avec une incidence normale tournera d'un angle égale à 15 mdeg. Une telle rotation peut être facilement détectée en utilisant un modulateur photoélastique. En effectuant des mesures à température ambiante sur l'échantillon étudié dans ce travail, nous déduisons que la déformation de cisaillement attendue n'a pas été observé bien qu'elle se situe audessus du seuil de détection de ces mesures optiques. Nous ne pouvons alors exclure la possibilité que ϵ_{xy} est inférieure 10^{-5} , ou qu'elle représente un paramètre effectif dont l'origine très probable serait une distribution anisotrope des ions Mn suivant les directions [110] et [-110].

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude sur l'anisotropie magnétique uniaxiale. Après avoir rappelé le cadre théorique de notre modélisation en lien avec la description microscopique de cette anisotropie, nous avons modélisé la variation de l'anisotropie magnétique en fonction de la densité des trous. Nos prédictions théoriques ont été confrontées aux résultats expérimentaux issus des mesures FMR. L'influence de la déformation de cisaillement, ϵ_{xy} , sur le comportement des coefficients d'anisotropie magnétique ($K_{2\perp}$, $K_{2\parallel}$), a permis de cerner l'ordre de grandeur de ϵ_{xy} compatible avec la forte anisotropie magnétique uniaxiale. Cette déformation de cisaillement réelle, qui viendrait d'une relaxation anisotrope de la maille de (Ga,Mn)As dans l'épaisseur de la couche n'a pas été détectée. Il s'agit donc d'une déformation effective telle qu'elle a pu être introduite théoriquement par exemple par Birowska dans le cas d'une distribution inéquivalente de paires de Mn suivant les directions [110] et [-110]. Après avoir établi les relations entre les constantes K_i et les coefficients λ_i (ou B_i), nous avons évalué les valeurs de λ_{100} et λ_{111} qui sont en accord raisonnable avec les déterminations expérimentales de Masmanidis. Les valeurs numériques de ces paramètres nous seront utiles, dans le chapitre suivant, pour l'étude dynamique du couplage magnéto-élastique où nous faisons interagir une onde acoustique de surface avec l'aimantation.

3 Magnéto-acoustique

Sommaire

3.1		Génération et détection des ondes acoustiques de surface
3.2		Détection de la résonance ferromagnétique induite par l'onde acoustique
	3.2.1	La résonance ferromagnétique induite par l'onde acoustique $(SAW-FMR)$
	3.2.2	Dépendance de la SAW-FMR avec la température
	3.2.3	Dépendance de la SAW-FMR avec la puissance
3.3		Détection du signal magnéto-acoustique
	3.3.1	Dispositif expérimental et méthode de détection
	3.3.2	Dynamique temporelle de la rotation de polarisation
	3.3.3	Dynamique spatiale du signal magnéto-acoustique
	3.3.4	Doublement de la fréquence
	3.3.5	Importance de la focalisation du faisceau
3.4		Etude des effets non-linéaires
	3.4.1	Dépendance en champ magnétique
	3.4.2	Dépendance en température
	3.4.3	Interprétation qualitative
	3.4.4	Dépendance avec l'amplitude de l'onde acoustique
3.5		Modélisation des eets non linéaires
	3.5.1	Equations linéarisées couplées
	3.5.2	Fréquence et amortissement
	3.5.3	Amplitudes d'oscillation à f_{SAW} et $2f_{SAW}$

Dans les matériaux magnétiques, les ondes de spin (ou magnons), une excitation élémentaire de faible énergie, attirent une attention particulière dans le domaine du stockage magnétique. Elles permettraient de développer des applications technologiques potentielles en tant que vecteurs d'information, dans les dispositifs de traitement du signal [4]. Elles permettraient aussi de miniaturiser des supports fonctionnant dans la gamme du GHz, en raison de leurs longueurs d'onde nanométriques [5]. Ces ondes assurent également un transfert d'information sans effet Joule sur des distances de quelques microns [5]. Il existe de nombreuses techniques pour exciter les ondes de spin telles que l'application d'un champ impulsionnel, d'un courant continu ou un champ radio fréquence (RF). Pour un système ferromagnétique et magnétostrictif, le couplage entre les propriétés magnétiques et les déformations offre une approche alternative d'action sur les ondes de spin par l'application d'une contrainte statique ou dynamique. Contrairement à d'autres moyens de contrôle qui engendrent l'échauffement néfaste des supports ou des problèmes de miniaturisation [91], la manipulation par des ondes acoustiques peut éviter ces problèmes. Un tel contrôle est possible grâce à la forte sensibilité de l'anisotropie magnéto-cristalline à la déformation comme nous l'avons vu dans le cas d'un composé de type (Ga, Mn)As (voir le chapitre 2).

Dans un solide isotrope et homogène infini, deux types d'ondes acoustiques peuvent se propager : longitudinales (L), transverses (T). Toutefois, lorsque le milieu est semi-infini, présentant une frontière solide-vide, un troisième type d'onde peut se propager au voisinage de la surface dite onde de surface de type Rayleigh (R). Ces ondes génèrent des déformations élastiques, permettant ainsi de contrôler la dynamique de l'aimantation via l'interaction magnéto-élastique [92, 14].

Dans certains systèmes magnétiques, les relations de dispersion de phonons et de magnons peuvent se croiser lorsque leurs fréquences et vecteurs d'onde coïncident. Dans le cas d'un matériau magnétostrictif où il existe une interaction magnéto-élastique (magnon- phonon), les points d'intersection deviennent alors des anti-croisements (voir la figure 3.1). Pour le cas d'un couplage fort, la levée de dégénérescence est plus grande que la largeur de la raie d'absorption en résonance ferromagnétique : les modes ne sont alors plus purement magnon ou phonon mais plutôt des modes mixtes magnéto-élastiques.



FIGURE 3.1 – Courbe illustrant la dispersion des ondes acoustiques longitudinales (L), transversales (T) et de Rayleigh (R) en cas d'interaction magnéto-élastique pour une couche de (Ga,Mn)As épitaxie sur un substrat de GaAs [93].

Pour les DMS, les impulsions acoustiques picosecondes (phonons longitudinaux ou transverses) peuvent exciter les ondes de spins [94, 95, 13]. Cependant, ce mécanisme reste inefficace car le spectre de fréquence des impulsions acoustiques est centré à des fréquences élevées, typiquement de l'ordre de 20-30 GHz, bien au-dessus des fréquences de précession de l'aimantation habituelles (0.5-10 GHz). Pour cette raison, les ondes acoustiques de surface (SAW : abréviation anglaise de Surface Acoustic Wave) en engendrant une excitation avec des fréquences de l'ordre du GHz, sont particulièrement adaptées pour l'excitation de la dynamique de spin [96, 97, 14].

La SAW est une onde élastique qui se propage à la surface d'un matériau (voir la figure 3.2. a), avec une amplitude qui décroit exponentiellement dans la profondeur du substrat. Elle

est confinée sur une épaisseur de l'ordre de la longueur d'onde (3~5 µm dans notre cas) avec une faible atténuation égale à 6 dB cm⁻¹ mesurée à une fréquence de 550 MHz pour le GaAs [98]. Ceci offre la possibilité d'une manipulation à distance de l'aimantation. Dans un milieu semi-infini, les seules composantes de déformation qui se propagent sont : ϵ_{xx} , ϵ_{zz} et ϵ_{xz} (voir la figure 3.2. b) avec des amplitudes typiques allant de 10⁻⁶ à 10⁻⁴ [14]. Au voisinage de la surface, la composante ϵ_{xz} peut être négligée car son amplitude est environ 100 fois plus faible que celle des autres composantes. La SAW engendre ainsi un déplacement ayant des composantes longitudinales (U_x) et transversales (U_z). Nous rappelons aussi la relation entre déformation et déplacement : $\epsilon_{ij} = \frac{1}{2} (\frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i})$ avec $x_1 = x$, $x_2 = y$, $x_3 = z$. Notons que les amplitudes du déplacement sont inférieures à 1 angstrœm [98] et elles décroissent rapidement en fonction de la profondeur de pénétration dans le matériau sur une distance de l'ordre de la longueur d'onde (voir la figure 3.2. c).



FIGURE 3.2 – a) Propagation des ondes de Rayleigh [99]. b) Composantes de déformation des ondes de Rayleigh pour le GaAs [14]. c) Amplitude normalisée des composantes longitudinales (U_x) et transversales (U_z) du déplacement en fonction de la profondeur dans le cas de GaAs [93]. Dans notre notation λ désigne la longueur d'onde acoustique.

Dans ce chapitre, nous commencerons par donner une présentation de la génération/détection des SAWs. Ensuite, nous exposerons les résultats expérimentaux obtenus dans deux régimes différents : linéaire et non-linéaire. Le premier est caractérisé par une oscillation de l'aimantation uniquement à une fréquence égale à f_{SAW} alors que dans le deuxième des fréquences supplémentaires, supérieures à f_{SAW} , apparaissent. Nous nous intéressons ainsi aux effets non-linéaires du fait qu'ils présentent un grand intérêt pour des application importantes comme par exemple dans le domaine de l'ingénierie neuromorphique [100, 101]. Nous présenterons ainsi un modèle théorique qui discute l'origine et les conditions menant à la non-linéarité observée dans nos résultats expérimentaux.

3.1 Génération et détection des ondes acoustiques de surface

Les SAW peuvent être générées optiquement par thermo-élasticité [102, 103] ou électriquement par effet piézoélectrique à l'aide de transducteurs interdigités (IdT) [104]. Dans le cadre de ce travail, nous nous intéressons à la deuxième approche. Considérons d'abord des peignes métalliques simples entrecroisés déposés sur une couche piézoélectrique [105, 14], comme le GaAs. L'un des peignes de l'IdT excitateur est soumis à un potentiel sinusoïdal et l'autre à la masse. Cette différence de potentiel induira entre les doigts des peignes un champ électrique qui, par effet piézoélectrique inverse, engendrera une déformation sinusoïdale dans le matériau. Si les déformations dues aux différents doigts de l'IdT sont cohérentes spatialement, elles génèrent ainsi une SAW qui se propage de chaque côté de l'IdT (voir la figure (3.3. a)). Une telle perturbation modifiant suffisamment les paramètres magnétiques (constantes d'anisotropie), perturbe le champ effectif ce qui déclenche la précession de l'aimantation [106].

Dans l'exemple montré sur la figure 3.3.a, le transducteur émetteur (IdT 1) est excité avec une tension RF, mise en forme par des portes de quelques centaines de ns. Après propagation et interaction avec la partie magnétique du système, l'onde est détectée par le transducteur récepteur (IdT 2) où la déformation est transformée en une tension par effet piézoélectrique. Celle-ci est visualisée sur un oscilloscope (voir la figure 3.3. b). La première partie du signal temporel détecté est due à la radiation électromagnétique. L'IdT 1 agit comme une antenne créant un signal électromagnétique qui se propage à la vitesse de lumière et qui est détecté par l'IdT 2. La seconde partie est un signal acoustique qui se propage à la vitesse de Rayleigh (v_R) et qui arrive après un temps de transit $\tau = \frac{L}{v_R}$ où L est la distance entre les deux transducteurs et v_R est la vitesse de propagation de l'onde Rayleigh, soit ici $\tau = 730$ ns.

80



FIGURE 3.3 – a) Dispositif expérimental de génération et détection électriques de SAW. b) Un signal temporel typique détecté aux bornes de l'IDT 2. c) Le dessin d'IdT split 5 :2.

Dans le cadre de cette thèse, un choix spécifique de la conception de l'IdT a été adopté dans le but d'avoir le plus grand nombre possible d'harmoniques sur une large gamme de fréquence. L'utilisation de ces différentes harmoniques permet de travailler avec différentes fréquences dans des conditions identiques, plutôt que de réaliser un échantillon pour chaque fréquence. Le motif choisi dans ce travail pour les cellules de l'IdT comprend cinq électrodes réparties en un groupe de deux et un groupe de trois électrodes ("IdT split 5 :2", voir la figure 3.3.c). Les peignes ont été fabriqués par lithographie optique. Il offre la possibilité de générer certaines harmoniques de la fréquence fondamentale f_0 ($f_m = m \times f_0$, m = 1, 2, 3, 4) [93]. La longueur d'onde fondamentale de SAW excitée (λ_{SAW}) est définie par la période du motif des doigts métalliques de l'électrode. Nous pouvons ainsi déterminer la fréquence de SAW à partir de la relation $\lambda_{SAW} = \frac{v_R}{(f_{SAW})}$ et la vitesse de Rayleigh étant égale à $v_R = 2711 \text{ ms}^{-1}$ [14].

3.2 Détection de la résonance ferromagnétique induite par l'onde acoustique (SAW-FMR)

Dans cette partie, nous étudions l'effet de la variation de la température et/ou de la puissance d'excitation RF (P_{RF}) sur l'amplitude de l'onde acoustique. La mesure de l'amplitude de la SAW permettra ainsi d'analyser son interaction avec l'aimantation de la couche de (Ga,Mn)As. Les résultats qui seront présentés par la suite sont obtenus sur l'échantillon 4EQ64r1 décrit dans le chapitre 2.

3.2.1 La résonance ferromagnétique induite par l'onde acoustique (SAW-FMR)

Dans ce paragraphe nous présentons l'étude de l'amplitude de la SAW en fonction du champ magnétique appliqué et nous montrons que nous obtenons l'analogue d'une courbe de résonance ferromagnétique. Dans le dispositif considéré, la fréquence de l'onde acoustique est fixée par le dispositif de génération. Pour atteindre le croisement des fréquences acoustique et magnétique, nous faisons varier cette dernière. Le matériau est initialisé selon son axe facile d'aimantation [1-10] et nous appliquons un champ magnétique selon l'axe difficile pour abaisser la fréquence et aussi augmenter l'efficacité du couple exercé par la SAW sur l'aimantation. L'onde acoustique émise, ayant une propagation suivant [-110] dans notre cas, présente des composantes de déformation qui se couplent aux composantes planaires ou perpendiculaires de l'aimantation [14, 15]. Le champ effectif H_{RF} généré par la SAW engendre alors la précession de l'aimantation à la fréquence de l'onde acoustique [15, 106, 16], qui est plus ou moins proche de la fréquence propre magnétique suivant la valeur du champ magnétique appliqué. Dans le cas où la SAW se propage le long de [1-10] et pour un échantillon ayant une aimantation dans le plan, $H_{RF}(t)$ est donné par : $\mu_0 H_{RF}(t) = B_2 \epsilon_{xx}(t) \sin(2\varphi_0)$ où φ_0 est la position d'équilibre de l'aimantation par rapport à **k**SAW.

La Fig. 3.4 présent l'évolution de l'amplitude de la SAW en fonction du champ magnétique, pour $f_{SAW} = 452$ MHz et $P_{RF} = 21$ dBm (0.12 W) et à T= 80 K. Nous observons une diminution de l'amplitude de la SAW à un certain champ (9 mT) indiquant qu'une partie de la puissance de l'onde a été absorbée par la couche magnétique. Le couplage magnéto-élastique engendre ainsi une résonance ferromagnétique lorsque la fréquence de précession de l'aimantation est proche de celle de la SAW ce qui est le cas à 9 mT pour cette température. Ceci est analogue à la courbe de résonance ferromagnétique obtenue classiquement en excitant le matériau magnétique avec un champ RF.



FIGURE 3.4 – Variation de l'amplitude de l'onde acoustique détectée après interaction avec la couche magnétique pour $f_{SAW} = 452$ MHz à T = 80 K pour l'échantillon 4EQ64r1. La référence est prise à fort champ (30 mT)

3.2.2 Dépendance de la SAW-FMR avec la température

Sur la figure (3.5.a), nous présentons l'évolution de l'amplitude acoustique en fonction de la température. Nous constatons que le champ de résonance décroit en augmentant la température. De même, la variation de la fréquence de précession (f_{prec}) , calculée à partir des coefficients d'anisotropie de la FMR, en fonction du champ appliqué suivant l'axe difficile [110] (Fig 3.5.b) montre que $f_{prec} = f_{SAW}$ pour des champs qui décroissent aussi avec la température.



FIGURE 3.5 – a) SAW-FMR pour différentes températures. b) Fréquence de précession calculée à partir des coefficients d'anisotropie de la FMR en fonction du champ appliqué suivant l'axe difficile [110] pour l'échantillon 4EQ64r1 à différentes températures.

A partir de la courbe de la fréquence propre (3.5. b), nous estimons avoir un champ de résonance de 35 mT pour T = 60 K, mais nous l'observons sur la SAW-FMR à 24 mT, une valeur

plus proche au champ de résonance calculé à 80 K. De façon générale, nous remarquons un écart entre les champs prédits et les champs de résonance observés qui augmente en se rapprochant de la T_C . Un effet du chauffage peut engendrer ce désaccord. Par ailleurs, nous avons observé un bon accord entre les champs de résonance de la SAW-FMR et ceux calculés à partir des coefficients d'anisotropie de la FMR pour un composé de type (Ga, Mn)(As, P) où les mesures étaient réalisées avec un taux de répétition de SAW égale à 1 kHz [15]. En effet, pour les mesures de SAW-FMR, l'échantillon est placé dans un cryostat à circulation d'Hélium où le refroidissement se fait par contact indirect avec le réfrigérant. Celui-ci est moins efficace comparé à des cryostats où l'échantillon est placé dans un gaz d'échange qui assure une bonne thermalisation comme dans le cas des expériences FMR.

3.2.3 Dépendance de la SAW-FMR avec la puissance

Sur la figure (3.6. a), nous montrons la variation d'amplitude de la SAW en variant la puissance d'excitation à différentes fréquences de répétition des impulsions RF (f_{rep}) . Pour $f_{rep} = 250$ kHz, en augmentant progressivement la puissance d'excitation, nous observons que la résonance s'élargit et se déplace vers les bas champs. L'atténuation au champ de résonance augmente avec la puissance, ce qui signifie une augmentation de la quantité d'énergie transférée au système magnétique. Ces résultats sont aussi observés à faible taux de répétition $f_{rep} = 7.3$ kHz dans une situation où le chauffage par le signal RF est négligeable (voir la figure 3.6. b). Ce décalage de champ de résonance (down-shift) en augmentant la puissance, peut être ainsi lié à un effet de chauffage ou à une dépendance avec la puissance d'excitation. Pour notre cas, l'origine du chauffage n'est pas l'effet thermoélastique inverse [106] mais plutôt un effet Joule dans les fils d'amenée de courant à l'intérieur du cryostat et/ou directement sur l'échantillon à cause de la résistance finie des peignes.



FIGURE 3.6 – SAW-FMR en variant la puissance d'excitation a) pour $f_{rep} = 250$ kHz b) $f_{rep} = 7.3$ kHz.

Pour caractériser l'effet du chauffage, nous présentons sur la figure (3.7) l'élévation de la température en variant la puissance d'excitation pour $f_{rep} = 2.5$ kHz. Nous remarquons que la variation de la température ΔT augmente en fonction de la puissance d'excitation. Nous

obtenons une élévation de température de l'ordre de 7 K lorsque P_{RF} passe de 6.5 dBm à 28 dBm. Dans la suite, nous utiliserons une méthode mieux adaptée pour faire une étude en fonction de l'amplitude de la SAW. Ceci sera détaillé dans le paragraphe §.3.4.4.



FIGURE 3.7 – Evolution de la température en fonction de la puissance d'excitation pour $T_0 = 81$ K et $f_{SAW} = 452$ MHz.

3.3 Détection du signal magnéto-acoustique

Pour étudier la réponse dynamique de la précession de l'aimantation lors du passage de la SAW, nous avons utilisé un dispositif expérimental développé par Kuszewski [93] qui assure une détection tout optique par un laser pulsé, dit sonde. Ces mesures nécessitent la synchronisation de la détection et de l'excitation électrique. Tout d'abord, nous commençons par une description du dispositif expérimental et les méthodes de détection. Ensuite, nous présentons les résultats obtenus.

3.3.1 Dispositif expérimental et méthode de détection

Le dispositif expérimental présenté sur la figure (3.8.a) se décompose en deux parties : une consacrée à l'excitation électrique de la SAW, et l'autre à la détection du signal magnéto-optique. Pour assurer une phase stable entre l'excitation et la détection du signal, l'idée est de créer le signal électrique radiofréquence à partir du laser. Nous avons utilisé une source laser Titane Saphir à blocage de mode qui produit des impulsions avec une largeur d'environ 130 fs et un taux de répétition de 75 MHz. Une partie du faisceau de sortie est captée par une photodiode lente (PDA10A-EC, Thorlabs) placée derrière une lame partiellement réfléchissante (L1). Le signal de sortie de la photodiode, une sinusoïde à 75 MHz, passe à travers des différents composants RF (filtre, amplificateur, multiplicateur) afin de produire un signal électrique ayant une fréquence multiple de la fréquence fondamentale du laser (f_L) [93]. Avant d'envoyer ce signal vers les IdTs, il doit être modulé par une porte carrée de 400 ns produite par un générateur de signaux (KEY-SIGHT) à la fréquence du faisceau sonde (typiquement 250 kHz). Ce générateur offre aussi la possibilité d'ajuster la largeur des impulsions et leurs temps d'arrivée au transducteur (retard électronique $\Delta \tau$).

a)



 $\begin{array}{l} \mbox{Figure 3.8-a} \ \mbox{Schéma du dispositif expérimental [93]. } f_L : fréquence fondamentale du laser. \\ \mbox{PD} : photodiode. PBS : séparateur de faisceaux polarisant. BS : séparateur de faisceaux non polarisant. b) Schéma illustrant les différents composants du pont de diodes. s : polarisation perpendiculaire au plan d'incidence. p : polarisation dans ce plan. \end{array}$

La partie du faisceau transmise par la lame L1 est envoyée vers un extracteur d'impulsions (Pulse-Picker) qui permet de diviser f_L par un nombre entier N (variant de 2 à 2.6 10^5). Le principe de fonctionnement de cet appareil est basé sur l'effet acousto-optique dans le cristal d'une cellule de Bragg : la propagation périodique d'une onde acoustique produira un réseau d'indice de réfraction de même période. Le faisceau laser interagissant avec ce réseau va être diffracté. Ce système de modulation contient la cellule de Bragg avec deux miroirs de focalisation, et une lame opaque pour bloquer l'ordre 0 de diffraction. Notons que l'extracteur d'impulsions assure une synchronisation avec la fréquence du laser en fournissant la fréquence de référence externe pour le générateur de signaux (KEYSIGHT). Chaque impulsion laser peut être retardée jusqu'à 12 ns en passant dans une ligne à retard optique qui est munie d'une translation mécanique automatisée. En faisant varier le retard temporel, nous aurons accès à l'évolution temporelle du système avec une résolution autour de 0.5 ps. Ensuite, le faisceau est focalisé dans un pinhole de diamètre de 20 µm, qui est situé dans le plan conjugué de l'échantillon pour assurer une grande stabilité spatiale lors du balayage de la ligne à retard. Notons que nous aurons besoin d'une lame demi-onde ($\lambda/2$) pour modifier l'état de polarisation du faisceau, afin de déterminer la dépendance de la précession de l'aimantation avec la polarisation (3.4.1.1). Les impulsions laser à polarisation linéaire seront focalisées sur la surface de l'échantillon en passant par un objectif d'une ouverture numérique de 0.4. Cet objectif est monté sur une platine piézoélectrique qui assure une excursion maximale de 300 µm suivant les trois axes (x, y, z) et une résolution allant jusqu'à 10 nm le long des axes x et y. Le diamètre du spot laser est de l'ordre de 1 µm (à 1/e² en considérant le profil d'intensité) est inférieur à la longueur d'onde de SAW excitée (dans notre cas pour $f_{SAW} = 452$ MHz, nous avons $\lambda_{SAW} \approx 6$ µm).

Le faisceau laser réfléchi sur l'échantillon est ensuite envoyé vers un pont de diodes (voir la figure 3.8. b) permettant de détecter la rotation de polarisation du faisceau par l'échantillon. Ce pont est composé d'un prisme de Glan-Taylor qui sépare le faisceau en deux rayons de polarisations différentes (une réfléchie et une transmise) qui sont détectés par deux photodiodes (PD1, PD2). Ces deux photodiodes convertissent le rayonnement capté en un signal électrique. La différence des courants de sortie est amplifiée. Le signal est ensuite détecté par un amplificateur à détection synchrone à une fréquence de référence de 514 Hz fournie par le hacheur mécanique positionné devant la photodiode lente et modulant ainsi le signal RF excitateur.

L'équilibrage du pont est effectué à l'aide d'une lame $(\lambda/2)$ placée devant le cube en orientant la polarisation incidente à 45° des deux directions de polarisation du prisme. Nous pouvons ainsi mettre à zéro le signal de différence des tensions délivrées par les photodiodes. Nous devons également choisir un gain adéquat à la plage de fonctionnement du circuit de conversion analogiquenumérique. La rotation de polarisation sous l'action des effets magnéto-optiques engendre ainsi un déséquilibre du pont. L'électronique associée peut ainsi fonctionner avec de petits signaux, i.e. en régime linéaire. La résolution du pont dépend essentiellement du rapport signal/bruit et sa sensibilité maximale est d'environ 0.1 µrad.

3.3.2 Dynamique temporelle de la rotation de polarisation

Nous présentons sur la figure (3.9. a) la rotation de polarisation en fonction du retard temporel pour différentes fréquences d'excitations (151, 301, 452 et 602 MHz). Ces mesures sont prises en appliquant un champ égal à 19.5 mT selon l'axe difficile, à une température T =60 K. Notons aussi que la polarisation du faisceau sonde est à 60° par rapport à \mathbf{k}_{SAW} . Nous remarquons que la fréquence du signal détecté est égale à la fréquence SAW excitée. Sur la figure (3.9. b), nous observons que l'amplitude du signal mesuré varie en fonction du champ appliqué. De plus, Kuszewski et collaborateurs [16] ont constaté que ce signal est indépendant du champ au dessus de la T_C .



FIGURE 3.9 – a) Rotation de polarisation en fonction du temps pour différentes fréquences de SAW [93]. b) Variation de la rotation de polarisation pour différents champs appliqués pour T=80 K.

Les résultats obtenus s'expliquent par le fait que le signal de rotation de polarisation comprend une contribution magnétique (effet Kerr et effet Voigt) et une autre non magnétique résultant de l'effet photo-élastique. Dans l'approximation des petites amplitudes de rotation, la rotation de polarisation mesurée peut être décrite comme suit [16] :

$$\delta\beta(\beta, H, t) = K\delta\theta(H, t) + 2V\delta\varphi(H, t)\cos 2(\beta - \varphi_0(H)) + P_E\epsilon_{xx}(t)\sin 2\beta, \tag{3.1}$$

où β est l'angle de polarisation de la sonde par rapport $\mathbf{k_{SAW}}$ (Fig.3.10), K et V sont respectivement les coefficients Kerr et Voigt (voir chapitre 1 §1. 5), et $P_E = Re\left(\frac{n^3 P_{44}}{n^2-1}\right)$ est le coefficient magnéto-élastique où n est l'indice de réfraction et P_{44} est le coefficient photo-élastique [107]. $\delta\theta$ et $\delta\varphi$ sont les variations de l'angle polaire et azimutal de l'aimantation, respectivement. L'angle φ_0 repère la position d'équilibre de l'aimantation par rapport à $\mathbf{k_{SAW}}$.



FIGURE 3.10 – Repère de coordonnées utilisé pour les mesures de rotation de polarisation.

3.3.3 Dynamique spatiale du signal magnéto-acoustique

La fixation de l'objectif à une platine piézoélectrique nous a permis de réaliser des cartographies de la propagation de SAW et de la précession de l'aimantation. Dans ce dernier cas, cette méthode est connue sous le nom de microscopie Kerr à balayage (scanning Kerr microscopy en anglais). Sur la figure (3.11. a), nous présentons la cartographie spatiale du signal magnétoacoustique ($f_{SAW} = 452$ MHz) en appliquant un champ égal à 6 mT et à T = 80 K. Nous observons la propagation des fronts d'onde plans avec une longueur d'onde $\lambda_{SAW} \simeq 6$ µm (cette valeur est estimée à partir d'une transformée de Fourier). Pour identifier chaque partie de la cartographie (les IdTs, la partie GaAs), nous avons effectué une image de réflectivité (Fig. 3.11. b) en enregistrant le signal d'une seule diode du pont à la fréquence de l'extracteur d'impulsions. Le changement d'intensité indique ainsi la variation de l'indice de réfraction. Comme les Idts sont des métaux très réfléchissant, nous pouvons alors les distinguer.



FIGURE 3.11 – a) Un exemple d'une cartographie de la rotation de polarisation sur une zone de l'échantillon comprenant une partie des transducteurs, une zone de GaAs et une zone de (Ga,Mn)As, comme montré sur l'image de l'échantillon à gauche. Le rectangle pointillé indique les dimensions de la carte avec $f_{SAW} = 452$ MHz, $P_{RF} = 28$ dBm, $\mu_0 H = 6$ mT et T= 80 K. b) Une cartographie de réflectivité.

3.3.4 Doublement de la fréquence

En augmentant la puissance de la SAW, nous obtenons dans certaines conditions de champ appliqué et de température l'apparition de nouvelles fréquences dans le spectre du signal temporel de rotation de polarisation. La figure 3.12, montre l'apparition d'une fréquence égale à $2f_{SAW}$ sur le signal temporel de la rotation de polarisation pour $f_{SAW} = 452$ MHz, avec une puissance d'excitation égale à 21 dBm et sous un champ magnétique de 0.4 mT. De même, nous remarquons l'apparition de la fréquence spatiale double (longueur d'onde moitié $\lambda_{SAW}/2$) sur la cartographie de la rotation de polarisation (Fig. 3.12.b). Pour vérifier s'il s'agit d'un doublement de fréquence de l'onde acoustique, nous détectons le signal temporel sur la partie de GaAs entre l'IdT d'excitation et (Ga,Mn)As dans les mêmes conditions de forte excitation (Fig. 3.12.c). Nous constatons l'existence d'une seule fréquence acoustique. Nous concluons que les IdTs génèrent une SAW à une seule fréquence et ces effets non linéaires ne peuvent être expliqués que par des non-linéarités de la dynamique d'aimantation.



FIGURE 3.12 – a) Signal temporel de la rotation de polarisation sur la partie de (Ga, Mn)As pour $f_{SAW} = 452$ MHz, une puissance d'excitation égale à 21 dBm et $\mu_0 H = 0.6$ mT . b) Cartographie de la rotation de polarisation montrant les périodes spatiales de λ_{SAW} et $\lambda_{SAW}/2$ pour une polarisation du faisceau selon [1-10] ($\beta = 0^{\circ}$) et à $\mu_0 H = 0.4$ mT. c) Signal temporel sur la partie de GaAs. Le signal a été lissé car il est souvent assez bruité sur la partie GaAs qui a subi une attaque chimique.

3.3.5 Importance de la focalisation du faisceau

Pour déterminer les amplitudes de la précession de l'aimantation avec une bonne précision nous devons tenir compte du fait que le signal est convolué par une Gaussienne décrivant le profil radial de la tache de focalisation du laser.

Considérons le profil gaussien suivant :

$$G(r) = \frac{1}{\sigma\sqrt{\pi/2}} exp[\frac{-2r^2}{\sigma^2}]$$
(3.2)

où la largeur à mi-hauteur est égale à $2\sigma\sqrt{\ln 4}$.

Rappelons aussi que la rotation de polarisation peut être décrite par l'expression suivante à un temps donné :

$$\delta\beta = A_{f_{SAW}}^{r\acute{e}l}\cos\left(k_{SAW}x\right) + A_{2f_{SAW}}^{r\acute{e}l}\cos\left(2k_{SAW}x + \phi\right)$$
(3.3)

où $k_{SAW} = \frac{2\pi}{\lambda_{SAW}}$. $A_{2f_{SAW}}^{r\acute{e}l}$ et $A_{2f_{SAW}}^{r\acute{e}l}$ représentent les amplitudes réelles de la précession de l'aimantation respectivement à f_{SAW} et à 2 f_{SAW} .

En effectuant la convolution du signal avec le profil spatial Gaussien G(x) de la tache du laser, nous obtenons ainsi l'amplitude détectée de la précession de l'aimantation $(A_{f_{SAW}}^{détec}, A_{2f_{SAW}}^{détec})$ avec :

$$A_{f_{SAW}}^{r\acute{e}l} = A_{f_{SAW}}^{d\acute{e}tec} exp[\frac{\pi\sigma^2}{2\lambda_{SAW}^2}]$$
(3.4)

$$A_{2f_{SAW}}^{r\acute{e}l} = A_{f_{SAW}}^{d\acute{e}tec} exp[\frac{2\pi\sigma^2}{\lambda_{SAW}^2}]$$
(3.5)

3.4 Etude des effets non-linéaires

3.4.1 Dépendance en champ magnétique

3.4.1.1 Méthodologie de mesure

La rotation de polarisation de l'aimantation dépend à la fois de la dynamique d'aimantation (dans le plan et hors du plan), et de la déformation. A travers une étude en fonction de la polarisation, nous pouvons extraire les différentes contributions. Pour mettre en évidence la précession de l'aimantation excitée par la SAW, nous avons effectué des balayages temporels pour différentes polarisations de la sonde. Sur la figure (3.13), nous présentons le signal mesuré pour 6 orientations de la polarisation du faisceau en appliquant un champ magnétique ($\mu_0 H=$ 0. 6 mT et $\mu_0 H = 7$ mT) pour $f_{SAW} = 452$ MHz et à T= 75 K. Le signal mesuré montre une dépendance avec la polarisation de la sonde. De plus, en appliquant le champ magnétique nous constatons une diminution de l'amplitude de rotation de la polarisation en augmentant le champ et l'apparition d'une composante continue du signal (voir la courbe bleu foncé de la Fig.3.13.(b)). Nous remarquons aussi l'apparition d'un doublement de fréquence qui est plus prononcé à faible champ. Pour mieux comprendre ce comportement, nous effectuerons une étude en fonction du champ par la suite (3.4.1.2).

Nous analysons le signal obtenu en fonction du temps pour les six polarisations de la sonde. Pour distinguer chaque composante du signal temporel, nous avons effectué pour chaque temps un ajustement qui dépend de l'angle de polarisation en utilisant l'expression suivante [16] :



FIGURE 3.13 – Signal temporel de la rotation de polarisation pour différentes polarisations du faisceau à T = 75 K en appliquant un champ magnétique a) $\mu_0 H = 0.6$ mT b) $\mu_0 H = 7$ mT.

$$\delta\beta = F_{\theta} + G_{\varphi}\cos 2\beta + H_{\varphi\epsilon}\sin 2\beta, \tag{3.6}$$

En utilisant l'équation 3.1, nous obtenons

$$\begin{cases} F_{\theta}(H, t) = K\delta\theta(H, t) \\ G_{\varphi}(H, t) = 2V\delta\varphi(H, t)\cos 2\varphi_{0}(H) \\ H_{\varphi\epsilon}(H, t) = 2V\delta\varphi(H, t)\sin 2\varphi_{0}(H) + P_{E}\epsilon_{xx}(t) \end{cases}$$
(3.7)

La composante F_{θ} est proportionnelle à la composante dynamique hors-plan de l'aimantation $(\delta\theta)$ via l'effet Kerr polaire. La composante G_{φ} donnera accès à la composante dans le plan de l'aimantation $(\delta\varphi)$ via l'effet Voigt et la composante $H_{\varphi\epsilon}$ dépend à la fois de cette dernière composante et de l'amplitude de l'onde acoustique. Ces fonctions dépendantes du temps seront par la suite ajustées par une somme de fonctions sinusoïdales aux fréquences égales à f_{SAW} et $2f_{SAW}$. Les résultats obtenus permettront ainsi de distinguer les différentes contributions dans la rotation de la polarisation et de déterminer leurs amplitudes en fonction du champ magnétique. Il est important de noter que la présence d'effets Kerr et Voigt donne accès à la contribution magnétique dynamique dans le plan et hors du plan. Nous détaillons par la suite les différentes résultats obtenus.

3.4.1.2 Discussion des résultats

Pour mettre en évidence la dépendance du signal magnéto-optique avec le champ magnétique, nous nous concentrons plutôt sur l'amplitude du signal Kerr du fait qu'il est indépendant de la polarisation. Sur la figure (3.14.a), nous présentons en fonction du champ appliqué, l'évolution de l'amplitude du signal Kerr polaire obtenue par un ajustement avec une somme de deux fonctions sinusoïdales de fréquences f_{SAW} et $2f_{SAW}$ respectivement. L'amplitude de la précession de l'aimantation hors du plan à f_{SAW} présente deux maxima : le premier peut atteindre 100 µrad pour $\mu_0 H = 0.4$ mT et le second 50 µrad pour $\mu_0 H = 9$ mT. Cette contribution à f_{SAW} tend vers zéro au delà de 15mT. La composante à $2f_{SAW}$ possède aussi deux pics pour les même valeurs du champ mais elle s'éteint entre ces deux maxima. En comparant le signal magnéto-optique avec une mesure de SAW-FMR réalisée dans les mêmes conditions ($P_{RF} = 27$ dBm et à T = 75 K), nous remarquons que les deux pics du signal Kerr à f_{SAW} et $2f_{SAW}$ sont observés aux champs de résonance ($\mu_0 H = 0.4$ mT et $\mu_0 H = 9$ mT).



FIGURE 3.14 – a) La variation du signal Kerr en fonction du champ appliqué. b) SAW-FMR pour $P_{RF} = 27$ dBm et à T = 75 K

3.4.2 Dépendance en température

Sur le panneau du haut de la figure (3.15), nous présentons le signal Kerr en fonction du champ appliqué à différentes températures. Nous remarquons que l'amplitude du signal augmente en fonction de l'élévation de la température. Pour T=42 K, nous n'obtenons qu'un seul pic pour les amplitudes à f_{SAW} et $2f_{SAW}$ pour $\mu_0 H = 26$ mT (fort champ). Par contre pour T=67 K, nous observons deux maxima pour l'amplitude à f_{SAW} , l'un à faible champ (<1mT) et l'autre à fort champ (12 mT). L'amplitude à $2f_{SAW}$ montre un maximum large à fort champ. A T = 75 K, nous observons deux résonances pour les amplitudes à f_{SAW} et $2f_{SAW}$, l'une large qui est toujours à fort champ (9 mT) et une autre, plus étroite et intense, à faible champ (0.4 mT). Une comparaison entre la détection optique de la précession de l'aimantation et la mesure de SAW-FMR indique que les pics sont obtenus uniquement aux champs de résonance et que la méthode optique est plus sensible que les mesures électriques : à 67K par exemple nous observons un pic bas champ en optique, mais pas en SAW-FMR.



3.4.3 Interprétation qualitative

Comme vu précédemment, la variation du signal Kerr en fonction du champ appliqué indique la présence d'une seule résonance à basse température (Fig. (3.15. a) et deux résonances à haute température (Fig. 3.15. b,c). Nous pouvons interpréter qualitativement ce fait expérimental en traçant la courbe de la fréquence de précession calculée à partir des coefficients d'anisotropie de la FMR en fonction du champ appliqué suivant l'axe difficile [110] pour les températures effectives correspondant aux températures de consigne T=42 K et T=75 K (Fig. 3.16). Nous remarquons qu'à 42 K, la courbe f_{prec} intercepte f_{SAW} et $2f_{SAW}$ vers 25 mT : on attend donc un comportement résonant de la précession à ce champ. En augmentant la température, nous observons que la courbe calculée croise les fréquences f_{SAW} et $2f_{SAW}$ pour le domaine de champ (7-9 mT) et s'en approche pour le domaine (<1mT) : une augmentation des amplitudes de précession est attendue dans ces deux domaines de champ. Notons que pour un champ parfaitement aligné suivant l'axe [110], au dessus de la valeur du champ qui aligne totalement l'aimantation dans sa direction H_a (26 mT à T=42 K et 9 mT à T=75 K), la précession de l'aimantation ne peut plus être excitée et on n'attend pas de résonance [15]. Cette interprétation qualitative sera confirmée dans la partie modélisation qui sera présentée dans la suite (3.5).



FIGURE 3.16 – Fréquence de précession calculée à partir des coefficients d'anisotropie de la FMR en fonction du champ appliqué suivant l'axe difficile [110] a) pour T =42 K. b) pour T = 75 K.

3.4.4 Dépendance avec l'amplitude de l'onde acoustique

Nous avons vu dans le paragraphe 3.3.4, l'apparition de $2f_{SAW}$ dans le temps (dans l'espace) comme une signature de la non-linéarité. Nous prévoyons alors une variation non linéaire de l'amplitude de précession avec l'amplitude acoustique. Pour mieux comprendre cette variation, nous allons essayer de mesurer la variation de rotation de polarisation pour différentes puissances d'excitation. Cependant, pour s'assurer que les mesures sont effectuées à une température effective stationnaire constante, nous étudions la dépendance de l'amplitude de précession avec l'amplitude de l'onde acoustique en employant une méthode simple développée par Kuszewski et collaborateurs [16]. Nous commençons par présenter cette méthodologie de mesure. Ensuite, nous discuterons les résultats obtenus.

3.4.4.1 Méthodologie de mesure

Afin de comprendre l'effet de la variation de l'amplitude de l'onde acoustique, nous proposons d'exploiter le régime transitoire de l'impulsion acoustique. En effet, nous allons mesurer l'amplitude du signal magnéto-acoustique pour divers retards électroniques après le début de l'impulsion acoustique [93]. Pour chaque $\Delta \tau$, le signal est mesuré en fonction du retard temporel et l'amplitude est extraite par un ajustement de la courbe avec une fonction sinusoïdale. D'abord, nous plaçons la sonde sur la partie (Ga,Mn)As proche de l'IdT 1 (l'émetteur). Ensuite, nous mesurons le signal à différents points du régime transitoire en variant le retard entre l'excitation électrique et la détection optique. Nous rappelons que le temps de montée de la SAW est de quelques centaines de ns et avec la ligne à retard nous pouvons explorer une fenêtre de 12 ns à l'intérieur de ce régime transitoire où l'amplitude de la SAW est quasi-constante (Fig 3.17.a). Nous présentons ainsi l'amplitude du signal magnéto-optique en fonction de $\Delta \tau$ (cercle vide dans la figure. 3.17.b). Nous remarquons que le signale détecté optiquement ayant une forme semblable à celle du signal acoustique détecté via l'IdT, arrive un peu en avant car il est détecté près de l'IDT d'excitation. Il faut mentionner qu'aucun signal n'est observé à l'arrivée du signal électromagnétique.



FIGURE 3.17 – a) Régime transitoire de la SAW. Le rectangle rouge présente le temps du balayage de la ligne à retard (12 ns). b) La courbe rouge représente le signal temporel détecté électriquement et la courbe noire (cercle vide) représentent l'amplitude du signal Kerr détecté pour $P_{RF} = 25$ dBm, $\mu_0 H = 8.5$ mT et $\beta = 30^{\circ}$ [16].

3.4.4.2 Discussion des résultats

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons à la dépendance de l'amplitude de précession avec l'amplitude de l'onde acoustique aux champs de résonance. Précisément, à un faible champ ($\mu_0 H = 0.8 \text{ mT}$) où l'amplitude de précession à 2 f_{SAW} est assez prononcée et également à un champ plus fort ($\mu_0 H = 8.5 \text{ mT}$) pour lequel l'amplitude du signal Kerr à 2 f_{SAW} est faible (Fig.3.18. a). Tout d'abord, nous positionnons la sonde sur la partie (Ga,Mn)As proche de l'IdT 1 avec $\beta = 0^{\circ}$ pour minimiser l'effet photo-élastique de sorte que la rotation de polarisation décrit les composantes hors plan et dans le plan de la dynamique de l'aimantation. Nous mesurons aussi le signal sur la partie GaAs qui est proportionnel à la déformation grâce à l'effet photo-élastique (voir 3.4.1.1). En adoptant ainsi la méthodologie de la mesure explicitée précédemment pour une seule polarisation, nous présentons sur la figure (3.18. b) l'amplitude du signal à f_{SAW} et à 2 f_{SAW} mesuré sur la partie (Ga, Mn)As ainsi que l'amplitude du signal à f_{SAW} sur la partie GaAs. Nous constatons que l'évolution de l'amplitude de la précession de l'aimantation en fonction du retard électronique a une allure quasi-identique à celle de la SAW. Notons aussi que le signal photoélastique dû à la SAW reste faible par rapport au signal magnéto-optique à f_{SAW} et à 2 f_{SAW} .



FIGURE 3.18 – a) Evolution du signal Kerr en fonction du champ appliqué pour $P_{RF} = 27$ dBm et à T = 75 K (cf. Fig. 3.14). Les flèches indiquent à quels champs les mesures sont effectuées. b) Variation de l'amplitude de la précession de l'aimantation (mesurée sur la partie (Ga, Mn)As et sur la partie GaAs) en fonction du retard électronique; l'angle de polarisation est $\beta = 0^{\circ}$ pour (Ga,Mn)As et $\beta = 45^{\circ}$ pour GaAs.

Nous représentons la variation de $A_{f_{SAW}}$ et $A_{2f_{SAW}}$ en fonction de A_{GaAs} sur la figure (3.19) autrement dit nous étudions le comportement de l'amplitude de la précession de l'aimantation à f_{SAW} et à 2 f_{SAW} en fonction de l'amplitude de la SAW pour $\mu_0 H = 0.8$ mT et T = 75 K. La variation de l'amplitude de la précession de l'aimantation à f_{SAW} présente tout d'abord un comportement linéaire pour des faibles amplitudes de la SAW (jusqu'à 7 µrad), ensuite cette évolution devient nettement « sous-linéaire » à partir de A_{GaAs} de l'ordre de 12 µrad alors que $A_{2f_{SAW}}$ est quadratique sur tout le domaine exploré.



FIGURE 3.19 – Amplitude de la précession de l'aimantation à f_{SAW} et à 2 f_{SAW} en fonction de l'amplitude de la SAW pour $P_{RF} = 27$ dBm et à T = 75 K pour $\mu_0 H = 0.8$ mT.

Pour mieux comprendre les résultats expérimentaux et pour reproduire les comportements de doublement de fréquence observés, nous proposons dans la suite d'effectuer une résolution analytique de l'équation de LLG en tenant compte de la propagation de la SAW. En complément de cette approche théorique, les résultats des simulations numériques seront confrontés aux données expérimentales.

3.5 Modélisation des effets non linéaires

Le plus souvent, pour modéliser une dynamique d'aimantation non-linéaire, les auteurs ont recours à une résolution numérique de l'équation LLG, ce qui ne permet pas de bien séparer le rôle des différents paramètres [108, 109]. Nous suggérons ainsi le recours à la résolution analytique en partant des travaux de Chang et collaborateurs [103]. Ils ont proposé un modèle tout analytique qui décrit la dynamique de l'aimantation par un oscillateur paramétrique dont la fréquence et l'amortissement dépendent eux mêmes de l'excitation. En effet, ils ont montré que la propagation d'une déformation élastique engendre une excitation paramétrique de la précession de l'aimantation qui peut expliquer la réponse non linéaire du système magnétique. Chang et collaborateurs ont réussi à mettre en évidence la présence d'une résonance magnéto-acoustique et d'illustrer l'influence de chaque paramètre agissant sur l'amplitude de la précession de l'aimantation à f_{SAW} et $2f_{SAW}$. En revanche, ce modèle montrait certaines incohérences et limites comme par exemple la nécessité d'imposer une amplitude de SAW extrêmement grande ($\epsilon_{xx,0} = 10^{-2}$) pour assurer un bon accord avec les résultats expérimentaux. Nous remarquons aussi que Chang et collaborateurs n'ont pas traité l'aspect spatial ni dans leur approche d'oscillateur paramétrique ni dans les expériences. De plus, leurs équations qui décrivent le comportement des amplitudes de précession dans le plan et hors plan, sont couplées mais sans avoir le même amortissement pour les deux. Nous proposons ainsi d'améliorer ce modèle analytique en nous assurant d'avoir les mêmes fréquences et amortissements pour les deux modes couplés en introduisant l'anisotropie magnétique des couches de (Ga, Mn)As étudiées expérimentalement.

Tout d'abord, nous commençons par une linéarisation de l'équation LLG (voir chapitre 1 §1.6.1) dans le cadre de l'approximation de la précession aux petits angles en gardant la nonlinéarité associée uniquement à la SAW. Nous obtenons ainsi des équations d'oscillateurs paramétriques couplées pour les deux coordonnées de l'aimantation dans le plan et hors du plan où nous ne garderons que des termes qui donneront des oscillations à f_{SAW} et à 2 f_{SAW} .

3.5.1 Equations linéarisées couplées

Notre point de départ est de linéariser l'équation LLG par rapport aux petits écarts à la positon d'équilibre, en tenant compte de la propagation de la SAW :

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma \mathbf{m} \times \mathbf{B}_{eff} + \alpha \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} , \qquad (3.8)$$

où $\mathbf{m} = \frac{\mathbf{M}(\mathbf{t})}{|\mathbf{M}_{\mathbf{s}}|}$ est le vecteur unitaire de l'aimantation. $\mathbf{B}_{eff} = -\nabla_{\mathbf{m}} F_m$ et $F_m = \frac{E_m}{M_s}$ où E_m désigne la densité volumique d'énergie libre du système magnétique.

Cette énergie est composée d'une partie indépendante de la SAW qui correspond à l'énergie magnétique (E_m) contenant l'énergie Zeeman, l'énergie d'anisotropie de forme et magnétocristalline :

$$F_m(\theta,\varphi) = \frac{E_m}{M_s} = -\mu_0 H \left[\cos\theta \cdot \cos\theta_H + \sin\theta \cdot \sin\theta_H \cos(\varphi - \varphi_H) \right] + \frac{\mathbf{B}_d}{2} \cos^2\theta + \frac{1}{M_s} (-K_{2\perp} \cos^2\theta_H + \sin^2\theta_H + \sin^2\theta_H$$

$$-\frac{1}{2}K_{4\perp}\cos^4\theta - \frac{K_{4\parallel}}{2}\frac{(3+\cos4\varphi)}{4}\sin^4\theta - K_{2\parallel}\sin^2\theta\sin^2(\varphi - \frac{\pi}{4}))$$
(3.9)

Notons que cette contribution statique décrit le couplage magnéto-élastique du à la déformation épitaxiale.

F comporte aussi une partie dynamique (F^{SAW}_{mel}) liée à la propagation de la SAW :

$$F_{mel}^{SAW} = \frac{E_{mel}^{SAW}}{M_s} = \frac{B_1}{M_s} (m_x^2 \epsilon_{xx} + m_y^2 \epsilon_{yy} + m_z^2 \epsilon_{zz}) + \frac{2B_2}{M_s} (m_x m_y \epsilon_{xy} + m_x m_z \epsilon_{xz} + m_y m_z \epsilon_{yz}) \quad (3.10)$$

où les $\epsilon_{i,j}$ sont les composantes de déformation de la SAW dans le repère lié aux axes <100> du cube.

Dans le système de coordonnées sphériques de l'aimantation (angle polaire θ et azimutal φ) et pour une aimantation à l'équilibre dans le plan de la couche ($\theta_0 = \pi/2$), nous supposons une précession de l'aimantation aux petits angles autour de cette position :

$$\begin{aligned} \theta &= \theta_0 + \delta \theta(r, t) \\ \varphi &= \varphi_0 + \delta \varphi(r, t) \end{aligned}$$
 (3.11)

A partir de l'équation LLG, nous déduisons les deux équations suivantes pour $\delta\theta$ et $\delta\varphi$:

$$\dot{\delta\theta}(r,t) + \alpha\dot{\delta\varphi}(r,t) + \left(\omega^{0}_{\varphi\varphi} + \omega^{SAW}_{\varphi\varphi}\right)\delta\varphi + \omega^{SAW}_{\theta\varphi}\delta\theta + \omega^{SAW}_{\varphi} = 0$$

$$\dot{\delta\varphi}(r,t) - \alpha\dot{\delta\theta}(r,t) - \left(\omega^{0}_{\theta\theta} + \omega^{SAW}_{\theta\theta}\right)\delta\theta + \omega^{SAW}_{\theta\varphi}\delta\varphi + \omega^{SAW}_{\theta} = 0$$
(3.12)

avec $\omega_{ij}^0 = \gamma \frac{d^2 F_m}{di dj}, \ \omega_{ij}^{SAW} = \gamma \frac{d^2 F_{mel}^{SAW}}{di dj}, \ \omega_i^{SAW} = \gamma \frac{d F_{mel}^{SAW}}{di}$. Le point signifie une dérivée par rapport au temps $(i, j = \theta, \varphi)$.

Notons que ω_{ij}^0 dépend des constantes d'anisotropie et du champ magnétique appliqué alors que ω_{ij}^{SAW} est liée à l'amplitude de la SAW et des coefficients magnéto-élastiques. Dans ces équations (1.18), nous remarquons la présence des éléments qui sont le produit de deux termes oscillant à ω_{SAW} comme $\omega_{\varphi\varphi}^{SAW}\delta\varphi$ ou $\omega_{\theta\theta}^{SAW}\delta\theta$ induisent ainsi des oscillations à $2\omega_{SAW}$ et des termes constants. Ceci est analogue au cas d'un circuit électrique avec un courant et une résistance oscillants à ω ce qui induit alors une tension oscillante à 2ω et un terme constant. Nous pouvons alors obtenir un doublement de fréquence (signature de la non-linéarité) en linéarisant LLG sans tenir en compte la non-linéarité intrinsèque au système magnétique. En effet, dans notre approche, nous avons négligé les termes non linéaires liés à l'aimantation ($\delta\theta^2$, $\delta\varphi^2$, $\delta\theta\delta\varphi$) qui peuvent induire des oscillations à la fréquence double de la SAW. Nous nous contentons alors uniquement de la non-linéarité liée à la SAW.

3.5.2 Fréquence et amortissement

En dérivant les équations (1.18) par rapport au temps, nous obtenons les équations d'oscillateurs pour $\delta\theta$ et $\delta\varphi$ avec des paramètres (fréquence et amortissement) dépendant de l'excitation (le calcul complet peut être trouvé dans l'annexe) :

$$\ddot{\delta\theta} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_{1\epsilon}\right)\dot{\delta\theta} + \left(\Omega_0^2 + \Omega_{1\epsilon}^2 + \Omega_{1\epsilon\theta}^2 + \Omega_{2\epsilon}^2\right)\delta\theta + C_{1\epsilon\theta}\delta\varphi = \mathbf{F}_{1\epsilon\theta} + \mathbf{F}_{2\epsilon\theta}$$
(3.13)

$$\ddot{\delta\varphi} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_{1\epsilon}\right)\dot{\delta\varphi} + \left(\Omega_0^2 + \Omega_{1\epsilon}^2 + \Omega_{1\epsilon\phi}^2 + \Omega_{2\epsilon}^2\right)\delta\varphi + C_{1\epsilon\phi}\delta\theta = F_{1\epsilon\varphi} + F_{2\epsilon\varphi}$$
(3.14)

Nous remarquons la présence des termes d'amortissement (Γ) , de fréquence (Ω) , de couplage (C) et de force (F).

Ces paramètres comprennent deux types de termes :

Des termes indépendants de la déformation dynamique de la SAW :

$$\Gamma_0 = \frac{\alpha}{2(1+\alpha^2)} \left(\omega_{\theta\theta} + \omega_{\varphi\varphi}\right)$$

$$\Omega_0^2 = \frac{1}{1+\alpha^2} \omega_{\theta\theta} \omega_{\varphi\varphi}$$
(3.15)

Des termes qui dépendent linéairement des composantes de déformation dynamique :

$$\Gamma_{1\epsilon} = \frac{\alpha}{2\left(1+\alpha^2\right)} \left(\omega_{\theta\theta}^{SAW} + \omega_{\varphi\varphi}^{SAW}\right) \tag{3.16}$$

$$\Omega_{1\epsilon}^2 = \frac{1}{1+\alpha^2} \left(\omega_{\varphi\varphi} \omega_{\theta\theta}^{SAW} + \omega_{\theta\theta} \omega_{\varphi\varphi}^{SAW} \right)$$
(3.17)

$$\Omega_{1\epsilon\theta}^2 = \frac{1}{1+\alpha^2} \left(\alpha \dot{\omega}_{\theta\theta}^{SAW} + \dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} \right) \tag{3.18}$$

$$\Omega_{1\epsilon\varphi}^2 = \frac{1}{1+\alpha^2} \left(\alpha \dot{\omega}_{\varphi\varphi}^{SAW} - \dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} \right)$$
(3.19)

$$C_{1\epsilon\theta} = \frac{1}{1+\alpha^2} \left(\dot{\omega}_{\varphi\varphi}^{SAW} + \alpha \dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} \right) \tag{3.20}$$

$$C_{1\epsilon\varphi} = \frac{1}{1+\alpha^2} \left(-\dot{\omega}_{\theta\theta}^{SAW} + \alpha \dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} \right)$$
(3.21)

$$F_{1\epsilon\theta} = -\frac{1}{1+\alpha^2} \left(\alpha \dot{\omega}_{\theta}^{SAW} + \dot{\omega}_{\varphi}^{SAW} + \omega_{\theta}^{SAW} \omega_{\varphi\varphi} \right)$$
(3.22)

$$F_{1\epsilon\varphi} = -\frac{1}{1+\alpha^2} \left(-\dot{\omega}_{\theta}^{SAW} + \alpha \dot{\omega}_{\varphi}^{SAW} + \omega_{\varphi}^{SAW} \omega_{\theta\theta} \right)$$
(3.23)

Les termes qui sont quadratiques en ϵ_{ij} :

$$\Omega_{2\epsilon}^2 = \frac{1}{1+\alpha^2} \left(\omega_{\theta\theta}^{SAW} \omega_{\varphi\varphi}^{SAW} - \left(\omega_{\theta\varphi}^{SAW} \right)^2 \right)$$
(3.24)

$$F_{2\epsilon\theta} = -\frac{1}{1+\alpha^2} \left(-\omega_{\theta\varphi}^{SAW} \omega_{\varphi}^{SAW} + \omega_{\theta}^{SAW} \omega_{\varphi\varphi}^{SAW} \right)$$
(3.25)

$$F_{2\epsilon\phi} = -\frac{1}{1+\alpha^2} \left(-\omega_{\theta\varphi}^{SAW} \omega_{\theta}^{SAW} + \omega_{\varphi}^{SAW} \omega_{\theta\theta}^{SAW} \right)$$
(3.26)

avec
$$\omega_{ij} = \gamma \frac{d^2 F}{di \, dj}, \ \omega_{ij}^{SAW} = \gamma \frac{d^2 F_{mel}^{SAW}}{di \, dj}, \ \omega_i^{SAW} = \gamma \frac{d F_{mel}^{SAW}}{di}.$$

Notons que les termes en $\Omega_{2\epsilon}^2 \delta \theta$ et $\Omega_{2\epsilon}^2 \delta \varphi$ génèrent des termes à la fréquence de $3f_{SAW}$ qui seront alors négligés dans la suite du calcul. Les équations (3.13-3.14) deviennent :

$$\ddot{\delta\theta} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_{1\epsilon}\right)\dot{\delta\theta} + \delta\theta\left(\Omega_0^2 + \Omega_{1\epsilon}^2 + \Omega_{1\epsilon\theta}^2\right) + C_{1\epsilon\theta}\delta\phi = F_{1\epsilon\theta} + F_{2\epsilon\theta}$$
(3.27)

$$\ddot{\delta\phi} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_{1\epsilon}\right)\dot{\delta\phi} + \delta\phi\left(\Omega_0^2 + \Omega_{1\epsilon}^2 + \Omega_{1\epsilon\phi}^2\right) + C_{1\epsilon\phi}\delta\theta = F_{1\epsilon\phi} + F_{2\epsilon\phi}$$
(3.28)

Dans le dispositif expérimental considéré dans ce travail, la propagation de la SAW est suivant [-110] du fait que le GaAs n'est piézoélectrique que selon les axes [-110] et [110]. Rappelons que les composantes non nulles du tenseur de déformation sont ϵ_{XX} ($\mathbf{k}_{SAW}//X$), ϵ_{ZZ} et ϵ_{XZ} dans le repère défini par les axes [-110], [-1-10] et [001] (§3.1). Pour déterminer la dépendance des paramètres des équations d'oscillateur avec les composantes de la SAW, en utilisant l'expression de l'énergie magnéto-élastique (§3.10) où x, y, z sont les axes liés aux directions [100], [010], [001], nous devons alors effectuer un changement de repère. Comme l'échantillon est aimanté dans le plan, l'onde acoustique agit sur l'aimantation via $K_{2\parallel}$ qui correspond à une déformation de cisaillement ($\epsilon_{XX} \neq \epsilon_{YY}$). Donc ne gardant que la composante ϵ_{XX} ayant une contribution dominante (prouvée à partir des simulations numériques), les équations (3.27-3.28) deviennent alors :

$$\ddot{\delta\theta} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_1 \epsilon_{XX}\right)\dot{\delta\theta} + \left(\Omega_0^2 + \Omega_1^2 \epsilon_{XX}\right)\delta\theta + C_\theta \omega_{SAW}^{-1}\dot{\epsilon}_{XX}\delta\varphi = F_{1\theta}\omega_{SAW}^{-1}\dot{\epsilon}_{XX} \tag{3.29}$$

$$\ddot{\delta\varphi} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_1 \epsilon_{XX}\right)\dot{\delta\varphi} + \left(\Omega_0^2 + \Omega_1^2 \epsilon_{XX}\right)\delta\varphi + C_{\varphi}\omega_{SAW}^{-1}\dot{\epsilon}_{XX}\delta\theta = \mathbf{F}_{1\varphi}\epsilon_{XX} + \mathbf{F}_{2\varphi}\epsilon_{XX}^2 \quad (3.30)$$

avec $\epsilon_{XX}(t) = \epsilon_{XX}^0 \cos(\omega_{SAW}t - \mathbf{k}_{\mathbf{SAW}}x)$ et $\omega_{SAW} = 2\pi f_{SAW}$.

En ne tenant compte que des termes à l'ordre 1 en α , les expressions des différents paramètres de l'oscillateur paramétrique (amortissement (Γ), fréquence (Ω), couplage (C) et force (F)) deviennent :

$$\Gamma_1 = \frac{\alpha}{2} \left(-\omega_1 + 3\omega_2 \cos 2\varphi_0 \right) \tag{3.31}$$

$$\Omega_1^2 = -\omega_2 \cos 2\varphi_0 (2\omega_{\theta\theta} + \omega_{\varphi\varphi}) - \omega_1 \omega_{\varphi\varphi} \tag{3.32}$$

$$C_{\theta} = -2\omega_2 \omega_{SAW} \cos 2\varphi_0 \tag{3.33}$$

$$C_{\varphi} = \omega_{SAW} \left(\omega_1 + \omega_2 \cos 2\varphi_0 \right) \tag{3.34}$$

$$\mathbf{F}_{1\theta} = \omega_2 \omega_{SAW} \sin 2\varphi_0 \tag{3.35}$$

$$\mathbf{F}_{1\varphi} = \omega_2 \omega_{\theta\theta} \sin 2\varphi_0 \tag{3.36}$$

$$F_{2\varphi} = -\omega_2 \left(\omega_1 + \omega_2 \cos 2\varphi_0\right) \sin 2\varphi_0 \tag{3.37}$$

Nous définissons $\omega_1 = \gamma \frac{B_1}{M_S}$ et $\omega_2 = \gamma \frac{B_2}{M_S}$. φ_0 est défini par rapport à \mathbf{k}_{SAW} .

En absence d'excitation par la SAW, nous obtenons la même fréquence et le même amortissement pour les deux équations d'oscillateurs respectivement $\delta\theta$ et $\delta\varphi$. Cette fréquence et cet amortissement dépendent de valeurs des constantes d'anisotropie magnéto-cristalline. En présence de SAW, on voit apparaître les termes paramétriques modulant la fréquence ($\Omega_1^2 \epsilon_{XX}$) et l'amortissement ($\Gamma_1 \epsilon_{XX}$). De plus, leur efficacité dépendra des coefficients du couplage magnétoélastique (B_1 , B_2) et de la position d'équilibre de l'aimantation. Lorsque l'aimantation est parallèle à \mathbf{k}_{SAW} ou alignée avec le champ magnétique suivant l'axe [110], les forces d'excitation proportionnelles à sin $2\varphi_0$ seront annulées. Il faut mentionner que le régime non-linéaire résulte des produits $\epsilon_{XX}(t)\delta\theta$ et $\epsilon_{XX}(t)\delta\varphi$ qui apparaissent avec les termes de fréquence Ω_1 , d'amortissement Γ_1 , et de couplage (C_{θ}, C_{φ}) et aussi du terme $F_{2\varphi}\epsilon_{XX}^2(t)$. A partir des équations aux dérivées secondes obtenues, nous pouvons ainsi déterminer les amplitudes d'oscillation à f_{SAW} et 2 f_{SAW} .

3.5.3 Amplitudes d'oscillation à f_{SAW} et $2f_{SAW}$

Pour résoudre analytiquement les équations (3.29-3.30) avec une SAW d'amplitude réelle, nous supposons que les amplitudes sont sous la forme suivante :

$$\delta\theta(t, x) = \delta\theta_0 + \delta\theta_1 \cos\left(\omega_{SAW}t - k_{SAW}x + \psi_{\theta_1}\right) + \delta\theta_2 \cos\left(2\omega_{SAW}t - 2k_{SAW}x + \psi_{\theta_2}\right) (3.38)$$

$$\delta\varphi(t, x) = \delta\varphi_0 + \delta\varphi_1 \cos\left(\omega_{SAW} t - k_{SAW} x + \psi_{\varphi_1}\right) + \delta\varphi_2 \cos\left(2\omega_{SAW} t - 2k_{SAW} x + \psi_{\varphi_2}\right) (3.39)$$

avec $\psi_{1,2}$ représente le déphasage par rapport à la SAW.

Dans un premier temps, nous résolvons le système d'équations couplées sans les termes non linéaires pour obtenir les amplitudes à ω_{saw} . Ensuite, nous insérons ces amplitudes dans les équations (3.29-3.30) pour déduire ainsi les oscillations à $\omega_{saw} = 0$ et à $2\omega_{saw}$.

Les expressions des amplitudes seront présentées en fonction des forces, des fréquences, amortissements et couplages :

$$\delta\theta_1 = \epsilon_{XX}^0 \frac{|F_{1\theta}|}{\sqrt{\left(\Omega_0^2 - \omega_{\rm SAW}^2\right)^2 + 4\Gamma_0^2 \omega_{\rm SAW}^2}}$$
(3.40)

$$\delta\varphi_1 = \epsilon_{XX}^0 \frac{|F_{1\varphi}|}{\sqrt{\left(\Omega_0^2 - \omega_{\rm SAW}^2\right)^2 + 4\Gamma_0^2 \omega_{\rm SAW}^2}}$$
(3.41)

$$\delta\theta_2 = \left(\epsilon_{XX}^0\right)^2 \frac{\left|C_{\theta}F_{1\varphi} + \Omega_1^2 F_{1\theta}\right|}{2\sqrt{\left(\Omega_0^2 - \omega_{\rm SAW}^2\right)^2 + 4\Gamma_0^2 \omega_{\rm SAW}^2}\sqrt{\left(\Omega_0^2 - 4\omega_{\rm SAW}^2\right)^2 + 16\Gamma_0^2 \omega_{\rm SAW}^2}} \tag{3.42}$$

$$\delta\varphi_{2} = \left(\epsilon_{XX}^{0}\right)^{2} \frac{\left|\Omega_{1}^{2}F_{1\varphi} - C_{\varphi}F_{1\theta} - F_{2\varphi}\left(\Omega_{0}^{2} - \omega_{SAW}^{2}\right)\right|}{2\sqrt{\left(\Omega_{0}^{2} - \omega_{SAW}^{2}\right)^{2} + 4\Gamma_{0}^{2}\omega_{SAW}^{2}}\sqrt{\left(\Omega_{0}^{2} - 4\omega_{SAW}^{2}\right)^{2} + 16\Gamma_{0}^{2}\omega_{SAW}^{2}}}$$
(3.43)

A partir de ces expressions analytiques des amplitudes, nous pouvons déduire que :

- Les amplitudes $\delta\theta_1$ et $\delta\varphi_1$ (respectivement $\delta\theta_2$ et $\delta\phi_2$) présentent une variation linéaire (respectivement quadratique) en fonction des amplitudes de déformation. Cette dépendance a été observée expérimentalement jusqu'à une certaine amplitude de la SAW $(A_{GaAs} = 7 \mu rad, Fig. 3.19).$
- Les oscillations à f_{SAW} résonnent uniquement pour $\Omega_0 (\mu_0 H_1) = \omega_{SAW}$ alors que les oscillations à $2f_{SAW}$ présentent des résonances à deux champs $\mu_0 H_1$ et $\mu_0 H_2$ tels que $\Omega_0 (\mu_0 H_1) = \omega_{SAW}$ et $\Omega_0 (\mu_0 H_2) = 2\omega_{SAW}$. La dépendance de la fréquence de précession avec le champ (Fig. 3.16) montre que les champs $\mu_0 H_1$ et $\mu_0 H_2$ (lorsqu'il existe comme à 75 K) sont proches. En raison de l'élargissement des résonances par l'amortissement, une résonance large englobant les deux champs est observée pour le signal à $2f_{SAW}$ (Fig. 3.15c).

— Les termes $\delta\theta_1$, $\delta\varphi_1$, et $\delta\theta_2$ tendent vers zéro pour une aimantation parallèle ou perpendiculaire à $\mathbf{k}_{\text{SAW}}(\varphi_0 = 0 \text{ ou } \frac{\pi}{2})$ du fait que les forces $F_{1\theta}$ et $F_{1\varphi}$ varient en $\sin 2\varphi_0$.

Il faut mentionner que nous avons aussi déterminé les deux termes d'offset :

$$\delta\theta_{0} = (\epsilon_{XX}^{0})^{2} \frac{\left|F_{\theta}\left(\Gamma_{0}\left(C_{\theta}\omega_{\theta\theta} - \Omega_{1}^{2}\omega_{SAW}\right) + \Gamma_{1}\omega_{SAW}\left(\Omega_{0}^{2} - \omega_{SAW}^{2}\right)\right)\right|}{\Omega_{0}^{2}\left(B\right)\left(\left(\Omega_{0}^{2} - \omega_{SAW}^{2}\right)^{2} + 4\Gamma_{0}^{2}\omega_{SAW}^{2}\right)}$$

$$\delta\varphi_{0} = \left(\epsilon_{XX}^{0}\right)^{2} \left|\frac{F_{2}}{2\Omega_{0}^{2}} - \frac{\left(\Omega_{0}^{2} - \omega_{SAW}^{2}\right)\left(C_{\varphi}F_{1\theta} + \Omega_{1}^{2}F_{1\varphi}\right)}{2\Omega_{0}^{2}\left(B\right)\left(\left(\Omega_{0}^{2}\left(B\right) - \omega_{SAW}^{2}\right)^{2} + 4\Gamma_{0}^{2}\omega_{SAW}^{2}\right)}\right|$$
(3.44)

Nous remarquons que $\delta\theta_0$ et $\delta\varphi_0$ qui sont indépendants de la fréquence, résonnent uniquement à ω_{SAW} . Ils varient de façon quadratique avec l'amplitude de la SAW $\left(\propto \left(\epsilon_{XX}^0\right)^2\right)$

En utilisant les solutions analytiques obtenues à partir du modèle d'oscillateur paramétrique, nous pouvons calculer les amplitudes de précession à f_{SAW} et $2f_{SAW}$ en fonction du champ magnétique appliqué pour T=42 K et T=75 K (Fig 3.20(b,d)). Comme nous trouvons que $\delta\theta$ et $\delta\varphi$ diffèrent en amplitude mais ont le même comportement en fonction du champ, nous présentons seulement la courbe calculée de $\delta\theta$:



FIGURE 3.20 – (a,c) Variation du signal Kerr en fonction du champ appliqué pour T=42 K et T=75 K. (b,d) Amplitude de précession calculée pour la composante hors plan de l'aimantation pour T=42 K et T=75K et $\epsilon_{XX}^0 = 2.10^{-5}$.

Les amplitudes d'oscillation calculées résonnent à un seul champ pour f_{SAW} et à deux champs de résonance pour $2f_{SAW}$ mais ces deux champs sont toujours assez proches pour donner une seule résonance en raison de l'élargissement de chacune des résonances par l'amortissement. Ces résonances sont bien observées expérimentalement (voir 3.20.(b,d)). Nous déduisons qu'une excitation efficace de f_{SAW} et $2f_{SAW}$ est assurée par la coexistence de leurs conditions de résonance pour des champs suffisamment proches. Ceci est rendu possible par la courbe de fréquence de précession présentant une pente suffisamment raide. Comme le montre la figure 3.16, dans notre système cela se produit en effet proche de la saturation (T = 42, 75 K), ou également à très faible champ dans le cas à 75 K lorsque les anisotropies uniaxiale et biaxiale sont en compétition. Il faut mentionner que les amplitudes calculées sont obtenues pour une amplitude de SAW égale à 2. 10^{-5} qui est en cohérence avec les amplitudes estimées pour la même puissance rf utilisée [98] et qui est bien plus raisonnable que celle utilisée par Chang et al [103] pour interpréter leurs résultats sur le nickel (10^{-2}). De plus ces amplitudes sont en bon accord avec le signal Kerr $\mathcal{K}\delta\theta$ détecté pour un coefficient Kerr \mathcal{K} de l'ordre de 5 à 10. 10^{-3} mrad pour le (Ga,Mn)As [110].

Conclusion

En utilisant des SAWs et à l'aide de la détection spatio-temporelle de la dynamique de l'aimantation pour une couche de (Ga, Mn)As, nous avons mis en évidence la présence des signatures de non-linéarité telles que : le doublement de fréquence et de vecteur d'onde, l'évolution quadratique de l'amplitude de précession à $2f_{SAW}$ (respectivement linéaire à f_{SAW}) en fonction de l'amplitude de la SAW. En développant un modèle théorique de type oscillateur paramétrique où les non-linéarités proviennent uniquement de la SAW, nous avons obtenu des amplitudes d'oscillation qui résonnent à un seul champ pour $\delta\theta_{f_{SAW}}$ et à deux champs de résonance pour $\delta\theta_{2f_{SAW}}$. Nos résultats expérimentaux ont été ainsi bien reproduits par le modèle d'oscillateur paramétrique : i) les résonances des amplitudes à f_{SAW} et $2f_{SAW}$ dépendent de la forme de la courbe $f_p(B)$ et de la proximité des champs de résonance. ii) la variation linéaire de f_{SAW} (respectivement quadratique de $2f_{SAW}$) en fonction de l'amplitude de la SAW. Cependant, expérimentalement l'évolution linéaire du terme f_{SAW} s'achève à partir d'une certaine amplitude de la SAW (7 µrad), une indication claire de la susceptibilité magnétique sublinéaire qui peut être reproduite lors d'une résolution numérique complète de la dynamique magnéto-acoustique.

Conclusion génerale

Conclusion et perspectives

Dans le cadre d'une étude de la dynamique de l'aimantation assistée par la SAW, le travail est basé sur deux aspects :

- Dans la première partie, nous avons abordé une approche théorique $\mathbf{k}.\mathbf{p}$ à 6 bandes dans le but de déterminer la relation entre l'anisotropie magnétique uniaxiale et la déformation. En supposant que cette anisotropie est d'origine magnéto-élastique, nous avons montré que les constantes d'anisotropie magnétique dépendent linéairement de la déformation de cisaillement. L'estimation de la valeur de ϵ_{xy} qui rend compte de cette anisotropie nous a encouragé à mieux comprendre son origine. En effectuant des expériences XRD, nous avons remarqué l'absence d'une déformation de cisaillement réelle qui viendrait d'une relaxation anisotrope de la maille de (Ga,Mn)As dans l'épaisseur de la couche et nous avons déduit que le mécanisme responsable de l'anisotropie magnéto-cristalline planaire ne peut être décrit que par une déformation effective comme prédit pour une distribution non isotrope des dimères de Mn.
 - Dans la deuxième partie : à partir des expériences de détection spatio-temporelle de la dynamique magnéto-acoustique, nous avons réussi à mettre en évidence la présence d'une non-linéarité : i) un doublement de fréquence et de vecteur d'onde, ii) une évolution quadratique de l'amplitude de précession à $2f_{SAW}$ (respectivement linéaire à f_{SAW}). iii) l'absence d'une puissance de seuil. Pour mieux comprendre les conditions menant à cette non-linéarité, nous avons développé un modèle théorique d'un d'oscillateur paramétrique où nous n'avons gardé que les non-linéarités provenant uniquement de la SAW. Nous avons pu déterminer que le régime linéaire résulte des forces linéaires en ϵ_{XX} (F_{1 θ}, F_{1 φ}) alors que le régime non-liéaire provient des produits $\epsilon_{XX}(t)\delta\theta$ et $\epsilon_{XX}(t)\delta\varphi$ qui apparaissent avec les termes de fréquence Ω_1 , d'amortissement Γ_1 , et de couplage $(C_{\theta}, C_{\varphi})$ et aussi du terme de force quadratique en ϵ_{XX} $(F_{2\varphi}\epsilon_{XX}^2(t))$. Cette non-linéarité dépend des coefficients magnéto-élastiques (B_1, B_2) et de la position d'équilibre de l'aimantation. Nos résultats expérimentaux ont été bien reproduits : présence d'une résonance à f_{SAW} et à $2f_{SAW}$, bon accord de l'amplitude des oscillations avec sa valeur expérimentale. Notons de plus que l'amplitude de la SAW adoptée dans les simulations numériques est également raisonnable.

Perspectives

Les résultats importants du chapitre 3 comme la mise en évidence la présence d'une nonlinéarite provenant uniquement de la SAW et la compréhension des conditions menant à ces
non-linéarités peuvent encourager de nombreuses applications, telles que la mise en œuvre de SAW dans le calcul neuromorphique [100] pour lequel les non-linéarités sont une condition préalable pour coder les informations, ou la conception des cristaux magnoniques non-réciproques. L'idée de ces cristaux, est d'éviter la possibilité de la propagation de la SAW dans les deux sens (avant et arrière) en exploitant la partie antisymétrique du tenseur de déformation, qui décrit la déformation en rotation du réseau [111]. Ce terme de rotation peut se coupler à l'aimantation via l'anisotropie magnétique, induisant un champ effectif polarisé circulairement, qui peut diminuer ou amplifier la précession d'aimantation, amenant ainsi à une atténuation non réciproque des ondes acoustiques de surface. Nous proposons alors de tenir comte dans l'énergie libre du système magnétique des termes qui décrivent les interactions entre l'aimantation et la rotation des déformations élastiques.

En ce qui concerne les perspectives à plus long terme comme envisager des applications commerciales, il sera indispensable de trouver d'autres composés ferromagnétiques pouvant fonctionner à des températures nettement au dessus de la température ambiante. Aujourd'hui, la communauté scientifique s'intéresse à des matériaux de type pérovskite. Le choix de cet oxyde demi-métallique semble être judicieux puisqu'il présente une grande variété de propriétés physiques et chimiques qui le rend intéressante pour la recherche fondamentale et les applications dans le domaine de la spintronique. Comme par exemple les pérovskites de formule ABO_3 où A et B sont des cations, et où généralement A est un cation alcalino-terreux ou un élément de terre rare et B un métal de transition (le plus souvent Fe, Co, Ni, Mn, Ti, Ru et Ir), qui possèdent une température de Curie supérieure à l'ambiante, une polarisation électronique importante, une anisotropie magnétique modulable et champ coercitif contrôlable [112]. Nous pouvons ainsi réfléchir à utiliser dans nos expériences des échantillons de type pérovskite ou bien des matériaux magnétostrictifs comme le Nickel et le FeGa. Nous rappelons qu'au cours de ce travail nous avons caractérisé des échantillons de Nickel et de FeGa en effectuant des mesures d'effet Kerr Magnéto-optique (MOKE) pour identifier les axes d'anisotropie et les champs coercitifs et aussi des expériences de FMR à large bande où nous avons déterminé la fréquence de précession à champ nul.

Annexe

Annexe

Pour obtenir les équations d'oscillateurs paramétriques, nous commençons par l'équation LLG linéarisée :

$$\dot{\delta\theta}(r,t) + \alpha \dot{\delta\varphi}(r,t) + \left(\omega_{\varphi\varphi} + \omega_{\varphi\varphi}^{SAW}\right) \delta\varphi + \omega_{\theta\varphi}^{SAW} \delta\theta + \omega_{\varphi}^{SAW} = 0 \tag{3.45}$$

$$\dot{\delta\varphi}(r,t) - \alpha\dot{\delta\theta}(r,t) - \left(\omega_{\theta\theta} + \omega_{\theta\theta}^{SAW}\right)\delta\theta + \omega_{\theta\varphi}^{SAW}\delta\varphi + \omega_{\theta}^{SAW} = 0$$

$$\text{avec } \omega_{ij} = \gamma \frac{d^2F}{di\,dj}, \ \omega_{ij}^{SAW} = \gamma \frac{d^2F_{mel}^{SAW}}{di\,dj}, \ \omega_{i}^{SAW} = \gamma \frac{dF_{mel}^{SAW}}{di}$$

$$(3.46)$$

Tout d'abord nous dérivons l'équation 3.45 par rapport au temps en remplaçant les dérivées premières $(\dot{\delta \varphi}(r, t), \dot{\delta \theta}(r, t))$ par leurs expressions, nous obtenons :

$$(1 + \alpha^{2}) \ddot{\delta\theta} + \alpha \left(\omega_{\theta\theta} + \omega_{\varphi\varphi} + \omega_{\theta\theta}^{SAW} + \omega_{\varphi\varphi}^{SAW}\right) \dot{\delta\theta}$$
$$+ \left(\omega_{\theta\theta}\omega_{\varphi\varphi} + \omega_{\varphi\varphi}\omega_{\theta\theta}^{SAW} + \omega_{\theta\theta}\omega_{\varphi\varphi}^{SAW} + \alpha \dot{\omega}_{\theta\theta}^{SAW} + \dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} + \omega_{\theta\theta}^{SAW}\omega_{\varphi\varphi}^{SAW} - \left(\omega_{\theta\varphi}^{SAW}\right)^{2}\right) \delta\theta$$

$$+ \left(\alpha\dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} + \dot{\omega}_{\varphi\varphi}^{SAW}\right)\delta\varphi = -\alpha\dot{\omega}_{\theta}^{SAW} - \dot{\omega}_{\varphi}^{SAW} - \omega_{\theta\varphi}^{SAW}\omega_{\varphi\varphi} + \omega_{\theta\varphi}^{SAW}\omega_{\varphi}^{SAW} - \omega_{\theta\varphi}^{SAW}\omega_{\varphi\varphi}^{SAW}$$
(3.47)

Nous réarrangeons ainsi l'équation 3.47, pour obtenir l'équation de l'oscillation paramétrique :

$$\ddot{\delta\theta} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_{1\epsilon}\right)\dot{\delta\theta} + \left(\Omega_0^2 + \Omega_{1\epsilon}^2 + \Omega_{1\epsilon\theta}^2 + \Omega_{2\epsilon}^2\right)\delta\theta + C_{1\epsilon\theta}\delta\varphi = F_{1\epsilon\theta} + F_{2\epsilon\theta}$$
(3.48)

avec

$$\Gamma_0 = \frac{\alpha}{2\left(1 + \alpha^2\right)} \left(\omega_{\theta\theta} + \omega_{\varphi\varphi}\right)$$

$$\begin{split} \Omega_{0}^{2} &= \frac{1}{1 + \alpha^{2}} \omega_{\theta\theta} \omega_{\varphi\varphi} \\ \Gamma_{1\epsilon} &= \frac{\alpha}{2(1 + \alpha^{2})} \left(\omega_{\theta\theta}^{SAW} + \omega_{\varphi\varphi}^{SAW} \right) \\ \Omega_{1\epsilon}^{2} &= \frac{1}{1 + \alpha^{2}} \left(\omega_{\varphi\varphi} \omega_{\theta\theta}^{SAW} + \omega_{\theta\theta} \omega_{\varphi\varphi}^{SAW} \right) \\ \Omega_{1\epsilon\theta}^{2} &= \frac{1}{1 + \alpha^{2}} \left(\alpha \dot{\omega}_{\theta\theta}^{SAW} + \dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} \right) \\ \Omega_{1\epsilon\varphi}^{2} &= \frac{1}{1 + \alpha^{2}} \left(\alpha \dot{\omega}_{\varphi\varphi}^{SAW} - \dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} \right) \\ C_{1\epsilon\theta} &= \frac{1}{1 + \alpha^{2}} \left(\omega_{\varphi\varphi}^{SAW} + \alpha \dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} \right) \\ C_{1\epsilon\varphi} &= \frac{1}{1 + \alpha^{2}} \left(- \dot{\omega}_{\theta\theta}^{SAW} + \alpha \dot{\omega}_{\theta\varphi}^{SAW} \right) \\ F_{1\epsilon\theta} &= -\frac{1}{1 + \alpha^{2}} \left(\alpha \dot{\omega}_{\theta}^{SAW} + \dot{\omega}_{\varphi}^{SAW} + \omega_{\theta}^{SAW} \omega_{\varphi\varphi} \right) \\ F_{1\epsilon\varphi} &= -\frac{1}{1 + \alpha^{2}} \left(- \dot{\omega}_{\theta}^{SAW} + \alpha \dot{\omega}_{\varphi}^{SAW} + \omega_{\varphi}^{SAW} \omega_{\theta\theta} \right) \\ \Omega_{2\epsilon}^{2} &= \frac{1}{1 + \alpha^{2}} \left(\omega_{\theta\theta}^{SAW} \omega_{\varphi\varphi}^{SAW} - \left(\omega_{\theta\varphi}^{SAW} \right)^{2} \right) \end{split}$$

$$\mathbf{F}_{2\epsilon\theta} = -\frac{1}{1+\alpha^2} \left(-\omega_{\theta\varphi}^{SAW} \omega_{\varphi}^{SAW} + \omega_{\theta}^{SAW} \omega_{\varphi\varphi}^{SAW} \right)$$

$$\mathbf{F}_{2\epsilon\phi} = -\frac{1}{1+\alpha^2} \left(-\omega_{\theta\varphi}^{SAW} \omega_{\theta}^{SAW} + \omega_{\varphi}^{SAW} \omega_{\theta\theta}^{SAW} \right)$$

Dans la suite du calcul, nous faisons l'approximation $(1 + \alpha^2) \sim 1$. Nous pouvons aussi suivre la même procédure pour déterminer l'équation d'oscillateur pour $\delta \varphi$.

Bibliographie

Bibliographie

- M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Physical Review Letters*, 61(21):2472, 1988.
- [2] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Physical Review* B, 39(7):4828, 1989.
- [3] S. Maekawa and T. Shinjo. Spin dependent transport in magnetic nanostructures. CRC press, 2002.
- [4] S. Neusser and D. Grundler. Magnonics : Spin Waves on the Nanonscale. Advances materials, 21 :2927, 2009.
- [5] A. V. Chumak, V. I. Vasyuchka, A. A. Serga, and B. Hillebrands. Magnon spintronics. *Nature Physics*, 11:453, 2015.
- [6] M. R. Freeman, R. R. Ruf, and R. J. Gambino. Picosecond Pulsed Magnetic Fields for Studies of Ultrafast Magnetic Phenomena. *IEEE Transactions on Magnetics*, 27(6):4840– 4842, 1991.
- [7] S. I. Kiselev, J. C. Sankey, I. N. Krivorotov, N. C. Emley, R. J. Schoelkopf, R. A. Buhrman, and D. C. Ralph. Microwave oscillations of a nanomagnet driven by a spin-polarized current. *Nature*, 425 :380, 2003.
- [8] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th Rasing. All-optical magnetic recording with circularly polarized light. *Physical Review Letters*, 99(4), 2007.
- [9] A.V. Kimel, A. Kirilyuk, F. Hansteen, R. V. Pisarev, and T. Rasing. Nonthermal optical control of magnetism and ultrafast laser-induced spin dynamics in solids. *Journal of Physics Condensed Matter*, 19(4), 2007.
- [10] J. M. Hu, Z. Li, L. Q. Chen, and Ce. W. Nan. High-density magnetoresistive random access memory operating at ultralow voltage at room temperature. *Nature Communications*, 2:553, 2011.
- [11] A. Lemaître, A. Miard, L. Travers, O. Mauguin, L. Largeau, C. Gourdon, V. Jeudy, M. Tran, and J. M. George. Strain control of the magnetic anisotropy in (Ga,Mn) (As,P) ferromagnetic semiconductor layers. *Applied Physics Letters*, 93(2):021123, 2008.

- [12] L. Dreher, M. Weiler, M. Pernpeintner, H. Huebl, R. Gross, M. S. Brandt, and S. T. B. Goennenwein. Surface Acoustic Wave-Driven Ferromagnetic Resonance in Nickel Thin Films : Theory and Experiment. *Phys. Rev. B*, 86 :134415, 2012.
- [13] J. V. Jäger, A. V. Scherbakov, T. L. Linnik, D. R. Yakovlev, M. Wang, P. Wadley, V. Holy, S. A. Cavill, A. V. Akimov, A. W. Rushforth, and M. Bayer. Picosecond inverse magnetostriction in galfenol thin films. *Applied Physics Letters*, 103 :032409, 2013.
- [14] L. Thevenard, J.-Y. Duquesne, E. Peronne, H. J. von Bardeleben, H. Jaffres, S. Ruttala, J-M. George, A. Lemaître, and C. Gourdon. Irreversible magnetization switching using surface acoustic waves. *Physical Review B*, 87(14) :144402, 2013.
- [15] L. Thevenard, C. Gourdon, J-Y. Prieur, H. J. Von Bardeleben, S. Vincent, L. Becerra, L. Largeau, and J.-Y. Duquesne. Surface-acoustic-wave-driven ferromagnetic resonance in (Ga,Mn)(As,P) epilayers. *Physical Review B*, 90(9) :94401, 2014.
- [16] P. Kuszewski, J. Y. Duquesne, L. Becerra, A. Lemaître, S. Vincent, S. Majrab, F. Margaillan, C. Gourdon, and L. Thevenard. Optical Probing of Rayleigh Wave Driven Magnetoacoustic Resonance. *Physical Review Applied*, 10(3):034036, 2018.
- [17] L. Thevenard, E. Peronne, C. Gourdon, C. Testelin, M. Cubukcu, E. Charron, S. Vincent, and B. Perrin. Effect of picosecond strain pulses on thin layers of the ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)(As,P). *Phys. Rev. B*, 82 :104422, 2010.
- [18] P. Kuszewski, I. S. Camara, N. Biarrotte, L. Becerra, J. Von Bardeleben, W. Savero Torres, A. Lemaître, C. Gourdon, J. Y. Duquesne, and L. Thevenard. Resonant magneto-Acoustic switching : Influence of Rayleigh wave frequency and wavevector. *Journal of Physics Condensed Matter*, 30(24) :1–10, 2018.
- [19] N.B. Brandt and V.V. Mishchalkov. Semimagnetic Semiconductors. Advances in Physics, 33(3):193, 1984.
- [20] R.R. Galazka. Physics and applications of II-VI semimagnetics. Journal of Crystal Growth, 72:364, 1985.
- [21] J. K. Furdyna. Dilute magnetic semiconductors. Journal of Applied Physics, 64:29, 1988.
- [22] H. Ohno, H. Munekata, T. Penney, S. Von Molnar, and L. L. Chang. Magnetotransport properties of p-type (In,Mn)As diluted magnetic III-V semiconductors. *Physical Review Letters*, 68(17):2664, 1992.
- [23] H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto, and Y. Iye. (Ga,Mn)As: A new diluted magnetic semiconductor based on GaAs. *Applied Physics Letters*, 69(3):363, 1996.

- [24] L. Chen, Xi. Yang, F. Yang, J. Zhao, J. Misuraca, P. Xi. Xiong, and S. Von Molnar. Enhancing the Curie Temperature of Ferromagnetic Semiconductors (Ga,Mn)As to 200 K via Nanostructure Engineering. *Nano Letters*, 11:2584, 2011.
- [25] T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert, and D. Ferrand. Zener Model Description of Ferromagnetism in Zinc-Blende Magnetic Semiconductors. *Science*, 287 :1019, 2000.
- [26] J. Schneider, U. Kaufmann, W. Wilkening, M. Baeumler, and F. Köhl. Electronic Structure of the Neutral Manganese Acceptor in Gallium Arsenide. 59(2) :240, 1987.
- [27] A. H. Macdonald, P. Schiffer, and N. Samarth. Ferromagnetic semiconductors : moving beyond (Ga,Mn)As. *Nature Materials*, 4(3) :195, 2005.
- [28] H. Ohno. Making Nonmagnetic Semiconductors Ferromagnetic. Science, 281 :951, 1998.
- [29] X. Liu, A. Prasad, J. Nishio, E. R. Weber, and Z. Liliental-Weber. Native point defects in low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 67 :279, 1995.
- [30] F. Glas, G. Patriarche, L. Largeau, and A. Lemaître. Determination of the Local Concentrations of Mn Interstitials and Antisite Defects in GaMnAs. *Physical Review Letters*, 93(8):086107, 2004.
- [31] F. Matsukura, H. Ohno, A. Shen, and Y. Sugawara. Transport properties and origin of ferromagnetism in (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 57(4) :2037, 1998.
- [32] J. R. Schrieffer and P. A. Wolf. Relation between the Anderson and Kondo Hamiltonians. *Physical Review*, 149(2):491, 1966.
- [33] R. C. Myers, M. Poggio, N. P. Stern, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom. Antiferromagnetic s-d Exchange Coupling in GaMnAs. *Physical Review Letters*, 95(1):017204, 2005.
- [34] J. Okabayashi, A. Kimura, O. Rader, T. Mizokawa, A. Fujimori, T. Hayashi, and M. Tanaka. Core level photoemission study of (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 58(8) :163, 1998.
- [35] G. L. Bir and G. E. Pikus. Symmetry and strain-induced effects in semiconductors. 1974.
- [36] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan. Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys. *Journal of Applied Physics*, 89:5815, 2001.
- [37] M. Yahyaoui, K. Boujdaria, M. Cubukcu, C. Testelin, and C. Gourdon. The influence of phosphorus content on magnetic anisotropy in ferromagnetic (Ga, Mn) (As, P)/GaAs thin films. Journal of physics. Condensed matter : an Institute of Physics journal, 25(34):346001, 2013.
- [38] M. Yahyaoui, K. Boujdaria, M. Cubukcu, C. Testelin, and C. Gourdon. Erratum : The influence of phosphorus content on magnetic anisotropy in ferromagnetic (Ga, Mn)(As,

P)/GaAs thin films (Journal of Physics Condensed Matter (2013) 25 (346001)). Journal of Physics Condensed Matter, 25 :429501, 2013.

- [39] Etienne Du Tremolet de Lacheisserie. Magnétisme, Tome I : Fondements. *Collection Grenoble sciences*, 1999.
- [40] M. Sawicki, K. Y. Wang, K. W. Edmonds, R. P. Campion, C. R. Staddon, N. R S Farley, C. T. Foxon, E. Papis, E. Kaminska, A. Piotrowska, T. Dietl, and B. L. Gallagher. In-plane uniaxial anisotropy rotations in (Ga,Mn)As thin films. *Physical Review B*, 71:121302, 2005.
- [41] M. Sawicki, F. Matsukura, A. Idziaszek, T. Dietl, G. M. Schott, C. Ruester, C. Gould, G. Karczewski, G. Schmidt, and L. W. Molenkamp. Temperature dependent magnetic anisotropy in (Ga, Mn)As layers. *Physical Review B*, 70:245325, 2004.
- [42] Kh. Khazen, H. J. Von Bardeleben, J. L. Cantin, L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, and A. Lemaître. Ferromagnetic resonance of GaMnAs thin films with constant Mn and variable free-hole concentrations. *Physical Review B*, 77 :165204, 2008.
- [43] U. Welp, V. K. Vlasko-Vlasov, A. Menzel, H. D. You, X. Liu, J. K. Furdyna, and T. Wojtowicz. Uniaxial in-plane magnetic anisotropy of GaMnAs. *Applied Physics Letters*, 85(2):260, 2004.
- [44] M. Kopecký, J. Kub, F. MácA, J. Mažek, O. Pacherová, A. W. Rushforth, B. L. Gallagher, R. P. Campion, V. Novák, and T. Jungwirth. Detection of stacking faults breaking the [110]/[1-10] symmetry in ferromagnetic semiconductors (Ga,Mn)As and (Ga,Mn)(As,P). *Physical Review B*, 83 :235324, 2011.
- [45] J. Mašek, J. Kudrnovský, F. Máca, J. Sinova, A. H. Macdonald, R. P. Campion, B. L. Gallagher, and T. Jungwirth. Mn-doped Ga(As,P) and (Al,Ga)As ferromagnetic semiconductors : Electronic structure calculations. *Physical Review B*, 75 :045202, 2007.
- [46] Kh. Khazen, H. J. Von Bardeleben, J. L. Cantin, A. Mauger, L. Chen, and J. H. Zhao. Intrinsically limited critical temperatures of highly doped (Ga, Mn)As thin films. *Physical Review B*, 81(23) :235201, 2010.
- [47] M. Adell, J. Kanski, L. Ilver, J. Sadowski, V. Stanciu, and P. Svedlindh. Mn Interstitial Diffusion in (Ga,Mn)As. *Physical Review Letters*, 94 :139701, 2005.
- [48] S. J. Potashnik, K. C. Ku, S. H. Chun, J. J. Berry, N. Samarth, and P. Schiffer. Effects of annealing time on defect-controlled ferromagnetism in GaMnAs. *Applied Physics Letters*, 79(10) :1495, 2001.
- [49] J. Smit and H. G. Beljers. Ferromagnetic resonance absorption in BaFeO, a highly anisotropic crystal. *Philips Res. Rep.*, 10:113, 1955.

- [50] L. Baselgia, M. Warden, F. Waldner, Stuart. L. Hutton, John. E. Drumheller, Y. Q. He, P. E. Wigen, and M. Marysko. Derivation of the resonance frequency from the free energy of ferromagnets. *Physical Review B*, 38(4) :2237, 1988.
- [51] X. Liu, W. L. Lim, M. Dobrowolska, J. K. Furdyna, and T. Wojtowicz. Ferromagnetic resonance study of the free-hole contribution to magnetization and magnetic anisotropy in modulation-doped GaMnAs/GaAlAs :Be. *Physical Review B*, 71 :035307, 2005.
- [52] C. Śliwa and T. Dietl. Magnitude and crystalline anisotropy of hole magnetization in (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 74 :245215, 2006.
- [53] Khazen Khashayar. Ferromagnetic Resonance Investigation of GaMnAs Nanometric Layers. PhD thesis, 2008.
- [54] T. Kuroiwa, T. Yasuda, F. Matsukura, A. Shen, Y. Ohno, Y. Segawa, and H. Ohno. Faraday rotation of ferromagnetic (Ga,Mn)As. *Electronics Letters*, 34(2) :190, 1998.
- [55] S. Yamamoto and I. Matsuda. Measurement of the Resonant Magneto-Optical Kerr Effect Using a Free Electron Laser. Applied Sciences, 7:662, 2017.
- [56] H. Riahi, L. Thevenard, M. A. Maaref, B. Gallas, A. Lemaître, and C. Gourdon. Optimizing magneto-optical effects in the ferromagnetic semiconductor GaMnAs. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 395:340, 2015.
- [57] A. V. Kimel, G. V. Astakhov, A. Kirilyuk, G. M. Schott, G. Karczewski, W. Ossau, G. Schmidt, L. W. Molenkamp, and Th Rasing. Observation of giant magnetic linear dichroism in (Ga,Mn)As. *Physical Review Letters*, 94 :227203, 2005.
- [58] Rudolf Schäfer and Alex Hubert. Magnetic domains. Springer, 1998.
- [59] A. Dourlat, V. Jeudy, C. Testelin, F. Bernardot, K. Khazen, C. Gourdon, L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, and A. Lemaître. Domain structure and magnetic anisotropy fluctuations in (Ga,Mn)As : Effect of annealing. *Journal of Applied Physics*, 102 :023913, 2007.
- [60] S. Shihab, L. Thevenard, A. Lemaître, J.-Y. Duquesne, and C. Gourdon. Steady-state thermal gradient induced by pulsed laser excitation in a ferromagnetic layer. *Journal of Applied Physics*, 119(15):153904, 2016.
- [61] J. Qi, Y. Xu, A. Steigerwald, X. Liu, J. K. Furdyna, I. E. Perakis, and N. H. Tolk. Ultrafast laser-induced coherent spin dynamics in ferromagnetic GaMnAs/GaAs structures. *Physical Review B*, 79 :085304, 2009.
- [62] Louis Néel. Structure cristalline et propriétés magnétiques. Bulletin de la Société française de Minéralogie et de Cristallographie, 77(1):257–274, 1954.
- [63] D. Sander. The correlation between mechanical stress and magnetic anisotropy in ultrathin films. *Reports on Progress in Physics*, 62:80, 1999.

- [64] Hubert. Alex and Rudolf. Schäfer. Magnetic Domains, volume 53. 1998.
- [65] C. Bihler, M. Althammer, A. Brandlmaier, S. Geprägs, M. Weiler, M. Opel, W. Schoch, W. Limmer, R. Gross, M. S. Brandt, and S. T. B. Goennenwein. GaMnAs / piezoelectric actuator hybrids : A model system for magnetoelastic magnetization manipulation. *Physical Review B*, 78 :045203, 2008.
- [66] S. C. Masmanidis, H. X. Tang, E. B. Myers, Mo. Li, K. De. Greve, G. Vermeulen, W. Van. Roy, and M. L. Roukes. Nanomechanical Measurement of Magnetostriction and Magnetic Anisotropy in (Ga, Mn) As. *Physical Review Letters*, 95 :187206, 2005.
- [67] U. Welp, V. K. Vlasko-Vlasov, X. Liu, and J. K. Furdyna. Magnetic Domain Structure and Magnetic Anisotropy in GaMnAs. *Physical Review Letters*, 90(16) :167206, 2003.
- [68] M. Glunk, J. Daeubler, L. Dreher, S. Schwaiger, W. Schoch, R. Sauer, W. Limmer, A. Brandlmaier, S. T. B. Goennenwein, C. Bihler, and M. S. Brandt. Magnetic anisotropy in (Ga,Mn)As : Influence of epitaxial strain and hole concentration. *Physical Review* B, 79 :195206, 2009.
- [69] X. Liu, Y. Sasaki, and J. K. Furdyna. Ferromagnetic resonance in GaMnAs : Effects of magnetic anisotropy. *Physical Review B*, 67(20) :205204, 2003.
- [70] M. Cubukcu, H. J. Von Bardeleben, Kh Khazen, J. L. Cantin, O. Mauguin, L. Largeau, and A. Lemaître. Adjustable anisotropy in ferromagnetic (Ga,Mn) (As,P) layered alloys. *Physical Review B*, 81 :041202, 2010.
- [71] O. Thomas, Q. Shen, P. Schieffer, N. Tournerie, and B. Lépine. Interplay between Anisotropic Strain Relaxation and Uniaxial Interface Magnetic Anisotropy in Epitaxial Fe Films on (001) GaAs. *Physical Review Letters*, 90(1):017205, 2003.
- [72] L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, A. Lemaître, K. Khazen, and H. J. Von Bardeleben. Evolution of the magnetic anisotropy with carrier density in hydrogenated. *Physical Review* B, 75(19) :195218, 2007.
- [73] Y. Hashimoto, Y. Iye, and S. Katsumoto. Control of magnetic anisotropy in (Ga, Mn)As with etching depth of specimen boundaries. *Journal of Crystal Growth*, 378:381–384, 2013.
- [74] S. Zhou, Li. Chen, A. Shalimov, J. Zhao, and M. Helm. Depth profile of the tetragonal distortion in thick GaMnAs layers grown on GaAs by Rutherford backscattering/channeling. *AIP Advances*, 2 :042102, 2012.
- [75] J. Wunderlich, A. C. Irvine, J. Zemen, V. Holý, A. W. Rushforth, E. De Ranieri, U. Rana, K. Výborný, Jairo Sinova, C. T. Foxon, R. P. Campion, D. A. Williams, B. L. Gallagher, and T. Jungwirth. Local control of magnetocrystalline anisotropy in (Ga,Mn)As microdevices : Demonstration in current-induced switching. *Physical Review B*, 76(5):054424, 2007.

- [76] A. W. Rushforth, E. De Ranieri, J. Zemen, J. Wunderlich, K. W. Edmonds, C. S. King, E. Ahmad, R. P. Campion, C. T. Foxon, B. L. Gallagher, K. Výborný, J. Kučera, and T. Jungwirth. Voltage control of magnetocrystalline anisotropy in ferromagnetic-semiconductor-piezoelectric hybrid structures. *Condensed Matter and Materials Physics*, 78(8):1–4, 2008.
- [77] J. Zemen, J. Kučera, K. Olejník, and T. Jungwirth. Magnetocrystalline anisotropies in (Ga,Mn)As: Systematic theoretical study and comparison with experiment. *Physical Re*view B, 80 :155203, 2009.
- [78] H. Subramanian and J. E. Han. In-plane uniaxial magnetic anisotropy in (Ga, Mn) As due to local lattice distortions around Mn ions. *Journal of Physics Condensed Matter*, 25 :206005, 2013.
- [79] M. Birowska. Influence of the different strains components on the uniaxial magnetic anisotropy constants for (Ga,Mn)As bulk system : A First-Principles Study. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 432 :396, 2016.
- [80] M. Birowska, C. Liwa, J. A. Majewski, and T. Dietl. Origin of bulk uniaxial anisotropy in zinc-blende dilute magnetic semiconductors. *Physical Review Letters*, 108(23) :1–5, 2012.
- [81] K. Hamaya, T. Watanabe, T. Taniyama, A. Oiwa, Y. Kitamoto, and Y. Yamazaki. Magnetic anisotropy switching in (Ga,Mn)As with increasing hole concentration. *Physical Review* B, 74(4):045201, 2006.
- [82] T. Dietl, H. Ohno, and F. Matsukura. Hole-mediated ferromagnetism in tetrahedrally coordinated semiconductors. *Physical Review B*, 63(19):195205, 2001.
- [83] J. M. Luttinger and W Kohn. Motion of Electrons and Holes in Perturbed Periodic Fields. *Physical Review B*, 97(4) :869, 1954.
- [84] L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, and A. Lemaitre. Tuning the ferromagnetic properties of hydrogenated GaMnAs. *Applied Physics Letters*, 87 :182506, 2005.
- [85] Robert C. O'Handley. Modern magnetic materials. Wiley, 1999 edition, 1999.
- [86] T. Jungwirth, T. Jungwirth, Jürgen. König, Jairo. Sinova, J. Kučera, and A. H. MacDonald. Curie temperature trends in (III,Mn)V ferromagnetic semiconductors. *Physical Review B*, 66 :012402, 2002.
- [87] T. Dietl and H. Ohno. Dilute ferromagnetic semiconductors : Physics and spintronic structures. *Reviews of Modern Physics*, 86 :188, 2014.
- [88] A. Baldereschi and N. O. Lipar. Spherical Model of Shallow Acceptor States in Semiconductors. *Physical Review B*, 8(6) :2697, 1973.

- [89] M. Kraimia, L. Largeau, K. Boujdaria, B. Croset, C. Mocuta, A. Lemaître, C. Gourdon, and L. Thevenard. Exploring the shear strain contribution to the uniaxial magnetic anisotropy of (Ga,Mn)As. Journal of Applied Physics, (127):093901, 2020.
- [90] T. U. Schülli, M. Sztucki, V. Chamard, T. H. Metzger, and D. Schuh. Anomalous x-ray diffraction on InAs/GaAs quantum dot systems. *Applied Physics Letters*, 81:448, 2002.
- [91] Dirk Grundler. Reconfigurable magnonics heats up. Nature Physics, 11(6):438, 2015.
- [92] T L Linnik, A V Scherbakov, D R Yakovlev, X Liu, J K Furdyna, and M Bayer. Theory of magnetization precession induced by a picosecond strain pulse in ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 84, 2011.
- [93] Piotr Kuszewski. Optical detection of magneto-acoustic dynamics. PhD thesis, Sorbonne Université, 2018.
- [94] A. V. Scherbakov, A. S. Salasyuk, A. V. Akimov, X. Liu, M. Bombeck, C. Brüggemann, D. R. Yakovlev, V. F. Sapega, J. K. Furdyna, and M. Bayer. Coherent magnetization precession in ferromagnetic (Ga,Mn)As induced by picosecond acoustic pulses. *Physical Review Letters*, 105 :117204, 2010.
- [95] D. R. Yakovlev and V. F. Sapega. Excitation of spin waves in ferromagnetic (Ga,Mn)As layers by picosecond strain pulses. *Physical Review B*, 85 :195324, 2012.
- [96] S. Davis, A. Baruth, and S. Adenwalla. Magnetization dynamics triggered by surface acoustic waves. Applied Physics Letters, 97:232507, 2010.
- [97] M. Weiler, L. Dreher, C. Heeg, H. Huebl, R. Gross, M. S. Brandt, and S. T.B. Goennenwein. Elastically driven ferromagnetic resonance in nickel thin films. *Physical Review Letters*, 106 :117601, 2011.
- [98] L. Largeau, I. Camara, J. Y. Duquesne, C. Gourdon, P. Rovillain, L. Thevenard, and Bernard Croset. Laboratory X-ray characterization of a surface acoustic wave on GaAs : The critical role of instrumental convolution. *Journal of Applied Crystallography*, 49(6) :2073, 2016.
- [99] E. Mouton, G. Durand, A. Clement, and P. Meriaux. Recherche d'anomalies dans les digues par ondes de surface (MASW et DCOS) : application sur le site expérimental de l'Agly. In 6 ième colloque GEOFCAN, 2007.
- [100] Y. Katayama, T. Yamane, D. Nakano, R. Nakane, and G. Tanaka. Wave-based neuromorphic computing framework for brain-like energy efficiency and integration. *IEEE Transactions on Nanotechnology*, 15(5):762, 2016.
- [101] J. Torrejon, M. Riou, F. A. Araujo, S. Tsunegi, G. Khalsa, D. Querlioz, P. Bortolotti, V. Cros, K. Yakushiji, A. Fukushima, H. Kubota, S. Yuasa, M. D. Stiles, and J. Grollier. Neuromorphic computing with nanoscale spintronic oscillators. *Nature*, 547 :428, 2017.

- [102] Y. Yahagi, B. Harteneck, S. Cabrini, and H. Y. Schmidt. Controlling nanomagnet magnetization dynamics via magnetoelastic coupling. *Phys. Rev. B*, 90 :140405, 2014.
- [103] C. L. Chang, A. M. Lomonosov, J. Janusonis, V. S. Vlasov, V. V. Temnov, and R. I. Tobey. Parametric frequency mixing in the magneto-elastically driven FMR-oscillator. *Phys. Rev.* B, 95 :060409, 2017.
- [104] Daniel. Royer and Eugène. Dieulesaint. Elastic Waves in Solids I. 1996.
- [105] J. Y. Duquesne, J. Y. Prieur, J. Agudo Canalejo, V. H. Etgens, M. Eddrief, A. L. Ferreira, and M. Marangolo. Ultrasonic triggering of giant magnetocaloric effect in MnAs thin films. *Physical Review B*, 86 :035207, 2012.
- [106] L. Thevenard, I. Camara, J.-Y. Prieur, P. Rovillain, A. Lemaître, C. Gourdon, and J.-Y. Duquesne. Strong reduction of the coercivity by a surface acoustic wave in an out-of-plane magnetized epilayer. *Physical Review B*, 93(14) :140405, 2016.
- [107] P. Etchegoin, J. Kircher, M. Cardona, C. Grein, and E. Bustarret. Piezo-optics GaAs. *Physical Review B*, 46 :139, 1992.
- [108] W. He, B. Hu, Q. F. Zhan, Xi. Q. Zhang, and Zh. H. Cheng. Probing nonlinear magnetization dynamics in Fe/MgO(001) film by all optical pump-probe technique. Applied Physics Letters, 104(14) :142405, 2014.
- [109] M. Hudl, M. D'Aquino, M. Pancaldi, M. G. Samant, Stuart. S.P. Parkin, H. A. Dürr, C. Serpico, M. C. Hoffmann, and S. Bonetti. Nonlinear Magnetization Dynamics Driven by Strong Terahertz Fields. *Physical Review Letters*, 123(19) :197204, 2019.
- [110] S. Shihab, L. Thevenard, A. Lemaître, and C. Gourdon. Counter-rotating standing spin waves : A magneto-optical illusion. *Physical Review B*, 95(14) :144411, 2017.
- [111] M. Xu, K. Yamamoto, J. Puebla, K. Baumgaertl, B. Rana, K. Miura, H. Takahashi, D. Grundler, S. Maekawa, and Y. Otani. Tunable acoustic wave rectification in anisotropic magnets. arXiv, page 05135, 2020.
- [112] Florian Gellé. Hétérostructures épitaxiées avec des propriétés dépendantes de spin et de charges pour des applications en spintronique. PhD thesis, 2020.

Publications issues de la thèse

Publications issues de la thèse

Exploring the shear strain contribution to the uniaxial magnetic anisotropy of (Ga,Mn)As

Cite as: J. Appl. Phys. **127**, 093901 (2020); https://doi.org/10.1063/1.5140078 Submitted: 26 November 2019 . Accepted: 18 February 2020 . Published Online: 05 March 2020

M. Kraimia, L. Largeau 🝺, K. Boujdaria 🝺, B. Croset 🝺, C. Mocuta ២, A. Lemaître ២, C. Gourdon ២, and L. Thevenard 🝺

ARTICLES YOU MAY BE INTERESTED IN

An effective Xe⁺-Xe interaction potential for electric propulsion systems Journal of Applied Physics **127**, 093302 (2020); https://doi.org/10.1063/1.5120110

Study of magnetocaloric effect and critical exponents in polycrystalline La_{0.4}Pr_{0.3}Ba_{0.3}MnO₃ compound

Journal of Applied Physics 127, 093902 (2020); https://doi.org/10.1063/1.5142337

Crystal defects in monocrystalline silicon induced by spot laser melting Journal of Applied Physics **127**, 093102 (2020); https://doi.org/10.1063/1.5142676





J. Appl. Phys. **127**, 093901 (2020); https://doi.org/10.1063/1.5140078 © 2020 Author(s). **127**, 093901

Exploring the shear strain contribution to the uniaxial magnetic anisotropy of (Ga,Mn)As

Cite as: J. Appl. Phys. **127**, 093901 (2020); doi: 10.1063/1.5140078 Submitted: 26 November 2019 · Accepted: 18 February 2020 · Published Online: 5 March 2020



M. Kraimia,^{1,2} L. Largeau,³ () K. Boujdaria,² () B. Croset,¹ () C. Mocuta,⁴ () A. Lemaître,³ () C. Gourdon,¹ () and L. Thevenard^{1,a} ()

AFFILIATIONS

¹CNRS, Institut des Nanosciences de Paris, Sorbonne Université, 4 place Jussieu, 75252 Paris, France

²Faculté des Sciences de Bizerte, LR01ES15 Laboratoire de Physique des Matériaux: Structure et Propriétés, Université de Carthage, 7021 Zarzouna, Bizerte, Tunisia

³Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies, CNRS, Univ. Paris-Sud, Université Paris-Saclay, 91120 Palaiseau, France ⁴Synchrotron SOLEIL, L'Orme des Merisiers Saint-Aubin, F-91192 GIF-sur-YVETTE CEDEX, France

^{a)}Author to whom correspondence should be addressed: thevenard@inspjussieu.fr

ABSTRACT

We present an experimental and $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ theoretical study on the origin of the strong in-plane uniaxial magnetic anisotropy in (Ga,Mn)As layers, unexpected from the cubic crystalline structure. The symmetry lowering can be accounted for by structural or effective shear strains. We find theoretically out-of-plane and in-plane magnetic anisotropy constants being linear with the shear strain. Searching for a real shear strain arising from lattice relaxation, we perform two types of measurements: anomalous x-ray diffraction and strain-induced optical bire-fringence, at room temperature. Working on a strongly anisotropic (Ga,Mn)As layer, the estimated $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$ was not found although it lied an order of magnitude above the detection threshold. This ensemble of results indicates as unlikely a relaxation-driven uniaxial anisotropy. As previously suggested theoretically, the magnetic symmetry-lowering could instead originate from the anisotropic incorporation of Mn atoms during growth. This would yield a perfectly in-plane matched lattice, with an anisotropy that could nevertheless be modeled as an *effective* shear strain and modified by an external shear stress, in agreement with the existing experimental literature.

Published under license by AIP Publishing. https://doi.org/10.1063/1.5140078

INTRODUCTION

Uniaxial anisotropy in ferromagnetic layers, tracks, and nanostructures is a key factor for technological applications such as the straightforward encoding of "0" and "1" bits for memory and storage devices. Materials with out-of-plane (OP) uniaxial anisotropy have, for instance, been used to increase storage density in perpendicular magnetic recording.¹ In various schemes for noninductive magnetization manipulation and switching, in-plane (IP) uniaxial anisotropy offers an alternate and versatile option for fixing the magnetization easy axis, avoiding reliance only on shape anisotropy.^{2–4}

Whereas OP uniaxial anisotropy is fairly well understood,^{5,6} much less is known about the origin of IP uniaxial anisotropy. It can arise, for instance, from an interfacial effect,⁷ anisotropic grain domains,⁸ or anisotropic relaxation of the epitaxial strain.^{8,9} It can be obtained by molecular beam epitaxy such as in Fe/GaAs¹⁰⁻¹²

and the semiconductor (Ga,Mn)As,^{6,13–19} or with better control by various other growth techniques.^{20,21}

In layers of $(Ga,Mn)As_{1-y}P_y$, the microscopic origin of an IP uniaxial anisotropy constant $K_{2\parallel}$ has been the subject of many experimental and theoretical investigations.^{6,13,19,22-25} From symmetry considerations and band theory calculation in the $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ approximation, it was soon recognized that an $\boldsymbol{\epsilon}_{xy}$ strain, which may result from different strains along the [110] and [-110] directions, could explain this magnetic anisotropy and its dependence with the carrier density and temperature.^{6,18} The value of $\boldsymbol{\epsilon}_{xy} \approx 1-5 \times 10^{-4}$ obtained from these calculations was reasonably small, lower than the epitaxial strain by one order of magnitude. It has been the subject of a long-standing debate, not yet settled, whether the $\boldsymbol{\epsilon}_{xy}$ strain is a real strain, or the parameter of a perturbation Hamiltonian lowering the symmetry of the zinc blende crystal.

Experimental results have repeatedly evidenced the modification of the IP uniaxial anisotropy via strain, e.g., using a piezoelectric transducer to apply stress,²² or deep etching of narrow bars to relax the epitaxial strain anisotropically.¹⁴ It has also been shown that thin (Ga,Mn)As bars oriented along the [110], [100], and [-110] directions relax differently, leading to varying magnetic anisotropies.¹⁶ A shear strain-dependence of the anisotropy also seems necessary to account for surface acoustic wave (SAW) driven magnetization excitation and switching in IP magnetized (Ga,Mn)As through the magnetoelastic interaction.^{26,27} The microscopic origin of this IP symmetry breaking would, for instance, be the [110]/[-110] anisotropic incorporation of Mn atoms due to stacking faults,²⁵ or Mn dimer formation^{13,23} due to GaAs surface reconstruction.^{12,28,29} This could either lead to a genuine IP strain relaxation, potentially detectable experimentally, or to a built-in shear *stress*, which would be virtually undetectable once the layer resting in perfect epitaxy onto its substrate.

Another approach is to consider that, from a macroscopic point of view, any depth dependence of the magnetic properties could lower the crystal symmetry from D_{2d} to $C_{2\nu}$ hence making the [110] and [-110] directions non-equivalent. However, there is no clear systematic experimental evidence of such depth dependence.^{9,15,30-32} The dissymmetry of the two interfaces has also been invoked, since the existence of a spin–orbit field arising from the Rashba inversion asymmetry term^{33,34} or the Dzyaloshinskii–Moriya interaction³⁵ reveals the breaking of the *z*-symmetry. Yet, a pure interfacial origin of the IP uniaxial magnetic anisotropy was ruled out by a thickness-dependence study.¹⁵

In this report, we investigate theoretically and experimentally the shear-strain origin of IP anisotropy in (Ga,Mn)As layers. While the few reports of x-ray diffraction on such samples have not shown any difference of the lattice parameter along [110] and [-110],^{15,25} we renew the attempt to reveal a static ϵ_{xy} shear strain by working on thinner and more magnetically anisotropic layers, and combining different experimental techniques. Using the band structure obtained from the $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$, exchange and strain Hamiltonians, we first determine the parameters (exchange, carrier density, and static shear strain) consistent with the measured magnetic anisotropy constants. Two very different experiments are then shown, aiming to reveal the presence of the estimated 10^{-4} shear strain: direct observation of the in-plane lattice by x-ray diffraction and photoelasticity-induced optical birefringence. This ensemble of results points to an upper boundary of a few 10⁻⁵ for any genuine shear strain. This rules out anisotropic IP strain relaxation as the main origin of the uniaxial anisotropy in (Ga,Mn)As and favors alternative scenarios instead.

EXPERIMENTAL UNIAXIAL ANISOTROPIES

Correlation between OP and IP anisotropy constants

Phenomenologically, the magnetic free energy in the absence of applied magnetic field is defined as 36

$$E_m = -K_{2\perp} \cos^2 \theta - K_{2\parallel} \sin^2 \theta \sin^2 \left(\phi - \frac{\pi}{4}\right) \\ - \frac{K_{4\parallel}}{8} \sin^4 \theta (3 + \cos(4\phi)) - \frac{K_{4\perp}}{2} \cos^4 \theta - \frac{\mu_0}{2} M_S^2 \sin^2 \theta, \quad (1)$$

where $K_{2\perp}$ and $K_{2\parallel}$ are the uniaxial OP and IP anisotropy constants, respectively, and $K_{4\parallel}$ and $K_{4\perp}$ are the cubic anisotropy constants.



FIG. 1. Experimental uniaxial IP anisotropy constants $K_{2\parallel}$ vs uniaxial OP anisotropy constant $K_{2\perp}$ for several sets of (Ga,Mn)As^{26,32,38,39} and (Ga,Mn) (As,P)^{38–32} epitaxial layers at low temperatures. Dashed lines are guides for the eyes. All layers are 50 nm thick except in Refs. 42 (200 nm) and 32 (25 nm). Samples from Ref. 32 were highly optimized (choice of growth temperature and long anneal times in particular). Samples from Refs. 38–41 underwent a standard 1 h/250 °C anneal, a somewhat intermediate anneal of 16 h/200 °C.²⁶

The last term represents the shape anisotropy and depends on the saturation magnetization M_s . Angles ϕ and θ are counted with respect to [100] IP and [001] OP axes, respectively.

Putting together experimental OP and IP anisotropy constants of numerous (Ga,Mn)As and (Ga,Mn)(As,P) samples, one notices that $K_{2\parallel}$ is roughly proportional to $K_{2\perp}$ for compressively strained samples (Fig. 1). This seems unrelated to the effective concentration of Mn atoms, the presence of phosphorus or the layer thickness. The slope of $K_{2\parallel}$ vs $K_{2\perp}$ itself seems linked to the degree of optimization of the annealing step, as clearly comes out when comparing the data of Ref. 32 with the others.³⁷ For tensile layers however, OP and IP anisotropies seem uncorrelated, but [1-10] remains the easier IP axis, like for the compressed samples. Since the OP anisotropy varies linearly with the lattice mismatch (lm) between the layer and the substrate, we postulate that large shear strain might appear in the case of large positive lm owing to anisotropic strain relaxation. Therefore, we investigate the origin of the IP uniaxial anisotropy in two samples of similar Mn concentration, one with strong IP uniaxial anisotropy (sample A) and the other with biaxial anisotropy (sample B).

Samples

In the following, we detail the characteristics of the two samples, both grown by molecular beam epitaxy on a (001) GaAs substrate topped with a high growth temperature (600 °C) \approx 500 nm GaAs buffer. Sample A consists of a (Ga,Mn)As layer of thickness 45 nm with an effective Mn concentration $x_{\text{eff}} = 5\%$. It was annealed for 16 h at 200°C. The Curie temperature is 120 K and M_s is 51.3 kA m⁻¹ at T = 4 K. The strained lattice mismatch after the anneal is lm = 3860 ppm, resulting in a biaxial epitaxial compressive

in-plane strain $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = -2 \times 10^{-3}$. The magnetic anisotropy constants obtained by ferromagnetic resonance (FMR) at T = 4 K are $K_{2\perp} = -8.5$ kJ m⁻³, $K_{2\parallel} = 1$ kJ m⁻³, and $K_{4\parallel} = 0.41$ kJ m⁻³. The easy magnetic axis is IP along the [-110] direction. In this sample, magnetoelastic coupling has been well established from SAW-induced magneto-acoustic resonance and magnetization switching.^{26,27} A model using the B_2 magnetoelastic constant (see further in the article) obtained from the experimental value of $K_{2\parallel}$ and the value of ϵ_{xy} estimated from the k \cdot p calculation quantitatively accounted for the amplitude of SAW-induced magnetization precession, suggesting the magnetoelastic origin of $K_{2\parallel}$.

Sample B is a (Ga,Mn)As_{0.95}P_{0.04} layer of thickness 50 nm with $x_{\rm eff} = 4\%$. It was annealed for 1 h at 250 °C. The Curie temperature is 85 K. At T = 4 K, the saturation magnetization is 40.7 kA m⁻¹, the anisotropy constants are $K_{2\perp} = -0.22$ kJ m⁻³, $K_{2\parallel} = 0.26$ kJ m⁻³, and $K_{4\parallel} = 1.57$ kJ m⁻³. The strained lattice mismatch is lm = -1200 ppm ($\epsilon_{xx} = -6 \times 10^{-4}$). The OP anisotropy resulting from the small tensile strain is weaker than the shape anisotropy, resulting in IP magnetization with biaxial magnetic anisotropy and easy axes close to the $\langle 100 \rangle$ IP directions since $K_{2\parallel} \ll K_{4\parallel}$. In this sample, easy triggering of spin wave excitation by optical pulses was demonstrated.⁴³

In the following section, we will use the lattice mismatch obtained at room temperature in order to model the band structure and magnetic uniaxial anisotropies in the low-temperature limit. This procedure, used by many authors without questioning, is actually justified by the identical temperature dependence of the perpendicular lattice parameters of (Ga,Mn)As and GaAs.⁴⁴

MODELING UNIAXIAL ANISOTROPIES

Methodology

The magnetic anisotropy properties are studied in the framework of the effective mass approximation by using the following total Hamiltonian: $\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\mathbf{kp}} + \mathcal{H}_{exc} + \mathcal{H}_{S}$. $\mathcal{H}_{\mathbf{kp}}$ is the six-band Kohn-Luttinger Hamiltonian,⁴⁵ which was shown to be sufficient for (Ga,Mn)As for a Fermi energy up to $\simeq 300~\text{meV.}^{46}$ We employ GaAs values for the Luttinger parameters.⁴⁷ \mathcal{H}_{exc} describes the effective exchange interaction between the delocalized hole spin s and the localized Mn spin S $(S = \frac{5}{2})$ arising from p-d hybridization.⁴⁸ In the mean field approximation in which the virtual crystal approximation is made,⁴⁹ one can write the exchange interaction as $(-x_{\text{eff}}N_0\beta_{pd}\langle S\rangle s)$. N_0 is the cation site concentration, β_{pd} is the p-d exchange integral. $x_{\rm eff}$ is the effective Mn concentration which is deduced from the low-temperature saturation magnetization M_s by $x_{\rm eff} = \frac{M_s}{N_0 S g \mu_B}$, where g is the Landé factor and μ_B is the Bohr magneton. The strain effects are modeled by the Bir-Pikus Hamiltonian \mathcal{H}_{s} .⁵⁰ Formally, this strain Hamiltonian has the same structure as the Kohn–Luttinger Hamiltonian, in which $k_{\alpha}k_{\beta}$ is replaced by $\epsilon_{\alpha\beta}$, and the Luttinger parameters are replaced by the deformation potentials, namely, a_v , b_v , and d_v (for more details, see for example, Ref. 6). In the basis given in Refs. 51 and 52, it takes the following expression:

$$\mathcal{H}_{S} = \begin{pmatrix} (A_{1s} - A_{2s}) & B_{s} & C_{s} & 0 & \frac{1}{\sqrt{2}}B_{s} & \sqrt{2}C_{s} \\ cc & (A_{1s} + A_{2s}) & 0 & C_{s} & \sqrt{2}A_{2s} & -\sqrt{\frac{3}{2}}B_{s} \\ cc & 0 & (A_{1s} + A_{2s}) & -B_{s} & -\sqrt{\frac{3}{2}}B_{s}^{*} & -\sqrt{2}A_{2s} \\ 0 & cc & cc & (A_{1s} - A_{2s}) & -\sqrt{2}C_{s}^{*} & \frac{1}{\sqrt{2}}B_{s}^{*} \\ cc & cc & cc & cc & A_{1s} & 0 \\ cc & cc & cc & cc & 0 & A_{1s} \end{pmatrix},$$
(2)

1

where cc denotes the complex conjugate. One writes the non-zero matrix elements of \mathcal{H}_S as

$$A_{1s} = a_{\nu}(\boldsymbol{\epsilon}_{xx} + \boldsymbol{\epsilon}_{yy} + \boldsymbol{\epsilon}_{zz}), \qquad (3)$$

$$A_{2s} = \frac{b_{\nu}}{2} (\boldsymbol{\epsilon}_{xx} + \boldsymbol{\epsilon}_{yy} - 2\boldsymbol{\epsilon}_{zz}), \qquad (4)$$

$$B_s = d_v (\boldsymbol{\epsilon}_{zx} - i \boldsymbol{\epsilon}_{zy}), \tag{5}$$

$$C_{s} = \frac{\sqrt{3}}{2} b_{\nu}(\boldsymbol{\epsilon}_{xx} - \boldsymbol{\epsilon}_{yy}) - i d_{\nu} \boldsymbol{\epsilon}_{xy}.$$
 (6)

Adopting the notation of Glunk *et al.*⁵³ for the relaxed lattice parameter and strain, one can write $\epsilon_{zz} = \frac{a_{\perp} - a_{rel}}{a_{rel}} \cdot a_{rel}$ is the relaxed lattice parameter of a biaxially strained layer on a [001]-oriented

substrate obtained as

$$a_{rel} = \frac{2C_{12}}{C_{11} + 2C_{12}} a_{\parallel} + \frac{C_{11}}{C_{11} + 2C_{12}} a_{\perp}, \tag{7}$$

where a_{\parallel} and a_{\perp} are the lateral and vertical lattice parameters of the layer, respectively. In our theoretical approach, (i) due to the $T_d \rightarrow D_{2d}$ symmetry reduction, we consider the biaxial strain components, namely ($\epsilon_{xx}, \epsilon_{yy}, \epsilon_{zz}$) with $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$ and $\epsilon_{xx} = -\frac{C_{11}}{2C_{12}}\epsilon_{zz}$, where C_{11} and C_{12} are the elastic constants,⁵⁴ and (ii) due to the $D_{2d} \rightarrow C_{2v}$ symmetry reduction, the only shear strain component we consider is ϵ_{xy} that describes the in-plane deformation of the (Ga,Mn)As lattice.

In the following, we restrict our calculations to zero temperature and zero magnetic field. According to the microscopic model,^{6,49,53,55} we can calculate the carrier contribution to the magnetic free energy. The effective anisotropy field \mathbf{B}_{eff} acting on the magnetization is equal to $-\nabla_{\mathbf{M}}E_c(\mathbf{M})$, where E_c is the carrier energy density, therefore, $E_m = E_c$. Using Eq. (B2) of Ref. 49, we evaluate E_c by integrating the Fermi energy with respect to the hole concentration for different magnetization orientations. Note that the main contribution of E_c to the magnetic anisotropy comes from the spin–orbit coupling in the valence band. Once E_c is calculated numerically as a function of the orientations (θ , ϕ), we compare it with the phenomenological E_m [Eq. (1)], excluding shape anisotropy, and deduce the magnetic anisotropy constants.

Uniaxial anisotropy constants without and with shear strain

In Fig. 2(a), $K_{2\perp}$ is plotted as a function of the hole concentration, p, for various exchange splittings of the valence subbands, $B_g = \frac{A_F \beta_{pd} M_s}{6g \mu_B}$ (A_F is the Fermi-liquid parameter), namely, $B_{g} = -20, -30, \text{ and } -40 \text{ meV}$. Setting aside the shape anisotropy, the sign change of $K_{2\perp}$ is a signature of the change of the magnetic configuration from the (001) easy-plane ($K_{2\perp} < 0$) to the [001] easy axis ($K_{2\perp} > 0$). The dashed line represents the experimental value of $K_{2\perp}$ for sample A, i.e., $K_{2\perp} = -8.5$ kJ m⁻³, which is in good agreement with the microscopic model prediction, -8.81 kJ m-3 when $B_{g} = -40 \text{ meV}$ and $p = 3.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Adopting $B_{g} = -40 \text{ meV}$, one estimates $M_s \simeq 68 \text{ kA m}^{-1}$, while the experimental value of the saturation magnetization for sample A is $M_s \simeq 51.3 \text{ kA m}^{-1}$. This discrepancy might originate from the experimental difficulty in determining M_s , giving some error bar. Moreover, the adopted values of β_{pd} and A_F can also explain such discrepancy. Once we have validated the $(B_g, \text{colon}p)$ values, we focus on the shear strain effect on the uniaxial anisotropy constants. This is summarized in Fig. 2(b) which shows $K_{2\perp}$ (black line) and $K_{2\parallel}$ (red line) as a function of the ϵ_{xy} strain. The linear dependence of $K_{2\perp}$ and $K_{2\parallel}$ is clearly seen. Such behavior was expected because $K_{2\parallel}$ is roughly proportional to $K_{2\perp}$ as seen in Fig. 1. Considering alternatively the perturbation of the band structure brought by anisotropically distributed Mn dimers, Birowska²³ predicts instead that $K_{2\perp}$ is almost unchanged for a wide range of ϵ_{xy} while observing a linear behavior for $K_{2\parallel}$, contradicting the experimental trend observed in the compressive regime (Fig. 1). As shown in Fig. 2(b), and for $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$, one gets $K_{2\perp} = -8.2 \text{ kJ m}^{-3}$ and $K_{2\parallel} = 0.96 \text{ kJ m}^{-3}$, which are in good agreement with the FMR data of sample A, namely, $K_{2\perp} = -8.5 \text{ kJ m}^{-3}$ and $K_{2\parallel} = 1 \text{ kJ m}^{-3}$. The inset of Fig. 2(b) which shows $K_{2\parallel}$ as a function of p confirms the same trend concerning this agreement between our theoretical predictions and the FMR data. The present ϵ_{xy} value is in line with previous estimations following a similar approach, which range from 10^{-4} to 5 × 10⁻⁴.^{6,1}

Magnetoelasticity and anisotropy constants

Having evaluated numerically the shear strain needed to yield the experimental $K_{2\perp}$ and $K_{2\parallel}$, we now link the phenomenological constants of magnetic anisotropy with the magnetoelastic constants (B_1, B_2) . For this purpose, we consider the phenomenological description of the magnetoelastic energy, E_{me} , which describes the



FIG. 2. (a) Perpendicular anisotropy constant $K_{2\perp}$ as a function of the carrier density for different values of the exchange parameter B_g . The dashed line corresponds to the experimental value. (b) Perpendicular uniaxial anisotropy constant $K_{2\perp}$, and in-plane uniaxial anisotropy constant $K_{2\parallel}$ as a function of the shear strain for a carrier density $p = 3.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, with $B_g = -40 \text{ meV}$ and $\epsilon_{xx} = -2 \times 10^{-3}$. The inset shows $K_{2\parallel}$ as a function of the hole concentration with $\epsilon_{xx} = -2 \times 10^{-3}$ and $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$.

interaction between the magnetization and the mechanical strain of the lattice. We start from the general expression of E_{me} in the cubic symmetry case, keeping only terms up to the second order in the magnetization components,⁵⁶

$$E_{me} = B_1 \epsilon_{ii} \left(m_i^2 - \frac{1}{3} \right) + B_2 \epsilon_{ij} m_i m_j.$$
(8)

Without applied magnetic field, the E_{me} energy coincides with the uniaxial components of the magnetic free energy, E_m , explicitly given by Eq. (1). Identifying Eq. (8) with Eq. (1), one can deduce

$$K_{2\parallel} = 2B_2 \boldsymbol{\epsilon}_{xy} = -6C_{44} \lambda_{111} \boldsymbol{\epsilon}_{xy}, \qquad (9)$$

$$K_{2\perp} = -\frac{2C_{12} + C_{11}}{2C_{12}} B_1 \epsilon_{zz} + B_2 \epsilon_{xy}$$

$$= \frac{3}{2} \frac{(2C_{12} + C_{11})(C_{11} - C_{12})}{2C_{12}} \lambda_{100} \epsilon_{zz} - 3C_{44} \lambda_{111} \epsilon_{xy},$$
(10)

where λ_{100} and λ_{111} are the saturation magnetostriction constants when the magnetization is aligned along the [100] and [111] directions, respectively. Using Eqs. (9) and (10), we get $\lambda_{100} \simeq -27$ ppm and $\lambda_{111} \simeq -26$ ppm, comparable to values for ferromagnetic magnetostrictive metals such as Ni ($\lambda_{100} \simeq -46$ ppm, $\lambda_{111} \simeq -24$ ppm)⁵⁷ and Fe ($\lambda_{100} \simeq 20$ ppm, $\lambda_{111} \simeq -21$ ppm).⁵⁷ These values are about 3 times larger than the ones determined experimentally (8–11 ppm), however on an unannealed sample with a low Curie temperature (57 K).⁵⁸ We can also deduce $\lambda_{100} \simeq \lambda_{111}$ indicating a quasi-isotropic magnetostriction for the (Ga, Mn)As sample. Note that these λ values give the order of magnitude of the magnetization-induced strain that would appear below the Curie temperature, which is much smaller that the shear strain discussed in this paper and would moreover depend on the magnetization orientation.

SEARCHING FOR A REAL SHEAR STRAIN

Having estimated the shear strain required to yield the observed anisotropy, we then search for its experimental evidence using either x-ray diffraction or the photoelastic effect.

X-ray diffraction

Two strategies requiring different configurations were adopted but conveying both the idea that the IP (Ga,Mn)As lattice has slightly relaxed and become rectangular in the $\langle 110 \rangle$ base [Figs. 3(a) and 4(a)]. In the (C1) configuration [Fig. 3(a)], we look for [110] and [1–10] vectors of different lengths (as done in Refs. 15 and 25). For this, we perform the incident angle (ω -)scan along three 90°-apart IP azimuths. The mapped regions were chosen to cover, in the same dataset, x-ray diffraction signal originating both from the GaAs substrate and the (Ga,Mn)As layer. The shift along Q_x (ΔQ_i) between the substrate and layer peak positions is extracted from the $Q_x - Q_z$ map reconstruction for each azimuth *i*. From the estimated shear strain for sample A, a maximum of $\frac{\Delta Q_i}{Q_{GaAs}} - \frac{\Delta Q_{i+1}}{Q_{GaAs}} \approx 2 \times 10^{-4}$ can be expected for two successive [hh] IP azimuths, and none for diametrically opposed azimuths (*i* and *i* + 2), as shown in the schematics of Fig. 3(a). A similar procedure is then performed along $\langle 100 \rangle$ IP directions, for which we expect identical lattice spacing.

In the (C2) configuration [Fig. 4(a)], we look for angles between $\langle 100 \rangle$ IP directions differing from 90° for the (Ga,Mn)As layer, or equivalently that $\langle 100 \rangle$ IP (Ga,Mn)As axes do not coincide with GaAs ones. To do so, azimuthal (ϕ) scans are performed around three 90°-spaced IP azimuths *i*, and compared to [110]/[1–10] scans for which no difference of peak position is expected. Using again $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$, a maximum spacing of $\Delta \phi = \phi_{\text{GaAs,i}} - \phi_{(\text{Ga,Mn})\text{As,i}} = (-1)^i 12$ mdeg can be anticipated for *hol* peaks: a signature of shear strain is indeed that the angle between [100]/[010] vectors of (Ga,Mn)As should alternatively be smaller (< 90°) or larger (> 90°) than for GaAs [see schematics of Fig. 4(a)]. For *hhl* peaks, we expect from this scenario $\Delta \phi = 0$ for all azimuths.

Experiments were performed at room temperature on the DiffAbs beamline of the SOLEIL synchrotron. High resolution reciprocal space maps around the various diffraction peaks were performed. By using a hybrid pixel area detector (XPAD) covering an angular range of several degrees, these measurements are typically realized by scanning one of the sample angles/orientations around the value satisfying Bragg's law. Data are acquired during the continuous movement (rotation) of the motor (which is optically encoded) for achieving angular resolution better than 0.1 mdeg. Corresponding volumes in the reciprocal space $(Q_x, Q_y, Q_z \text{ coordinates})$ were reconstructed and x-ray diffraction peak position was extracted from 2D planar cuts. Indices h,k,l were chosen low enough to have both peaks appearing on the 2D XPAD detector and $l \neq 0$, but large enough to clearly separate GaAs and (Ga,Mn)As peaks for (C1). Although x-ray diffraction using a well collimated x-ray beam (e.g., like the one at a synchrotron facility) is expected to detect such quantities, we should point out here the particular difficulty related to the presence of the very sharp and intense GaAs substrate diffraction peaks located extremely close to the (Ga,Mn)As epitaxial layer peaks. With indices



FIG. 3. (a) Schematics of a sheared in-plane (Ga,Mn)As lattice (in red) over GaAs (in black). In reciprocal space maps, we look for misalignments of substrate and layer peak position along Q_x . (b) Reconstructed Q_x/Q_z map for the (226) diffraction peak (log scale). (c) Projection along the Q_x direction of the substrate and layer diffraction peaks averaged between the dotted lines of (b), evidencing a slight shift, but which is of the same order of magnitude between consecutive and opposite peaks. Experiments are performed at room temperature.



FIG. 4. (a) Schematics of sheared in-plane lattice. In (ϕ)-scans, we look for misalignments of $\langle 100 \rangle$ directions between the (Ga,Mn)As (in red) and GaAs (in black) lattice. (b) Typical ϕ -scans for (206) planes, with $\omega = 15.8238^{\circ}$ (respectively $\omega = 15.6280^{\circ}$) for the Bragg [respectively (Ga,Mn)As] peak. (c) Typical ϕ -scans for (226) planes, with $\omega = 10.9522^{\circ}$ (respectively $\omega = 10.8197^{\circ}$) for the GaAs [respectively (Ga,Mn)As] peak. We define $\Delta \phi = \phi_{GaAs} - \phi_{(Ga,Mn)As}$. "Wings" appear on either side of the GaAs substrate peak, a possible signature of truncation rods. Experiments are performed at room temperature.

verifying h + k + l = 4n + 2 for the (*hhl*) peak, the energy was moreover tuned for anomalous diffraction in order to minimize the GaAs signal.⁵⁹ The final configuration was to study (206) and (226) peaks at E = 12.35 keV. The x-ray beam spot size was around 150 µm. Although anomalous diffraction conditions were fulfilled for (226) planes, the Bragg peak intensity remained over 100 times larger than that of the 45 nm thick magnetic layer, because of the much deeper penetration depth of x-rays (about 2µm).

Typical maps and cuts realized in the (C1) configuration are shown in Figs. 3(b) and 3(c). A systematic difference of IP peak position was observed between the substrate and the sample A layer, corresponding to $\frac{\Delta Q_i}{Q_{ciads}} - \frac{\Delta Q_{i+1}}{Q_{ciads}} \approx -2 \pm 0.5 \times 10^{-4}$ for (226) peaks and $1.2 \pm 0.5 \times 10^{-4}$ for (206) peaks. Fairly large deviations were observed between repeated measurements; however, no significant difference was observed between 2 consecutive or opposite peaks, contrary to what is expected from shear strain. As a result, we could at best conclude on a very marginal isotropic IP relaxation of the layer, but not on any nonequivalent lattice spacing along [110]/[1–10] directions as opposed to [100]/[010] ones. Using these data, we also searched inconclusively for signatures of anisotropic coherence length [i.e., anisotropic (226) layer peak widths], and anisotropic structure factor [i.e., anisotropic ratio of integrated intensity of GaAs and (Ga,Mn)As peaks].

Typical results obtained in the (C2) configuration are shown in Figs. 4(b) and 4(c). A clear and reproducible angular $\Delta \phi = -2 \pm 0.3$ mdeg was observed for the (226) direction. This (226) misalignment had the same sign for two consecutive azimuths, which should indicate a bulk rotation of the layer IP lattice with respect to the substrate, rather than a shearing. However, no misalignment was observed on (206) peaks (within the standard deviation) to validate this bulk rotation. As for the (C1) configuration, no robust evidence of a shear strain could be found in this high IP anisotropy layer.

Photoelastic effect

We turned to another method with a potentially larger sensitivity to strain: the photoelastic effect.

Owing to the photoelastic effect, the dielectric permittivity tensor of a zinc blende crystal is modified.⁶⁰ The biaxial strain does

not induce any birefringence but an ϵ_{xy} shear strain introduces an off-diagonal matrix element that produces different refractive indices for linear polarization along the [110] and [-110] crystallographic axes. Consequently, for near-normal incidence, a linear polarization making an angle β with the [110] direction will rotate by an angle $\Delta\beta_{pe} = \Delta\beta_{pe}^0 \sin(2\beta)$ with

$$\Delta\beta_{pe}^{0} = Re\left[\frac{C_{44}P_{44}\boldsymbol{\epsilon}_{xy}\left(1 - \exp\left(i\frac{4\pi nt}{\lambda}\right)\right)}{n(n^{2} - 1)}\right],$$
(11)

where *n* is the complex refractive index [we assume the same index for the (Ga,Mn)As layer and the GaAs substrate], *t* is the layer thickness, C_{44} is the elastic constant, and $P_{44} = 4P_{1212}$, *P* being the stress-optical tensor.^{61,62} It is this exact term that was used for the static or time-resolved detection of SAW-induced variations of strain in Refs. 63 and 27. Taking the experimental values for P_{44} and *n* from Ref. 61 at the optical wavelength $\lambda = 532$ nm and $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$ we estimate $\Delta \beta_{pe}^0 \approx 15$ mdeg, which should be easily detected using a photoelastic modulator.⁶⁴ Once again, if it is a real shear strain that induces the IP anisotropy, it should persist at room temperature.

Four samples were investigated: Sample A with strong IP uniaxial anisotropy, sample B with biaxial anisotropy, an epiready GaAs substrate, and a 100 nm aluminum layer evaporated on a glass substrate.

The polarization rotation was measured at room temperature in the reflection geometry as a function of the angle between an IP crystallographic axis (or an arbitrary axis in the case of Al/glass) and the incident linear polarization using a photoelastic modulator. In order to rotate the sample in its plane without any change in the path of the reflected light, the sample was mounted on an x-ray goniometer. The sample plane was perpendicular to the plane of incidence. The angle of incidence was 19°. The 532 nm-laser beam was linearly polarized perpendicular to the plane of incidence. The reflected beam was modulated by a photoelastic modulator (frequency f = 42 kHz) with axes parallel and perpendicular to the incident polarization before passing through an analyser set at 45° to the axes and being detected by a photodiode. The Kerr rotation signal was detected at 2*f* by a lock-in amplifier. The reflected signal



FIG. 5. Polarization rotation angle $\Delta\beta$ (left scale) as a function of β , the angle of rotation of the sample in its plane, for a fixed vertical light polarization **E**. For Sample A, Sample B, and the GaAs substrate, β is counted from the [110] axis as indicated in the inset. Right scale: the polarization rotation expected from the photoelastic effect assuming $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$.

at the frequency of a mechanical chopper was used to normalize the signal.

Figure 5 shows the polarization rotation for the four samples. For the Al/glass sample (triangles), there is hardly any dependence on the rotation angle, likewise for sample B with biaxial anisotropy (full circles). Sample A, with uniaxial anisotropy (squares), shows a $\sin(2\beta)$ dependence, indeed related to the crystallographic axes as we have checked, but with an amplitude of less than 1.5 mdeg, i.e., ten times smaller than expected for $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$. This places an upper boundary for a genuine shear strain in the layer of $\epsilon_{xy} = 10^{-5}$, just below our x-ray detection threshold. However, this polarization rotation is probably related to GaAs, since it is the same on sample A and the bare substrate (empty circles). Since there is no such polarization rotation on sample B, this might depend on the quality of the substrate.

Therefore, we conclude that the expected shear strain is not found although well within the detectability range of the optical measurements.

DISCUSSION AND CONCLUSION

We looked for experimental evidence of a structural shear strain being at the roots of strong in-plane magnetic anisotropy in (Ga,Mn) As, relying on x-ray diffraction or photoelastic effect-induced optical polarization rotation. While the search for anisotropic [110] and [1–10] vector lengths proved inconclusive due to poor experimental reproducibility, that of [100]/[010] angles differing from 90° clearly ruled out the existence of a physical $\epsilon_{xy} = 10^{-4}$ strain compatible with the **k** · **p** theory estimations of our anisotropy. This was confirmed by photoelastic effect measurements. We thus conclude on the absence of a *physical* shear strain responsible for the observed uniaxial anisotropy, and instead on a mechanism capable of being

modeled as an effective shear strain. Paralleling the preferential attachment of Fe atoms to As-rich planes leading to strong uniaxial uniaxial anisotropy observed on Fe/GaAs,¹² one can invoke the possible anisotropic incorporation of Mn atoms,²⁵ or Mn dimer formation^{13,23} when growing (Ga,Mn)As on a GaAs substrate. These would be equivalent to a shear strain in a hypothetical free (Ga,Mn) As layer, thereby inducing magnetic anisotropy as the theory developed above shows, but be undetectable once epitaxied perfectly onto the substrate. Quite challenging to observe directly by microscopy techniques, such an anisotropic magnetic atom distribution might, however, show up as a measurable anisotropy of the exchange constant (at low temperatures). A positive conclusion to such an experiment would help to devise growth strategies capable of tuning this magnetic anisotropy. Independent of the origins of this effective shear strain, our comparison of data taken on a large number of articles highlights that the surest way of obtaining a strong IP anisotropy in (Ga,Mn)As remains to target a large out-of-plane anisotropy, often the result of a combination of large lattice mismatch, optimized anneal, and high effective Mn concentration.

ACKNOWLEDGMENTS

This work was financially supported by the Tunisian Ministry of Higher Education and Scientific Research and by the French Ministry of Foreign Affairs through the project PHC Utique (No. 16G1303). We acknowledge the SOLEIL Synchrotron for providing the beamtime for the diffraction experiments (proposal No. 20180469). We thank H. J. von Bardeleben from INSP for the FMR data and F. Vidal and M. Vabre from INSP for providing and fixing the x-ray goniometer for optical experiments.

REFERENCES

¹S. Iwasaki, IEEE Trans. Magn. 16, 71 (1980).

- ²L. Thevenard, B. Boutigny, N. Güsken, L. Becerra, C. Ulysse, S. Shihab, A. Lemaître, J.-V. Kim, V. Jeudy, and C. Gourdon, Phys. Rev. B **95**, 054422 (2017).
- ³S. Davis, J. A. Borchers, B. B. Maranville, and S. Adenwalla, J. Appl. Phys. 117, 063904 (2015).

⁴I. Camara, J.-Y. Duquesne, A. Lemaître, C. Gourdon, and L. Thevenard, Phys. Rev. Appl. **11**, 014045 (2019).

⁵D. Givord, O. F. K. McGrath, C. Meyer, and J. Rothman, J. Magn. Magn. Mater. 157-158, 245 (1996).

⁶J. Zemen, J. Kučera, K. Olejník, and T. Jungwirth, Phys. Rev. B **80**, 155203 (2009).

⁷J. Li and P. M. Haney, Appl. Phys. Lett. 109, 032405 (2016).

⁸O. Thomas, Q. Shen, P. Schieffer, N. Tournerie, and B. Lépine, Phys. Rev. Lett. 90, 017205 (2003).

⁹S. Zhou, L. Chen, A. Shalimov, J. Zhao, and M. Helm, AIP Adv. 2, 042102 (2012).

¹⁰E. M. Kneedler, B. T. Jonker, P. M. Thibado, R. J. Wagner, B. V. Shanabrook, and L. J. Whitman, Phys. Rev. B 56, 8163 (1997).

¹¹M. Zölfl, M. Brockmann, M. Köhler, S. Kreuzer, T. Schweinböck, S. Miethaner, F. Bensch, and G. Bayreuther, J. Magn. Magn. Mater. **175**, 16 (1997).

¹²K. Tivakornsasithorn, X. Liu, X. Li, M. Dobrowolska, and J. K. Furdyna, J. Appl. Phys. **116**, 043915 (2014).

¹³M. Birowska, C. Śliwa, J. A. Majewski, and T. Dietl, Phys. Rev. Lett. 108, 237203 (2012).

14Y. Hashimoto, Y. Iye, and S. Katsumoto, J. Cryst. Growth 378, 381 (2013).

¹⁵U. Welp, V. K. Vlasko-Vlasov, A. Menzel, H. D. You, X. Liu, J. K. Furdyna, and T. Wojtowicz, Appl. Phys. Lett. 85, 260 (2004).

¹⁶J. Wunderlich, A. C. Irvine, J. Zemen, V. Holý, A. W. Rushforth, E. De Ranieri, U. Rana, K. Výborný, J. Sinova, C. T. Foxon, R. P. Campion, D. A. Williams, B. L. Gallagher, and T. Jungwirth, Phys. Rev. B 76, 054424 (2007).

¹⁷J. Shiogai, D. Schuh, W. Wegscheider, M. Kohda, J. Nitta, and D. Weiss, Appl. Phys. Lett. 98, 98 (2011).

- ¹⁸M. Sawicki, K.-Y. Wang, K. W. Edmonds, R. P. Campion, C. R. Staddon, N. R. S. Farley, C. T. Foxon, E. Papis, E. Kamińska, A. Piotrowska, T. Dietl, and
- B. L. Gallagher, Phys. Rev. B 71, 121302 (2005).
 ¹⁹S. Piano, X. Marti, A. W. Rushforth, K. W. Edmonds, R. P. Campion,
- M. Wang, O. Caha, T. U. Schülli, V. Holý, and B. L. Gallagher, Appl. Phys. Lett. **98**, 152503 (2011).

20S. van Dijken, G. Di Santo, and B. Poelsema, Appl. Phys. Lett. 77, 2030 (2000).

⁽²⁰³⁰⁾.
 ²¹A. Muñoz-Noval, E. Salas-Colera, and R. Ranchal, J. Phys. Chem. C 123, 13131 (2019).

²²A. W. Rushforth, E. De Ranieri, J. Zemen, J. Wunderlich, K. W. Edmonds, C. S. King, E. Ahmad, R. P. Campion, C. T. Foxon, B. L. Gallagher, K. Výborný, J. Kučera, and T. Jungwirth, Phys. Rev. B 78, 085314 (2008).

²³M. Birowska, J. Magn. Magn. Mater. 432, 396 (2017).

²⁴H. Subramanian and J. E. Han, J. Phys. Condens. Matter 25, 206005 (2013).

²⁵M. Kopecký, J. Kub, F. Máca, J. Mažek, O. Pacherová, A. W. Rushforth, B. L. Gallagher, R. P. Campion, V. Novák, and T. Jungwirth, Phys. Rev. B 83, 235324 (2011).

²⁶P. Kuszewski, I. S. Camara, N. Biarrotte, L. Becerra, J. von Bardeleben, W. Savero Torres, A. Lemaître, C. Gourdon, J.-Y. Duquesne, and L. Thevenard, J. Phys. Condens. Matter **30**, 244003 (2018).

²⁷P. Kuszewski, J.-Y. Duquesne, L. Becerra, A. Lemaître, S. Vincent, S. Majrab, F. Margaillan, C. Gourdon, and L. Thevenard, Phys. Rev. Appl. 10, 034036 (2018).

²⁸D. K. Biegelsen, R. D. Bringans, J. E. Northrup, and L.-E. Swartz, Phys. Rev. B 41, 5701 (1990).

²⁹Q. Xue, T. Hashizume, J. M. Zhou, T. Sakata, T. Ohno, and T. Sakurai, Phys. Rev. Lett. **74**, 3177 (1995).

³⁰M. S. Brandt, S. T. B. Goennenwein, T. A. Wassner, F. Kohl, A. Lehner, H. Huebl, T. Graf, M. Stutzmann, A. Koeder, W. Schoch, and A. Waag, Appl. Phys. Lett. 84, 2277 (2004).

³¹S. T. B. Goennenwein, T. Graf, T. Wassner, M. S. Brandt, M. Stutzmann, J. B. Philipp, R. Gross, M. Krieger, K. Zurn, P. Ziemann, A. Koeder, S. Frank, W. Schoch, and A. Waag, Appl. Phys. Lett. **82**, 730 (2003).

³²P. Němec, V. Novák, N. Tesařová, E. Rozkotová, H. Reichlová, D. Butkovičová, F. Trojánek, K. Olejník, P. Malý, R. Campion, B. Gallagher, J. Sinova, and T. Jungwirth, Nat. Commun. 4, 1422 (2013).

33 A. Chernyshov, M. Overby, X. Liu, J. K. Furdyna, Y. Lyanda-Geller, and L. P. Rokhinson, Nat. Phys. 5, 656 (2009).

³⁴D. Fang, H. Kurebayashi, J. Wunderlich, K. Výborný, L. P. Zårbo, R. P. Campion, A. Casiraghi, B. L. Gallagher, T. Jungwirth, and A. J. Ferguson, Nat. Nanotechnol. 6, 413 (2011).

³⁵V. K. Vlasko-Vlasov, W. K. Kwok, S. Dong, X. Liu, M. Dobrowolska, and J. K. Furdyna, Phys. Rev. B 98, 180411 (2018).

⁵⁶K. Khazen, H. von Bardeleben, J. Cantin, L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, and A. Lemaître, Phys. Rev. B 77, 165204 (2008).

37Using Fig. 4 of Ref. 32, we calculated their $K_{2\parallel}$ and $K_{2\perp}$ using $K_{out}(mT) = B_{2\perp} - \mu_0 M_s/2$ and assumed that all Mn were magnetically active to convert their anisotropy fields (K_{out}, K_u) into anisotropy constants.

³⁸S. Haghgoo, M. Cubukcu, H. J. von Bardeleben, L. Thevenard, A. Lemaître, and C. Gourdon, *Phys. Rev. B* **82**, 041301(R) (2010).

³⁹L. Thevenard, C. Gourdon, S. Haghgoo, J.-P. Adam, H. J. von Bardeleben, A. Lemaître, W. Schoch, and A. Thiaville, Phys. Rev. B 83, 245211 (2011).

⁴⁰L. Thevenard, E. Peronne, C. Gourdon, C. Testelin, M. Cubukcu, E. Charron, S. Vincent, A. Lemaître, and B. Perrin, Phys. Rev. B 82, 104422 (2010).

⁴¹M. Cubukcu, H. J. von Bardeleben, K. Khazen, J. L. Cantin, O. Mauguin, L. Largeau, and A. Lemaître, Phys. Rev. B **81**, 041202 (2010).

⁴²H. Riahi, W. Ouerghui, L. Thevenard, C. Gourdon, M. Maaref, A. Lemaître, O. Mauguin, and C. Testelin, J. Magn. Magn. Mater. 342, 149 (2013).

⁴³S. Shihab, H. Riahi, L. Thevenard, H. J. von Bardeleben, A. Lemaître, and C. Gourdon, Appl. Phys. Lett. **106**, 142408 (2015).

⁴⁴F. Matsukura and H. Ohno, Jpn. J. Appl. Phys. 54, 098003 (2015).

⁴⁵J. M. Luttinger and W. Kohn, Phys. Rev. **97**, 869 (1955).

⁴⁶M. Yahyaoui, K. Boujdaria, M. Cubukcu, C. Testelin, and C. Gourdon, J. Phys. Condens. Matter 25, 346001 (2013).

⁴⁷O. Madelung, U. Rossler, and M. Schulz, *Landolt-Bornstein*, New Series, Group III, Vol. 41 (Berlin, Springer-Verlag, 2005).

⁴⁸T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert, and e. D. Ferrand, Science 287, 1019 (2000).

49T. Dietl, H. Ohno, and F. Matsukura, Phys. Rev. B 63, 195205 (2001).

50 G. Pikus and G. Bir, Tverd. Tela (Leningrad) 1, 1642 (1960).

⁵¹G. G. Koster, J. Dimmock, R. G. Wheeler, and H. Statz, *Properties of the Thirty-Two Point Groups* (MIT Press, 1963), Vol. 24.

52The basis wave functions used for the matrix representation of *H*_S are extracted from Table 83, p. 94, of Koster *et al.*⁵¹ representing the direct product of two irreducible representations, namely, *Γ*₅ ⊗ *Γ*₆ = *Γ*₇ + *Γ*₈. In this Table, $(u_{yz}^5, u_{xz}^5, u_{xy}^5)$ indicate (*X*, *Y*, *Z*) p orbitals, $v_{1/2}^6 = \uparrow$ and $v_{-1/2}^6 = \downarrow$ where \uparrow (↓) indicates spin up (spin down) states. $\psi_{-1/2}^7 = |\frac{1}{2}, -\frac{1}{2} >$ and $\psi_{1/2}^8 = |\frac{3}{2}, \frac{1}{2} >$ represent the usual split-off valence bands (VBs), $\psi_{-3/2}^8 = |\frac{3}{2}, \frac{1}{2} >$ and $\psi_{3/2}^8 = |\frac{3}{2}, -\frac{1}{2} >$ indicate the light-hole VBs, $\psi_{-1/2}^8 = |\frac{3}{2}, \frac{3}{2} >$ and $\psi_{1/2}^8 = |\frac{3}{2}, -\frac{3}{2} >$ represent the heavy-hole VBs.

⁵³M. Glunk, J. Daeubler, L. Dreher, S. Schwaiger, W. Schoch, R. Sauer,
 W. Limmer, A. Brandlmaier, S. Goennenwein, C. Bihler *et al.*, Phys. Rev. B 79, 195206 (2009).

⁵⁴I. Vurgaftman, J. Á. Meyer, and L. Á. Ram-Mohan, J. Appl. Phys. 89, 5815 (2001).

⁵⁵M. Yahyaoui, C. Testelin, C. Gourdon, and K. Boujdaria, J. Appl. Phys. 111, 033902 (2012).

⁵⁶Magnetism I- Fundamentals, edited by E. du Trémolet de Lacheisserie D. Gignoux, and M. Schlenker (Kluwer Academic Publishers, 2003).

57 R. Grössinger, R. S. Turtelli, and N. Mehmood, in *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* (IOP Publishing, 2014), Vol. 60, p. 012002.

¹⁹ 012002.
 ⁵⁸S. C. Masmanidis, H. X. Tang, E. B. Myers, M. Li, K. De Greve, G. Vermeulen, W. Van Roy, and M. L. Roukes, Phys. Rev. Lett. **95**, 187206 (2005).

⁵⁹T. U. Schülli, M. Sztucki, V. Chamard, T. H. Metzger, and D. Schuh, Appl. Phys. Lett. **81**, 448 (2002).

⁶⁰D. Royer and E. Dieulesaint, *Elastic Waves in Solids* (Springer-Verlag, Heidelberg, 2001).

⁶¹P. Etchegoin, J. Kircher, M. Cardona, C. Grein, and E. Bustarret, Phys. Rev. B 46, 15139 (1992).

⁶²M. Cardona, D. Rönnow, and P. V. Santos, Thin Solid Films 313, 10 (1998).

⁶³P. V. Santos, Appl. Phys. Lett. 74, 4002 (1999).

64K. Sato, Jpn. J. Appl. Phys. 20, 2403 (1981).

Time- and space-resolved nonlinear magnetoacoustic dynamics

M. Kraimia,^{1,2} P. Kuszewski,¹ J.-Y. Duquesne,¹ A. Lemaître^(D),³ F. Margaillan,¹ C. Gourdon^(D),¹ and L. Thevenard^(D),^{*}

¹Sorbonne Université, CNRS, Institut des Nanosciences de Paris, 4 place Jussieu, 75005 Paris, France

²Faculté des Sciences de Bizerte, LR01ES15 Laboratoire de Physique des Matériaux: Structure et Propriétés, Université de Carthage, 7021 Zarzouna, Bizerte, Tunisia

³Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies, CNRS, Université Paris-Sud, Université Paris-Saclay, 91120 Palaiseau, France

(Received 14 February 2020; accepted 25 March 2020; published 20 April 2020)

Nonlinear magnetization dynamics are of great interest, being, for instance, leveraged for neuromorphic computing in spin-transfer torque nano-oscillators. Here, we demonstrate how to implement magnetoacoustics to reach this regime, using monochromatic ($f_{saw} = 450$ MHz) surface acoustic waves traveling on a thin layer of (Ga,Mn)As. By careful tuning of the precession frequency to both f_{saw} and $2f_{saw}$ using the magnetic field and temperature, we evidence clear signatures of a nonlinear magnetoacoustic response of the magnetic dynamics using the time- and space-resolved Kerr effect: (i) frequency and wave-vector doubling in time and space, respectively, (ii) quadratic (sublinear) evolution of the precession amplitude at $2f_{saw}$ (f_{saw}) with acoustic amplitude, and (iii) resonance field shift. While (i) can be well reproduced by a parametric resonance model where nonlinearities arise solely from the SAW, we show that features (ii) and (iii) also involve intrinsic magnetic nonlinearities. Understanding the conditions leading to these nonlinearities will mean better control of the acoustic-wave-driven magnetization dynamics, in order to implement optimally the wave properties enabled by this approach.

DOI: 10.1103/PhysRevB.101.144425

I. INTRODUCTION

The nonlinearity of the Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation governing magnetization dynamics makes it relatively easy to evidence nonlinear behavior in magnetic systems, such as frequency mixing or parametric pumping, i.e., the appearance of multiples or fractions of the eigenfrequency $(2\omega_0, 3\omega_0, \omega_0/2, ...)$ [1–3]. These effects are of great technological interest, as they are involved in precessional switching [4,5], the response of spin-transfer torque nano-oscillators [6], magnetic nanostructure-based neuromorphic computing [7,8], and exciting prototype devices of magnon-based logic [9] such as the magnon transistor [10], or magnonic directional coupler [11].

Magnons (spin waves) are generated inductively by current-driven radio-frequency (rf) magnetic fields but also very efficiently by rf bulk or surface acoustic waves (SAWs). Magnetoelasticity can indeed induce an effective rf field and there have been recent reports of the magnetization dynamics [12–15] and ferromagnetic resonance [16,17] that ensue. Paralleling what has been observed under inductive excitation [18,19], the acoustic parametric pumping of spin waves has been studied, and monitored by the absorption of the acoustic wave [3,20–24]. Looking at the magnetization dynamics, the appearance of $2f_{saw}$ following the excitation of precession by a monochromatic SAW at f_{saw} (frequency doubling) was recently evidenced [12]. However, owing to the hitherto lack of combined space and time resolution in the probing of magnetoacoustic dynamics, open questions remain pertaining to, e.g., the dependence of the spin-wave amplitude and eigenfrequency on the SAW amplitude, or the spatial frequencies and wavefront shape of the dynamics.

Using electrically excited SAWs traveling on a layer of ferromagnetic (Ga,Mn)As and combining space- and timeresolved detection of both the magnetization dynamics and the SAW amplitude, we evidence three different features of nonlinear behavior in a coupled magnetization/strain system: (i) frequency and wave-vector doubling in the magnetization dynamics but not in the SAW, (ii) nonlinearity of the precession amplitude, and (iii) a resonance field shift. Whereas at low SAW amplitudes these results are quantitatively very well accounted for in a perturbative scheme using a parametric oscillator model [12], we show that a full LLG solution is necessary out of this regime. These results validate SAWs, weakly attenuated strain excitations, as a relevant tool to perform remote and agile nonlinear spin-wave manipulation, something up to now forbidden by the local and short-lived spin waves excited inductively [25].

II. EXPERIMENTAL DETAILS

Whereas most magnetoacoustics reports use roomtemperature ferro- or ferrimagnets such as iron [26], nickel [12,16], cobalt [27], or YIG [28], we are using the dilute magnetic semiconductor (Ga,Mn)As. It offers a different set of magnetic parameters at all temperatures up to the Curie temperature T_c , and a convenient tuning of magnetoelastic constants by growth [29]. In particular, the frequency of the uniform spin-wave mode can easily be tuned to the acoustic frequency by varying the temperature, in addition to applying a bias magnetic field. Moreover, the magnetoelasticity of

^{*}thevenard@insp.jussieu.fr



FIG. 1. Schematics of the experimental setup (not to scale). The delay line between the two transducers is 2 mm. Angle and axis definitions: The SAW wave vector \mathbf{k}_{saw} is along [-110], and the static magnetization and incoming probe polarization are indicated by the angles ϕ_0 and β with respect to \mathbf{k}_{saw} . $\Delta \tau$ is an electronic delay between the firing of the rf bursts and the probe laser pulses. Their arrival time *t* is controlled by an optical delay line.

(Ga,Mn)As can readily be addressed by the ϵ_{XX} , ϵ_{ZZ} , and ϵ_{XZ} strain components of Rayleigh surface acoustic waves [14,30,31], with X parallel to \mathbf{k}_{saw} , the SAW wave vector, and Z denoting the normal to the sample plane (Fig. 1).

Here, the 45-nm-thick (Ga,Mn)As layer is grown by molecular beam epitaxy and annealed for 16 h at 200 °C, at which point the T_c reached 120 K, before being processed for the piezoelectric SAW excitation. For this, a $2 \times 2 \text{ mm}^2$ mesa is wet-etched down to the insulating (001) GaAs substrate in order to evaporate two pairs of interdigitated aluminum transducers (IDTs, 42 nm thick, 1 mm aperture, and 300 μ m width). These consist of 25 pairs of split 5:2 electrodes [32], which supplied with an rf voltage burst emit monochromatic 151, 301, 452, or 602 MHz SAWs traveling along the [-110] direction (Fig. 1). The sample exhibits competing biaxial and uniaxial magnetic anisotropies, the latter arising from magnetoelasticity $(B_1, B_2 \text{ constants}, \text{ see Appendix A})$. The resulting easy axis is along [-110] at low temperature. In the following, the field is thus applied along the hard [110] axis to lower the precession frequency up to H_a at which the magnetization aligns with the field. This sample was used in Ref. [14] to evidence the concomitant acoustic and magnetic resonance at these four frequencies. In the present work, we focus on the nonlinear behavior of the system, and reveal the spatial dependency of the magnetization dynamics.

Two types of data are acquired. In SAW ferromagnetic resonance (SAW-FMR) experiments, the SAW is picked up piezoelectrically by the opposite IDT after traveling across the mesa [Fig. 2(a)], and the amplitude of the detected acoustic echo is monitored with respect to the field amplitude. This is readily illustrated by the T = 42 K and T = 75 K SAW-FMR curves of Figs. 3(a) and 3(b). The former one exhibits a single resonant absorption peak at 26 mT, a field at which the precession frequency f_0 lies closest to the SAW frequency, whereas the latter one exhibits two peaks at 0.5 and 9 mT since the $f_0(B)$ curve crosses f_{saw} twice [Figs. 3(g) and 3(h)].

In time-resolved Kerr effect (TR-MOKE) experiments, 200-fs linearly polarized laser pulses are synchronized to the rf bursts and focused onto the sample using a microscope objective after passing through an optical delay line. The polarization makes an angle β with the [-110] axis of the



FIG. 2. (a) Acoustic echo recorded electrically on the detection transducer (triggered off the electromagnetic radiation). The amplitude is used for SAW-FMR analysis displayed in Fig. 3. (b) Time scans taken on (Ga,Mn)As at either 9 mT (T = 42 K) or 0.9 mT (T = 75 K), polarization angle $\beta = 0^{\circ}$. (c) Time scans taken on GaAs, on the 15- μ m gap between the exciting IDT and the (Ga,Mn)As mesa, $\beta = 45^{\circ}$. For all time scans shown here, $f_{saw} = 452$ MHz and $\Delta \tau$ is chosen to probe the center of the acoustic burst.

sample (Fig. 1). The polarization rotation $\delta\beta$ is monitored using a balanced optical detection bridge. A careful analysis of the dependence of $\delta\beta$ on the incoming polarization β yields the out-of-plane $\delta\theta$ and in-plane $\delta\phi$ magnetization dynamics components (Fig. 1), as well as the strain dynamics, via the photoelastic effect (PE). $\delta\theta$ is independent of β , whereas the PE varies as $\epsilon_{XX}(X, t) \sin 2\beta$. Setting the incoming polarization parallel to (45° from) \mathbf{k}_{saw} will thus cancel (maximize) the PE. Finally, time scans (spatial scans) are obtained by scanning the optical delay line (the piezoelectric stage holding the objective). Please refer to Ref. [14] for a more extensive description of the setup and data analysis procedure.

The $\lambda = 721$ nm wavelength and 0.4 numerical aperture objective used yield a spot size of 1.5 μ m full width at half maximum (FWHM) so that larger SAW wavelengths will be much better spatially resolved: 151 MHz (and the frequency doubled 302 MHz) corresponds to an 18 μ m (9 μ m) SAW wavelength while 602 MHz (and the frequency doubled 1.2 GHz) to $\lambda = 4.6 \ \mu m$ (2.3 μm). Yet higher frequencies will yield a larger signal since the magnetoacoustic resonant absorption increases with f_{saw} [31]. A comfortable compromise for this study has been to use $f_{saw} = 452$ MHz. SAWs were thus excited using 400-ns-long, +28-dBm, 452-MHz bursts at a 252 kHz repetition rate (unless specified). Note that this rate in combination with a 10% duty cycle leads to a substantial stationary heating (see details in Appendix B), so that all the temperatures mentioned in this paper are not effective sample temperatures, but rather the temperature at which the cryostat was regulated. These were the conditions used for the 42 and 75 K SAW-FMR curves described above [Figs. 3(a) and 3(b)].



FIG. 3. At two temperatures (T = 42 and 75 K): (a), (b) SAW-FMR absorption curve; (c), (d) Kerr signal proportional to the outof-plane magnetization precession component $\mathcal{K}_{\theta} = K\delta\theta$; and (e), (f) calculated amplitudes of the out-of-plane component $\delta\theta$ at f_{saw} (black) and $2f_{\text{saw}}$ (red). Calculations were done using either a full numerical approach (solid lines) or a perturbative approach (dashed lines) (see text and Appendix A for details). (g), (h) Field dependence of the precession frequency estimated from FMR-determined magnetic anisotropy constants [31] (see Appendix A). At $\mu_0 H_a$, the magnetization aligns with the field.

III. EVIDENCE OF NONLINEARITIES

A. Frequency doubling

We now turn to the TR-MOKE data. Placing the laser spot on the (Ga,Mn)As about 30 μ m from the last tooth of the exciting IDT, and scanning the optical delay line, we see periodic oscillations of the polarization rotation [Fig. 2(b)], i.e., of the magnetization dynamics, since the polarization is aligned with \mathbf{k}_{saw} ($\beta = 0^{\circ}$). For some fields/temperature the sole frequency content is f_{saw} while for others there is a clear coexistence of f_{saw} and $2f_{saw}$. This is illustrated by comparing the two time scans shown in Fig. 2(b), taken at B = 9 mT, T = 42 K, and B = 0.9 mT, T = 75 K. Note that the typical voltage levels arriving on the detection bridge were less than 1 V, and well within the linearity range of the photodiodes. Finally, in conditions of optimized focusing and high acoustic powers, we could also pick up a small but finite $3f_{saw}$ contribution to the time-domain signal.

Keeping the delay line position fixed, one can then raster the objective *spatially*. The resulting maps displayed in Fig. 4 show a spatially oscillating magnetic signal on the (Ga,Mn)As, and much fainter oscillations on the GaAs/IDT



FIG. 4. Spatial scans of the MOKE signal taken close to the exciting IDT over an area overlapping GaAs and (Ga,Mn)As with $\beta = 0^{\circ}$ and $\Delta \tau$ chosen to probe the magnetization dynamics at the center of the acoustic burst. Associated two-dimensional (2D) fast Fourier transform (FFT) of the (Ga,Mn)As part. (a) Under B = 9 mT, T = 42 K. (b) Under B = 0.9 mT, T = 75 K.

part since the photoelastic effect is very weak for $\beta = 0^{\circ}$. Under B = 9 mT, T = 42 K, a single spatial frequency is observed, corresponding to $\lambda_{saw} = 6.1 \ \mu m$ [Fig. 4(a)]. The wavefront is very straight, as expected since the IDT excites a quasi plane wave, and the laser spot is sufficiently far from the edges of the IDT to avoid diffraction. Detecting at the opposite IDT, 2 mm away, evidenced an identically straight magnetic wavefront (not shown) [33]. Under B = 0.9 mT, T = 75 K [Fig. 4(b)], two wavelengths are observed: λ_{saw} and $\lambda_{saw}/2$ corresponding to \mathbf{k}_{saw} and $2\mathbf{k}_{saw}$. The wavefront is now very slightly corrugated, with minute variations of the relative proportion of λ_{saw} and $\lambda_{saw}/2$ signal amplitudes along the Y axis. This may result from the dispersion of magnetic anisotropy parameters, revealed by the nonlinear magnetization precession. A similar observation had been made when simulating SAW-driven precessional switching, in which nonlinearities are even more pronounced [see Fig. 8(b) of Ref. [31], for instance]. As a first conclusion, clear frequency and wave-vector doubling can be observed in the magnetization dynamics. An analysis of the complete field dependence of the precession amplitudes will be shown in Sec. III C.

B. Quadratic amplitude behavior

To study the dependency of the signal amplitude versus drive (SAW) amplitude, we use to our advantage the fairly long rise time of the acoustic burst [Fig. 2(a)], which is directly related to the width of the transducer (300 μ m). For this we record numerous time scans, varying the electronic delay between rf bursts and laser pulses ($\Delta \tau$) to vary the amplitude of the strain arriving under the spot. The laser is first positioned on the (Ga,Mn)As, choosing conditions



FIG. 5. Study of f_{saw} and $2f_{saw}$ precession amplitudes vs acoustic drive. (a) Experimental amplitude of the polarization rotation on (Ga,Mn)As (A_1 and A_2 at f_{saw} and $2f_{saw}$, respectively) and on GaAs (A_{GaAs} at f_{saw}), at T = 75 K, and B = 0.8 mT. The laser polarization is $\beta = 0^{\circ}$ on (Ga,Mn)As and $\beta = 45^{\circ}$ on GaAs. (b) A_1, A_2 amplitudes plotted vs A_{GaAs} which is proportional to the SAW amplitude. Lines are linear or quadratic fits to the data. (c) Calculation of out-of-plane dynamic magnetization components $\delta\theta_1$, at f_{saw} , and $\delta\theta_2$ at $2f_{saw}$, using either a fully numerical nonapproximated approach (solid lines), or the small-angle perturbation approach (dotted lines) (B = 0.2 mT).

yielding frequency doubling (T = 75 K, B = 0.8 mT), then 15 μ m closer to the IDT, on the GaAs [see the corresponding positions in Figs. 2(b) and 2(c)]. On (Ga,Mn)As, the PE contribution is again minimized by taking $\beta = 0^{\circ}$, so that the polarization rotation mainly reflects the in-plane $\delta\phi$ and out-of-plane $\delta\theta$ magnetization dynamics. The PE contribution is maximized on GaAs by taking $\beta = 45^{\circ}$, so that $\delta\beta(t)$ is then essentially proportional to the SAW amplitude (ϵ_{XX} component). The resulting time scans are fitted by a function of the form $A_0 + A_1 \cos(2\pi f_{saw}t + \phi_1) + A_2 \cos(4\pi f_{saw}t + \phi_2)$, where we rely on the fact that the scanning window is much shorter than the 200-ns rise time of the burst.

Only one component at f_{saw} (A_{GaAs}) was necessary to fit the GaAs data, showing that any nonlinearities arising are of magnetic—not acoustic—origin. The A_1, A_2, A_{GaAs} amplitudes are represented versus electronic delay in Fig. 5(a). The overall shape perfectly reflects the envelope of the acoustic echo shape shown in Fig. 2(a). We then plot the A_1, A_2 amplitudes of the rising/falling edges of the burst versus the A_{GaAs} corresponding to the same $\Delta \tau$ delay—legitimate since the (Ga,Mn)As and GaAs data were taken 15 μ m apart, equivalent to a mere 5 ns lag of the SAW.

The final curves [Fig. 5(b)] show several very interesting features: The $2f_{saw}$ component has a clear quadratic behavior with the SAW amplitude. Importantly, there seems to be no threshold for the appearance of this double frequency, contrary to the case of parametric pumping [7,34]. The f_{saw}



FIG. 6. Offsets of the out-of-plane (A_0^{ϕ}) and in-plane (A_0^{ϕ}) magnetization dynamics components, T = 42 K.

component initially varies linearly with the SAW amplitude, as expected. It then progressively becomes sublinear. This deflation of the (f_{saw} , \mathbf{k}_{saw}) mode is a clear signature of nonlinear interactions with higher-order spin-wave modes as will be discussed further on. Note that this was also observed for magnetization dynamics triggered more traditionally by an external rf field [18,19], but without reaching the sublinear regime for the first mode. We thus conclude on a second important feature of this coupled system: the quadratic amplitude variation of the frequency-doubled precessing component.

C. Magnetoacoustic resonance

We then study more systematically the field dependence of the f_{saw} and $2f_{\text{saw}}$ precession amplitudes, choosing the electronic delay $\Delta \tau$ to probe the stationary part of the acoustic burst. For each field, time scans are recorded for six different incoming polarizations ($\beta = 0^{\circ}$, 30° , 60° , 90° , 120° , and 150°), in order to isolate the β -independent Kerr and $\cos 2\beta$ -dependent Voigt amplitudes, varying respectively as $\mathcal{K}_{\theta} = K\delta\theta(B, t), \ \mathcal{V}_{\phi} = 2V\delta\phi(B, t)\cos 2\phi_0(B)$, as explained in detail in Ref. [14]. Note that $\phi_0(B)$ is the static magnetization position, counted with respect to \mathbf{k}_{saw} (see schematics in Fig. 1). Finally, \mathcal{K}_{θ} and \mathcal{V}_{ϕ} are fitted as above with $A_0^{\theta,\phi} + A_1^{\theta,\phi} \cos (2\pi f_{\text{saw}}t + \phi_1^{\theta,\phi}) + A_2^{\theta,\phi} \cos (4\pi f_{\text{saw}}t + \phi_2^{\theta,\phi})$.

The resulting field dependence of \mathcal{K}_{θ} is represented in Figs. 3(c) and 3(d) for T = 42 and 75 K. The Gaussian beam averaging of the signal has been deconvolved, with the experimental $\mathcal{K}_{\theta}^{\text{expt}}$ multiplied by 1.08 (1.33) to yield \mathcal{K}_{θ} at $f_{\text{saw}} (2f_{\text{saw}})$. While smaller than the amplitude level at f_{saw} , the double frequency is still reasonably well excited, particularly at 75 K. A similar $2f_{\text{saw}}/f_{\text{saw}}$ amplitude ratio was observed in the \mathcal{V}_{ϕ} component (not shown). A single (double) resonance was observed at T = 42 K (T = 75 K), with resonance fields very similar to those of SAW-FMR [Figs. 3(a) and 3(b)]. Note that the position and respective amplitudes of the f_{saw} and $2f_{\text{saw}}$ depended acutely on the SAW power and precise temperature.

Using the same set of data, we can also plot the offset components of the $\mathcal{K}\delta\theta$, \mathcal{V}_{ϕ} terms: A_0^{θ} and A_0^{ϕ} . This is shown in Fig. 6 for T = 42 K (T = 75 K data available upon request). Both A_0^{θ} and A_0^{ϕ} are negligibly small except close to the resonance, peaking at respectively 5 and 57 μ rad. These offsets can be written as $A_0^{\theta} = \mathcal{K}\delta\theta_0(B)$ and $A_0^{\phi} = 2\mathcal{V}\cos 2\phi_0\delta\phi_0(B)$. Their existence implies that the position around which the magnetization precesses undergoes a slight shift away from its SAW-free equilibrium position. Since the Voigt coefficient $\mathcal V$ is typically five to ten times smaller than the Kerr one $\mathcal K$ [35], and $\cos 2\phi_0 < 1$, we can safely state that at resonance $\delta \phi_0 \gg \delta \theta_0$. No offset was observed at temperatures for which only one precession frequency was observed. These offsets are not expected in a linear FMR regime and are a clear marker of nonlinearities. They can be found in a parametric oscillator model (see the next section and Appendix A) since a perturbation at ω_{saw} not only provides oscillations at $\omega_{saw} + \omega_{saw} =$ $2\omega_{\rm saw}$ but also a constant signal at the difference frequency $(\omega_{\text{saw}} - \omega_{\text{saw}} = 0)$. Offsets also appear concomitantly with the large precession amplitudes that announce the onset of SAW-driven precessional switching [30].

D. Resonance field shift

Since the precession frequency depends on the mean magnetization position, the $\delta \phi_0$ shift should also induce a shift of the resonance field when increasing the driving force, as observed in Refs. [36-38] under rf field excitation. Having convinced ourselves of the equivalence of acoustic and magnetic resonance curves (Fig. 3), and since the former are much quicker to obtain, we check for this resonance field shift by measuring SAW-FMR curves at increasing input rf powers (SAW amplitudes). For this we decrease the rf repetition rate to 7.3 kHz, to be certain that the effective sample temperature remains constant as the input rf power is varied (see Appendix B). The temperature set point is raised to 87 K so that the effective sample temperature lies close to that of the 75 K experiments taken at 252 kHz (Figs. 3-5). Figure 7 shows SAW-FMR curves taken for input powers varying between +10 and +32 dBm. The resonance field remains invariant up to +18 dBm, at which point it starts to downshift, as expected from the above-described nonlinearities. Note that such nonlinear acoustic behavior had already been observed [5,39], but the time-domain nonlinear behavior of the magnetic dynamics had not been simultaneously probed.

IV. MODEL AND DISCUSSION

We now discuss the origins of these nonlinearities. In a first approach we describe analytically the system as a forced parametric oscillator [12,36]. We then compare it to a full numerical solution of the Landau-Lifshitz-Gilbert equation in the presence of SAW. In both cases we use the free-energy PHYSICAL REVIEW B 101, 144425 (2020)



FIG. 7. SAW-FMR vs input rf power, repetition rate 7.3 kHz. The temperature set point is raised to 87 K so that the effective sample temperature lies close to that of the 75 K experiments taken at 252 kHz (Figs. 3-5).

form for (Ga,Mn)As [30] and the standard magnetoelastic energy of a cubic system as given in Appendix A.

The LLG equation is first linearized with respect to the magnetization oscillating components ($\delta\theta$, $\delta\phi$), thus ignoring intrinsic magnetic nonlinearities but keeping those arising from the SAW driving. This leads to a linear parametric equations system [Eqs. (1) and (2)],

$$\begin{split} \delta\theta + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_1 \epsilon_{XX}\right)\delta\theta + \delta\theta \left(\Omega_0^2 + \Omega_1^2 \epsilon_{XX}\right) + C_\theta \dot{\epsilon}_{XX}\delta\phi \\ = F_{1\theta} \omega_{\text{saw}}^{-1} \dot{\epsilon}_{XX}, \end{split} \tag{1}$$

$$\ddot{\delta\phi} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_1\epsilon_{XX}\right)\dot{\delta\phi} + \delta\phi\left(\Omega_0^2 + \Omega_1^2\epsilon_{XX}\right) + C_{\phi}\dot{\epsilon}_{XX}\delta\theta$$
$$= F_{1\phi}\epsilon_{XX} + F_{2\phi}\epsilon_{XX}^2, \qquad (2)$$

where Γ_0 and Ω_0 are the damping and angular frequency of the free $(\delta\theta, \delta\phi)$ oscillators, respectively. For the sake of clarity only $\epsilon_{XX} = \epsilon_{XX0} \sin (\omega_{saw} t - k_{saw} X)$ is kept here. Its contribution is anyway found to be dominant. The linear regime results from the driving forces linear in ϵ_{XX} ($F_{1\theta}$ and $F_{1\phi}$ terms). Nonlinearities arise from the products $\epsilon_{XX}\delta\theta$, $\epsilon_{XX}\delta\phi$ in the parametric damping (Γ_1), frequency (Ω_1), and coupling (C_{θ}, C_{ϕ}) terms and from the $F_{2\phi} \epsilon_{XX}^2$ driving term. These nonlinear terms depend on B_1 and B_2 magnetoelastic constants, and on the static magnetization position (see Appendix A). In a perturbative approach the solutions are obtained as the sum of two terms, oscillating at $f_{saw} = \omega_{saw}/2\pi$ and $2f_{saw}$ and a SAW-dependent offset (constant term), as obtained experimentally (Figs. 3, 5, and 6). The $\delta\theta$ amplitudes at f_{saw} and $2f_{saw}$ are given by Eqs. (3) and (4) (the other amplitudes can be found in Appendix A),

$$\delta\theta_{f_{\text{saw}}}(B, t, X) = \epsilon_{\text{XX0}} \frac{|F_{1\theta}|}{\sqrt{(\Omega_0^2 - \omega_{\text{saw}}^2)^2 + 4\Gamma_0^2 \omega_{\text{saw}}^2}} \sin [\omega_{\text{saw}} t - k_{\text{saw}} X + \psi_1(B)], \tag{3}$$

$$\delta\theta_{2f_{\text{saw}}}(B,t,X) = \epsilon_{\text{XX0}}^2 \frac{\left|\Omega_1^2 F_{1\theta} + C_\theta \omega_{\text{saw}} F_{1\phi}\right|}{2\sqrt{\left(\Omega_0^2 - \omega_{\text{saw}}^2\right)^2 + 4\Gamma_0^2 \omega_{\text{saw}}^2} \sqrt{\left(\Omega_0^2 - 4\omega_{\text{saw}}^2\right)^2 + 16\Gamma_0^2 \omega_{\text{saw}}^2}} \sin\left[2\omega_{\text{saw}}t - 2k_{\text{saw}}X + \psi_2(B)\right], \quad (4)$$

where $\psi_{(1,2)}(B)$ are the phase shifts with respect to the SAW. The two important contributions to $\delta \theta_{2f_{saw}}$ are the parametric frequency (Ω_1) and coupling (C_{θ}) terms that are found to have similar weights.

A linearized form of LLG with parametric coupling is thus enough to generate frequency doubling (both in time and in space) without invoking magnetic nonlinear interactions, as already highlighted in Ref. [12]. Since the driving forces $F_{1\theta}$ and $F_{1\phi}$ are proportional to $B_2 \sin 2\phi_0$, both $\delta\theta_{f_{saw}}$ and $\delta\theta_{2f_{saw}}$ amplitudes cancel out for the magnetization parallel or perpendicular to \mathbf{k}_{saw} ($\phi_0 = 0$ or $\frac{\pi}{2}$). The f_{saw} term resonates when $\Omega_0(B) = \omega_{\text{saw}}$. One moreover sees that it is the B_2 magnetoelastic component that drives the precession. The $2f_{\rm saw}$ term resonates at fields such that $\Omega_0(B) = \omega_{\rm saw}$ and $2\omega_{saw}$. In our case, these two resonance fields are always close enough for the two resonances to merge into a broad one (the damping will of course encourage this as well). These resonances are well observed experimentally, at either T = 42or 75 K (Fig. 3). What ensures efficient concomitant f and 2fexcitation is the coexistence of their resonance conditions for close enough fields. This is made possible by a $\Omega_0(B)$ curve exhibiting a sufficiently steep slope. As appears in Figs. 3(g)and 3(h), in our system this happens close to saturation indeed (T = 42 and 75 K), or far from it (unlike the case of Ref. [18]), at very low field in the case of competing uniaxial and biaxial anisotropies (T = 75 K only).

We now discuss the evolution of the precession amplitude with the drive field. In the perturbative approach, the amplitude of the f_{saw} (2 f_{saw}) term is expected to be linear (quadratic) with SAW amplitude, without any thresholding effect for the appearance of $2f_{saw}$ [Eqs. (3) and (4)]. This is indeed what we observe, up to a certain SAW amplitude (corresponding to $A_{\text{GaAs}} \approx 7 \,\mu\text{rad}$ in Fig. 5). At the maximum SAW amplitude (plateau of the acoustic pulse, $\Delta \tau = 3.52 \ \mu s$), the amplitude of $2 f_{saw}$ still follows a smooth quadratic evolution while the evolution of the f_{saw} term tails off, a clear indication of sublinear magnetic susceptibility, which requires genuine nonlinear interaction terms in the LLG equation. The sublinear evolution of the f_{saw} amplitude cannot be rendered within a perturbation approach. It can, however, easily be reproduced when doing a full numerical resolution of the magnetoacoustic dynamics as shown in Fig. 5(c). Comparing the two approaches highlights that, contrary to what is commonly accepted, a linearized description of the dynamics ceases to be valid even for quite small precession amplitudes, e.g., a few mrad ($\approx 0.1^{\circ}$) for $\delta\theta$.

The $\delta\theta$ and $\delta\phi$ precession amplitudes at $f_{\rm saw}$ and $2f_{\rm saw}$ were calculated as a function of the applied magnetic field, using either the analytical solutions from the parametric oscillator model or the full LLG numerical solutions [Figs. 3(e) and 3(f)]. $\delta\theta$ and $\delta\phi$ differ in amplitude but have a similar field dependence, therefore we show only the $\delta\theta$ curves. The experimental results showing one broad field resonance at 42 K and two resonances at 75 K are well reproduced using the parametric oscillator model. It is worth noting that the calculated $\delta\theta$ amplitudes are reasonably consistent with the experimental Kerr signal $\mathcal{K}\delta\theta$ since the Kerr coefficient \mathcal{K} is of the order of 5–10 mrad in (Ga,Mn)As [35]. These $\delta\theta$ amplitudes are obtained using a SAW strain amplitude $\epsilon_{XX0} =$ 2×10^{-5} , fully consistent with the experimental determination of the SAW strain for similar rf powers [40]. However, the perturbative approach overestimates the precession amplitudes, all the more as the SAW amplitude increases, as seen in Fig. 5(c).

The $\delta\theta$ amplitudes obtained using the full LLG equations are very close to the ones from the parametric oscillator model at 75 K [Fig. 3(f)]. At 42 K [Fig. 3(e)] they differ in two ways: (i) The peak of the f_{saw} component slightly shifts to a lower field, and (ii) a dip appears in the $2f_{saw}$ amplitude. These changes can be traced to the contribution of quadratic terms $\delta\theta^2$, $\delta\phi^2$, and $\delta\theta\delta\phi$. For a given SAW amplitude the importance of these intrinsic nonlinearities depends on temperature via the magnetization, and the cubic and uniaxial in-plane magnetic anisotropy constants.

We conclude that, while the parametric oscillator model, including only SAW-induced nonlinearities, accounts for the time and space frequency doubling of the magnetization dynamics, the full LLG model, including also magnetic nonlinear terms, is necessary to capture the dependence of magnetization dynamics on the SAW amplitude and the shift of the resonance.

V. CONCLUSION

Clear frequency and wave-vector doubling have been observed under surface-acoustic-wave-driven magnetization precession. Several other features of nonlinear magnetic dynamics have been evidenced, such as the downshift of the resonance field and the quadratic evolution of the doublefrequency term. This approach has the advantage of not requiring any power threshold for the appearance of extra frequencies, contrary to parametric pumping which relies on Suhl instabilities. The efficient cogeneration of both f_{saw} and $2f_{saw}$ terms mainly depends on the shape of the $f_{prec}(B)$ curve and the proximity of f and 2f resonance fields. While the demonstration of this effect was made particularly easy in (Ga,Mn)As with its temperature-variable f_{prec} curve and large magneto-optical coefficients, it should be possible to obtain similar results in room-temperature ferromagnets. Numerous applications can be imagined for this effect, such as the implementation of SAWs in neuromorphic computing [41], for which nonlinearities are a prerequisite, or the design of nonreciprocal magnonic crystals.

ACKNOWLEDGMENTS

We acknowledge financial support from the French Ministry of Foreign Affairs through the project PHC Utique 16G1303. We are grateful to H. J. von Bardeleben (INSP) for providing the cavity FMR data, and to M. Bernard, M. Vabre, F. Breton, and S. Majrab (INSP) for technical assistance.

APPENDIX A: PARAMETRIC OSCILLATOR

In order to obtain the parametric oscillator equations, we start from the Landau-Lifschitz-Gilbert (LLG) in the linearized form for a system with magnetization M in a macrospin approach (exchange neglected [33]),

$$\dot{\delta \theta} + \alpha \delta \phi + (\omega_{\phi\phi} + \omega_{\phi\phi}^{\mathrm{saw}}) \delta \phi + \omega_{\phi\phi}^{\mathrm{saw}} \delta \theta + \omega_{\phi}^{\mathrm{saw}} = 0,$$

 $\dot{\delta \phi} - \alpha \dot{\delta \theta} - (\omega_{\theta\theta} + \omega_{\theta\theta}^{\mathrm{saw}}) \delta \theta - \omega_{\theta\phi}^{\mathrm{saw}} \delta \phi - \omega_{\phi}^{\mathrm{saw}} = 0,$

where $\delta\theta$ and $\delta\phi$ are the small deviations of the magnetization unit vector from the equilibrium position given by the polar angle $\theta_0 = \pi/2$ and the azimuthal angle ϕ_0 and the dot denotes the time derivative. α is the Gilbert damping. We define $\omega_{ij} = \gamma \frac{\partial^2 F}{\partial i \partial j}$, where (i, j) refer to the θ and ϕ variables and $MF = E_m$ is the magnetic energy including the Zeeman energy, the shape magnetic anisotropy energy, and the magnetocrystalline anisotropy energy, which contains the magnetoelastic part arising from epitaxial strain [30].

$$E_m = -K_{2\perp}\cos^2\theta - K_{2\parallel}\sin^2\theta\sin^2\left(\phi - \frac{\pi}{4}\right)$$
$$-\frac{K_{4\parallel}}{8}(3 + \cos 4\phi)\sin^4\theta - \frac{K_{4\perp}}{2}\cos^4\theta$$
$$-\frac{\mu_0}{2}M^2\sin^2\theta.$$

Similarly we define $\omega_{ij}^{\text{saw}} = \gamma \frac{\partial^2 F_{\text{mel}}^{\text{saw}}}{\partial i \partial j}$, $\omega_i^{\text{saw}} = \gamma \frac{\partial F_{\text{mel}}^{\text{saw}}}{\partial i}$, where $MF_{\text{mel}}^{\text{saw}}$ is the part of the magnetoelastic energy related to the dynamic strain imposed by the SAW. Since the epitaxial tetragonal strain is very weak, we use the usual expression for cubic symmetry for F_{mel} ,

$$F_{\rm mel} = \frac{B_1}{M} \left(m_x^2 \epsilon_{xx} + m_y^2 \epsilon_{yy} + m_z^2 \epsilon_{zz} \right) + 2 \frac{B_2}{M} (m_x m_y \epsilon_{xy} + m_x m_z \epsilon_{xz} + m_y m_z \epsilon_{yz}), \quad (A1)$$

where (x, y, z) are the coordinates related to the $\langle 100 \rangle$ cubic axes. Parameters B_1 and B_2 are obtained from the magnetic anisotropy constants in Eq. (A1) and the static epitaxial strain $B_1 = -\frac{K_{2\perp} - K_{2\parallel}/2}{\epsilon_{z2}^0 - \frac{\epsilon_{0x}^0 + \epsilon_{0y}^0}{2}}, B_2 = \frac{K_{2\parallel}}{2\epsilon_{xy}^0}$, where the ϵ_{ii}^0 are the static epitaxial strain components and $\epsilon_{xy}^0 = 10^{-4}$ is the effective shear

strain necessary to account for the in-plane unixial magnetic anisotropy $(K_{2\parallel})$ [42,43].

From the equations above we obtain the system of two coupled parametric oscillators where we only keep terms that will give oscillations of the magnetization vector at f_{saw} and $2f_{saw}$ in the forced regime,

$$\ddot{\delta\theta} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_{1\epsilon}\right)\dot{\delta\theta} + \delta\theta\left(\Omega_0^2 + \Omega_{1\epsilon}^2 + \Omega_{1\epsilon\theta}^2\right) + C_{1\epsilon\theta}\delta\phi$$
$$= F_{1\epsilon\theta} + F_{2\epsilon\theta}, \tag{A2}$$

$$\ddot{\delta\phi} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_{1\epsilon}\right)\dot{\delta\phi} + \delta\phi\left(\Omega_0^2 + \Omega_{1\epsilon}^2 + \Omega_{1\epsilon\phi}^2\right) + C_{1\epsilon\phi}\delta\theta$$
$$= F_{1\epsilon\phi} + F_{2\epsilon\phi}, \tag{A3}$$

where $\Gamma_0 = \frac{\alpha(\omega_{\theta\theta} + \omega_{\phi\phi})}{2(1+\alpha^2)}$ and $\Omega_0^2 = \frac{\omega_{\theta\theta}\omega_{\phi\phi}}{(1+\alpha^2)}$ are the damping and angular eigenfrequency of the free oscillators, respectively. The damping (Γ), frequency (Ω), coupling parameter (C), and driving force (F) with index ϵ depend on the SAW strain tensor components. They are expressed as

$$\Gamma_{1\epsilon} = \frac{\alpha}{2} \left(\omega_{\theta\theta}^{\text{saw}} + \omega_{\phi\phi}^{\text{saw}} \right), \tag{A4}$$

$$\Omega_{1\epsilon}^2 = \omega_{\phi\phi}\omega_{\theta\theta}^{\rm saw} + \omega_{\theta\theta}\omega_{\phi\phi}^{\rm saw}, \qquad (A5)$$

$$\Omega_{1\epsilon\theta}^2 = \alpha \dot{\omega}_{\theta\theta}^{\rm saw} + \dot{\omega}_{\theta\phi}^{\rm saw}, \quad \Omega_{1\epsilon\phi}^2 = \alpha \dot{\omega}_{\phi\phi}^{\rm saw} - \dot{\omega}_{\theta\phi}^{\rm saw}, \quad (A6)$$

$$C_{1\epsilon\theta} = \dot{\omega}_{\phi\phi}^{\rm saw} + \alpha \dot{\omega}_{\theta\phi}^{\rm saw}, \quad C_{1\epsilon\phi} = -\dot{\omega}_{\theta\theta}^{\rm saw} + \alpha \dot{\omega}_{\theta\phi}^{\rm saw}, \quad (A7)$$

$$F_{1\epsilon\theta} = -\left(\alpha\dot{\omega}_{\theta}^{\mathrm{saw}} + \dot{\omega}_{\phi}^{\mathrm{saw}} + \omega_{\theta}^{\mathrm{saw}}\omega_{\phi\phi}\right),\tag{A8}$$

$$F_{2\epsilon\theta} = \omega_{\theta\phi}^{\rm saw} \omega_{\phi}^{\rm saw} - \omega_{\theta}^{\rm saw} \omega_{\phi\phi}^{\rm saw}, \tag{A9}$$

$$F_{1\epsilon\phi} = \dot{\omega}_{\theta}^{\mathrm{saw}} - \alpha \dot{\omega}_{\phi}^{\mathrm{saw}} - \omega_{\phi}^{\mathrm{saw}} \omega_{\theta\theta}, \qquad (A10)$$

$$F_{2\epsilon\phi} = \omega_{\theta\phi}^{\rm saw} \omega_{\theta}^{\rm saw} - \omega_{\phi}^{\rm saw} \omega_{\theta\theta}^{\rm saw}.$$
 (A11)

Note that since $\alpha \ll 1$ in (Ga,Mn)As, the approximation $(1 + \alpha^2) \approx 1$ has been used in the calculations.

A SAW propagating along [-110] has strain components ϵ_{XX} , ϵ_{ZZ} , and ϵ_{XZ} . Since the latter two are found to give a negligible contribution to the magnetization dynamics in our sample, we will neglect them hereafter. The equations of the coupled parametric oscillators then read

$$\begin{split} \delta\hat{\theta} + 2\left(\Gamma_0 + \Gamma_1 \epsilon_{XX}\right)\delta\hat{\theta} + \delta\theta \left(\Omega_0^2 + \Omega_1^2 \epsilon_{XX}\right) + C_\theta \dot{\epsilon}_{XX}\delta\phi \\ = F_{1\theta} \omega_{\text{saw}}^{-1} \dot{\epsilon}_{XX}, \end{split} \tag{A12}$$

$$\ddot{\delta\phi} + 2(\Gamma_0 + \Gamma_1 \epsilon_{XX})\dot{\delta\phi} + \delta\phi (\Omega_0^2 + \Omega_1^2 \epsilon_{XX}) + C_{\phi} \dot{\epsilon}_{XX} \delta\theta$$
$$= F_{1\phi} \epsilon_{XX} + F_{2\phi} \epsilon_{XX}^2, \qquad (A13)$$

where ϵ_{XX} stands for $\epsilon_{XX0} \sin(\omega_{saw}t - k_{saw}X)$. The strain amplitude ϵ_{XX0} is taken at Z = 0 since the thickness of the magnetic layer (45 nm) is much smaller than the SAW penetration depth (a few μ m). In the damping, frequency, coupling parameters, and driving forces, we have kept only the leading terms in powers of α . Note that the coupling terms C_{θ}, C_{ϕ} contribute only to the amplitudes at $2f_{saw}$. The parameters read

$$\Gamma_1 = -\frac{\alpha}{2}(\omega_1 + 3\omega_2 \cos 2\phi_0), \qquad (A14)$$

$$\Omega_1^2 = -\omega_2 \cos 2\phi_0 (2\omega_{\theta\theta} + \omega_{\phi\phi}) - \omega_1 \omega_{\phi\phi}, \quad (A15)$$

$$C_{\theta} = -2\omega_2 \cos 2\phi_0, \qquad (A16)$$

$$C_{\phi} = (\omega_1 + \omega_2 \cos 2\phi_0), \qquad (A17)$$

$$F_{1\theta} = \omega_2 \omega_{\text{saw}} \sin 2\phi_0, \qquad (A18)$$

$$F_{1\phi} = \omega_2 \omega_{\theta\theta} \sin 2\phi_0, \tag{A19}$$

$$F_{2\phi} = -\omega_2(\omega_1 + \omega_2 \cos 2\phi_0) \sin 2\phi_0, \qquad (A20)$$

where $\omega_1 = \gamma B_1/M$, $\omega_2 = \gamma B_2/M$, with γ the gyromagnetic factor, and $\omega_{\theta\theta}$, $\omega_{\phi\phi}$ depend on ϕ_0 .

Let us note that the driving forces are proportional to $\sin(2\phi_0)$ and hence vanish when the magnetization is aligned with the [-110] direction (at zero field) or perpendicular to it (at fields larger than H_a).

Solving perturbatively Eqs. (A12) and (A13), the $\delta\theta$ and $\delta\phi$ amplitudes at frequencies f_{saw} and $2f_{saw}$ are

$$\delta\theta_{f_{\text{saw}}} = \epsilon_{\text{XX0}} \frac{|F_{1\theta}|}{\sqrt{\left(\Omega_0^2 - \omega_{\text{saw}}^2\right)^2 + 4\Gamma_0^2 \omega_{\text{saw}}^2}},\tag{A21}$$

$$\delta\phi_{f_{\text{saw}}} = \epsilon_{\text{XX0}} \frac{|F_{1\phi}|}{\sqrt{(\Omega_0^2 - \omega_{\text{saw}}^2)^2 + 4\Gamma_0^2 \omega_{\text{saw}}^2}},$$
(A22)

$$\delta\theta_{2f_{\text{saw}}} = \epsilon_{\text{XX0}}^2 \frac{\left|\Omega_1^2 F_{1\theta} + C_\theta \omega_{\text{saw}} F_{1\phi}\right|}{2\sqrt{(\Omega_0^2 - \omega_{\text{saw}}^2)^2 + 4\Gamma_0^2 \omega_{\text{saw}}^2} \sqrt{(\Omega_0^2 - 4\omega_{\text{saw}}^2)^2 + 16\Gamma_0^2 \omega_{\text{saw}}^2}},\tag{A23}$$

$$\delta\phi_{2f_{\text{saw}}} = \epsilon_{\text{XX0}}^2 \frac{|\Omega_1^2 F_{1\phi} - C_{\phi}\omega_{\text{saw}}F_{1\theta} - F_{2\phi}(\Omega_0^2 - \omega_{\text{saw}}^2)|}{2\sqrt{(\Omega_0^2 - \omega_{\text{saw}}^2)^2 + 4\Gamma_0^2\omega_{\text{saw}}^2}\sqrt{(\Omega_0^2 - 4\omega_{\text{saw}}^2)^2 + 16\Gamma_0^2\omega_{\text{saw}}^2}}.$$
(A24)

For $\delta\theta_{2f_{saw}}$, it is found numerically that the parametric frequency (Ω_1) and coupling (C_{θ}) terms give equal contributions. For $\delta\phi_{2f_{saw}}$ the dominant contribution is the parametric frequency term $\Omega_1^2 F_{1\phi}$. Similarly to the driving forces, the precession amplitudes are proportional to $\omega_2 \sin 2\phi_0$.

A perturbation at ω_{saw} not only provides a signal at $\omega_{saw} + \omega_{saw} = 2\omega_{saw}$ but also at $(\omega_{saw} - \omega_{saw} = 0)$, i.e., frequencyindependent offsets $\delta\theta_0$ and $\delta\phi_0$. They are both proportional to the square of the SAW amplitude and have a significant amplitude only close to $\Omega_0 = \omega_{saw}$. $\delta\theta_0$ is proportional to the damping α , hence much smaller than $\delta\phi_0$, as observed experimentally (Fig. 6). It is worth noting that these constant terms are missed when working with complex amplitudes instead of real ones as in Ref. [12], as well as the factor 2 in the amplitudes $\delta\theta_{2f_{saw}}$ and $\delta\phi_{2f_{saw}}$ [Eqs. (A23) and (A24)].

When keeping all the SAW strain components, the driving forces in Eqs. (A2) and (A3) become

$$F_{1\epsilon\theta} = \omega_2(\sin(2\phi_0)\dot{\epsilon}_{XX} + 2\alpha\cos(\phi_0)\dot{\epsilon}_{XZ} + 2\cos(\phi_0)\omega_{\phi\phi}(\phi_0)\epsilon_{XZ}), \qquad (A25)$$

$$F_{2\epsilon\theta} = -4\omega_2^2 \cos(\phi_0)^3 \epsilon_{XX} \epsilon_{XZ}, \qquad (A26)$$

$$F_{1\epsilon\phi} = \omega_2(\alpha \sin(2\phi_0)\dot{\epsilon}_{XX} - 2\cos(\phi_0)\dot{\epsilon}_{XZ}\omega_{\theta\theta}(\phi_0) \times \sin(2\phi_0)\epsilon_{XX}), \qquad (A27)$$

$$F_{2\epsilon\phi} = -\omega_2 \sin(2\phi_0) \big((\omega_1(\epsilon_{XX} - 2\epsilon_{ZZ}) + \omega_2 \cos(2\phi_0)\epsilon_{XX})\epsilon_{XX} + 2\omega_2\epsilon_{XZ}^2 \big).$$
(A28)

When $\sin 2\phi_0$ becomes zero (magnetization aligned along \mathbf{k}_{saw} or along a saturating field parallel to the [110] direction), the driving forces arise solely from the (weak) ϵ_{XZ} strain component owing to the $\cos(\phi_0)$ factor, which is nonzero only if the magnetization is aligned with \mathbf{k}_{saw} ($\phi_0 = 0$). The ϵ_{ZZ} strain component is seen to appear via the B_1 magnetoelastic coefficient, and only in the double-frequency term. ϵ_{ZZ} at the surface is smaller than ϵ_{XX} : From the solutions of the Rayleigh wave propagation equations we obtain $\epsilon_{ZZ0} = -0.34\epsilon_{XX0}$.

The parameters used for the numerical calculations are as follows. For the T = 42 K data, $K_{2\perp} = -5.9$ kJ m⁻³,

 $K_{2\parallel} = 0.4 \text{ kJ m}^{-3}, K_{4\parallel} = K_{4\perp} = 90 \text{ J m}^{-3}, M = 39 \text{ kA m}^{-1}, \frac{B_1}{M} = 40.7 \text{ T}, \frac{B_2}{M} = 53 \text{ T}.$ For the T = 75 K data, $K_{2\perp} = -3.65 \text{ kJ m}^{-3}, K_{2\parallel} = 45 \text{ J m}^{-3}, K_{4\parallel} = K_{4\perp} = 43 \text{ J m}^{-3}, M = 20 \text{ kA m}^{-1}, \frac{B_1}{M} = 47.7 \text{ T}, \frac{B_2}{M} = 11.2 \text{ T}.$ For all simulations, the field was misaligned by 0.5° from the [110] direction to render more realistic resonance curves, $\alpha = 0.05$ and $\epsilon_{XX0} = 2.5 \times 10^{-5}$.

APPENDIX B: rf EXCITATION-INDUCED TEMPERATURE RISE

The combination of a high instantaneous rf power (+28)dBm and above), 10% duty cycle, and a poor impedance match between the IDTs and the rf source results in a sizable stationary temperature rise. Since the magnetic parameters, in particular, the resonance frequency, resonance fields, and resulting precession amplitude, are very sensitive to temperature in (Ga,Mn)As, one must take this into account when studying the effect of SAW amplitude. With this in mind, two strategies were therefore adopted in this work: (i) working at a high repetition rate (252 kHz) and constant rf input power, and exploiting the varying SAW amplitude during the rise time of the acoustic burst by playing on the delay between the rf burst and laser pulses (Fig. 5), and (ii) working at a much lower repetition rate (7.3 kHz instead of 252 kHz) and varying the rf input power (Fig. 7). This was implemented when only electrical data were needed, since the signal-to-noise ratio of the optical time-domain data becomes prohibitively bad for laser repetition rates below 100 kHz.

The stationary temperature rise induced by the pulsed rf excitation was nevertheless estimated as follows, using the Rayleigh-wave velocity as a sensitive probe of the relative temperature changes. Acoustic velocity variations dV/V were measured electrically following the procedure described in Refs. [5,26], after two different modifications of the effective sample temperature: (i) Working at a constant 2.5 kHz laser repetition rate and $P_{\rm rf} = +21$ dBm, the cryostat temperature set point was changed abruptly from $T_0 = 77$ K to $T_0 + \delta T$. This resulted in a gradual change of the acoustic phase, and the final dV/V was measured once the stationary regime was reached. δT was varied between 1 and 20 K. (ii) Working at a constant $T_0 = 77$ K, and abruptly changing the laser

repetition rate from 2.5 to 252 kHz. This was done for $P_{\rm rf}$ ranging from +5 to +31 dBm. We then compared the measured phase (velocity) changes when varying either δT or P_{rf} and obtained an experimental $\delta T(P_{\rm rf})$ abacus. The stationary temperature rise in the experimental conditions of Figs. 3–5 was thus estimated to around 12 ± 2 K. It is

- T. Gerrits, P. Krivosik, M. L. Schneider, C. E. Patton, and T. J. Silva, Phys. Rev. Lett. 98, 207602 (2007).
- [2] V. E. Demidov, M. P. Kostylev, K. Rott, P. Krzysteczko, G. Reiss, and S. O. Demokritov, Phys. Rev. B 83, 054408 (2011).
- [3] A. G. Gurevich and G. A. Melkov, *Magnetization Oscillations and Waves* (CRC Press, New York, 1996).
- [4] Y. Shiota, T. Nozaki, F. Bonell, S. Murakami, T. Shinjo, and Y. Suzuki, Nat. Mater. 11, 39 (2012).
- [5] L. Thevenard, I. S. Camara, S. Majrab, M. Bernard, P. Rovillain, A. Lemaître, C. Gourdon, and J.-Y. Duquesne, Phys. Rev. B 93, 134430 (2016).
- [6] A. N. Slavin and V. Tiberkevich, IEEE Trans. Magn. 45, 1875 (2009).
- [7] J. Torrejon, M. Riou, F. A. Araujo, S. Tsunegi, G. Khalsa, D. Querlioz, P. Bortolotti, V. Cros, A. Fukushima, H. Kubota, S. Yuasa, M. D. Stiles, and J. Grollier, Nature (London) 547, 428 (2017).
- [8] T. Brächer and P. Pirro, J. Appl. Phys. 124, 152119 (2018).
- [9] A. A. Serga, A. V. Chumak, and B. Hillebrands, J. Phys. D: Appl. Phys. 43, 264002 (2010).
- [10] A. V. Chumak, A. A. Serga, and B. Hillebrands, Nat. Commun. 5, 4700 (2014).
- [11] Q. Wang, M. Kewenig, M. Schneider, R. Verba, B. Heinz, M. Geilen, M. Mohseni, B. Lägel, F. Ciubotaru, C. Adelmann, C. Dubs, S. D. Cotofana, T. Brächer, P. Pirro, and A. V. Chumak, arXiv:1905.12353.
- [12] C. L. Chang, A. M. Lomonosov, J. Janusonis, V. S. Vlasov, V. V. Temnov, and R. I. Tobey, Phys. Rev. B 95, 060409(R) (2017).
- [13] M. Foerster, F. Macià, N. Statuto, S. Finizio, A. Hernández-Mínguez, S. Lendínez, P. V. Santos, J. Fontcuberta, J. M. Hernández, M. Kläui, and L. Aballe, Nat. Commun. 8, 407 (2017).
- [14] P. Kuszewski, J.-Y. Duquesne, L. Becerra, A. Lemaître, S. Vincent, S. Majrab, F. Margaillan, C. Gourdon, and L. Thevenard, Phys. Rev. Appl. 10, 034036 (2018).
- [15] A. S. Salasyuk, A. V. Rudkovskaya, A. P. Danilov, B. A. Glavin, S. M. Kukhtaruk, M. Wang, A. W. Rushforth, P. A. Nekludova, S. V. Sokolov, A. A. Elistratov, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. V. Akimov, and A. V. Scherbakov, Phys. Rev. B 97, 060404(R) (2018).
- [16] M. Weiler, H. Huebl, F. S. Goerg, F. D. Czeschka, R. Gross, and S. T. B. Goennenwein, Phys. Rev. Lett. 108, 176601 (2012).
- [17] P. G. Gowtham, D. Labanowski, and S. Salahuddin, Phys. Rev. B 94, 014436 (2016).
- [18] A. Capua, C. Rettner, and S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett. 116, 047204 (2016).
- [19] C. Cheng and W. E. Bailey, Appl. Phys. Lett. 103, 242402 (2013).
- [20] P. Chowdhury, A. Jander, and P. Dhagat, IEEE Magn. Lett. 8, 3108204 (2017).

naturally intimately related to the rf burst duration and periodicity, and equivalent electrical circuit, so this value should not be taken out of the context of this experiment. It was shown to depend very weakly on the rf frequency, however, confirming that the heating is not primarily of thermoelastic origin.

- [21] H. Keshtgar, M. Zareyan, and H. G. Bauer, Solid State Commun. **198**, 30 (2014).
- [22] H. Matthews and F. R. Morgenthaler, Phys. Rev. Lett. 13, 614 (1964).
- [23] N. Tiercelin, A. Talbi, S. Giordano, A. Klimov, T. Mathurin, O. Elmazria, M. Hehn, V. Preobrazhensky, O. Bou Matar, Y. Dusch, and P. Pernod, in *Spintronics X*, edited by H. Jaffrès, H.-J. Drouhin, J.-E. Wegrowe, and M. Razeghi (SPIE, Bellingham, WA, 2017), p. 64.
- [24] I. Lisenkov, A. Jander, and P. Dhagat, Phys. Rev. B 99, 184433 (2019).
- [25] P. Delsing, A. N. Cleland, M. J. A. Schuetz, J. Knörzer, G. Giedke, J. I. Cirac, K. Srinivasan, M. Wu, K. C. Balram, C. Bäuerle, T. Meunier, C. J. B. Ford, P. V. Santos, E. Cerda-Méndez, H. Wang, H. J. Krenner, E. D. S. Nysten, M. Weiß, G. R. Nash, L. Thevenard *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. 52, 353001 (2019).
- [26] J.-Y. Duquesne, P. Rovillain, C. Hepburn, M. Eddrief, P. Atkinson, A. Anane, R. Ranchal, and M. Marangolo, Phys. Rev. Applied 12, 024042 (2019).
- [27] S. Davis, J. A. Borchers, B. B. Maranville, and S. Adenwalla, J. Appl. Phys. **117**, 063904 (2015).
- [28] K. An, A. N. Litvinenko, A. A. Fuad, V. V. Naletov, L. Vila, U. Ebels, G. de Loubens, H. Hurdequint, N. Beaulieu, J. B. Youssef, N. Vukadinovic, G. E. W. Bauer, A. N. Slavin, V. S. Tiberkevich, and O. Klein, Phys. Rev. B 101, 060407 (2020).
- [29] A. Lemaître, A. Miard, L. Travers, O. Mauguin, L. Largeau, C. Gourdon, V. Jeudy, M. Tran, and J.-M. George, Appl. Phys. Lett. 93, 21123 (2008).
- [30] L. Thevenard, J.-Y. Duquesne, E. Peronne, H. J. von Bardeleben, H. Jaffrès, S. Ruttala, J.-M. George, A. Lemaître, and C. Gourdon, Phys. Rev. B 87, 144402 (2013).
- [31] P. Kuszewski, I. S. Camara, N. Biarrotte, L. Becerra, J. von Bardeleben, W. Savero Torres, A. Lemaître, C. Gourdon, J.-Y. Duquesne, and L. Thevenard, J. Phys.: Condens. Matter 30, 244003 (2018).
- [32] F. J. R. Schülein, E. Zallo, P. Atkinson, O. G. Schmidt, R. Trotta, A. Rastelli, A. Wixforth, and H. J. Krenner, Nat. Nanotechnol. 10, 512 (2015).
- [33] Spin waves excited at f_{saw} and k_{saw} have almost zero group velocity, hence there are no interferences of spin waves excited at different locations.
- [34] P. Chowdhury, P. Dhagat, and A. Jander, IEEE Trans. Magn. 51, 1 (2015).
- [35] S. Shihab, L. Thevenard, A. Lemaître, and C. Gourdon, Phys. Rev. B 95, 144411 (2017).
- [36] H. G. Bauer, P. Majchrak, T. Kachel, C. H. Back, and G. Woltersdorf, Nat. Commun. 6, 8274 (2015).
- [37] D. J. Seagle, S. H. Charap, and J. O. Artman, J. Appl. Phys. 57, 3706 (1985).
- [38] W. Chen, G. De Loubens, J.-M. L. Beaujour, J. Z. Sun, and A. D. Kent, Appl. Phys. Lett. 95, 172513 (2009).
- [39] R. Inaba and N. Mikoshiba, Appl. Phys. Lett. 41, 25 (1982).
- [40] L. Largeau, I. S. Camara, J.-Y. Duquesne, C. Gourdon, P. Rovillain, L. Thevenard, and B. Croset, J. Appl. Crystallogr. 49, 2073 (2016).
- [41] Y. Katayama, T. Yamane, D. Nakano, R. Nakane, and G. Tanaka, IEEE Trans. Nanotechnol. 15, 762 (2016).
- [42] J. Zemen, J. Kučera, K. Olejník, and T. Jungwirth, Phys. Rev. B 80, 155203 (2009).
- [43] M. Kraimia, L. Largeau, K. Boujdaria, B. Croset, C. Mocuta, and A. Lemaître, J. Appl. Phys. 127, 093901 (2020).