

Table des matières

I	Introduction	17
1	Introduction	19
2	Présentation de (Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P)	23
2.1	Un long chemin jusqu'aux semi-conducteurs ferromagnétiques dilués	23
2.1.1	Interaction d'échange et ferromagnétisme	23
2.1.2	De EuO à (Ga,Mn)As	25
2.2	Ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As	26
2.2.1	Structure cristallographique et croissance	27
2.2.2	Origine du ferromagnétisme	28
2.2.3	Effet Zeeman géant et magnétisme	29
2.3	Propriétés magnétiques	32
2.3.1	Température de Curie	32
2.3.2	Anisotropie magnéto-cristalline	34
2.3.3	Ajustement des propriétés magnétiques	36
2.3.4	20 ans après la première synthèse de (Ga,Mn)As	41
2.4	Echantillons	43
2.4.1	Caractérisation de T_C , M_s et de l'épaisseur	43
2.4.2	Caractérisation des K_i : Résonnance ferromagnétique (FMR)	44
II	Effets magnéto-optiques et technique expérimentale	47
3	Effets magnéto-optiques	49
3.1	Tenseur diélectrique et équations de Maxwell	50
3.1.1	Equations de Maxwell	50
3.1.2	Tenseur diélectrique	51
3.1.3	Rotation et ellipticité	52
3.2	Effet Faraday	52
3.3	Effet Kerr polaire	54
3.4	Effet Voigt	55
3.5	Rotation dynamique	57
4	Technique expérimentale	59
4.1	Dispositif experimental	59
4.1.1	Faisceau pompe	61
4.1.2	Faisceau sonde	62
4.1.3	Imagerie magnéto-optique	62
4.2	Calibration de la rotation magnéto-optique	64

4.3	Signaux typiques	66
4.3.1	Signal dynamique de type pompe sonde	66
4.3.2	Signaux magnéto-optiques statiques	66
4.4	Mécanisme de retournement de l'aimantation	68
5	Caractérisation des élévations de température	71
5.1	Détermination de la température effective	72
5.1.1	Effets de la température	73
5.1.2	Correspondance fluence-température	75
5.2	Effets thermiques non localisés	76
5.3	Élévation stationnaire de température	79
III	Dynamique d'aimantation	85
6	Etat de l'art et phénoménologie de la dynamique d'aimantation	87
6.1	Effets de polarisation des faisceaux.	89
6.1.1	Effet de la polarisation de la pompe	89
6.1.2	Effet de la polarisation de la sonde	91
6.2	Effet de la température	92
6.3	Effet de la fluence de la pompe	95
6.4	Effet du champ magnétique	96
6.5	Effet de la longueur d'onde	98
7	Comparaison FMR-pompe sonde	101
7.1	Modélisation de la dynamique de l'aimantation	101
7.1.1	Variation du module de l'aimantation : LLG ou LL-Bloch?	102
7.1.2	Equation fondamentale de la précession	103
7.2	Théorie : fréquence de précession et amortissement	104
7.2.1	Fréquence et amortissement	104
7.2.2	Discussion sur l'amortissement FMR et pompe sonde	104
7.3	Expérience : comparaison FMR et pompe-sonde	107
7.3.1	Ajustement des courbes	108
7.3.2	Fréquences et correspondance FMR/pompe-sonde	109
7.3.3	Amortissement	112
7.4	Conclusion sur la correspondance FMR/pompe sonde	116
8	Excitation optique de la précession	119
8.1	Théorie : efficacité des couples excitateurs	121
8.1.1	Résolution analytique	121
8.2	Forme et durée de l'impulsion excitatrice	123
8.2.1	Signaux en fonction de la polarisation sonde	124
8.2.2	Simulation : excitation courte vs excitation longue	126
8.2.3	Reconstruction de la dynamique	128
8.3	Efficacité de l'excitation optique	130
8.3.1	Variation impulsienne thermique des K_i	130
8.3.2	Effets sous champ magnétique : l'influence de ϕ_0	137
8.3.3	Conditions d'observation de l'effet des porteurs polarisés en spin	142
8.3.4	Conclusion	143
8.4	Excitation optique et effets de la pompe	143

TABLE DES MATIÈRES	11
8.4.1 Fluence de la pompe	143
8.4.2 Amplitude et amortissement	147
8.4.3 Augmentation de l'amplitude des ondes de spin	147
8.5 Conclusion partie dynamique de l'aimantation	150
IV Ondes de spin	151
9 Identification des ondes de spin et conditions d'observation	153
9.1 Modes couplés surface/volume	155
9.1.1 Relation de dispersion	155
9.1.2 Hybridation des modes volume-surface	156
9.1.3 Anisotropie de surface et condition aux limites	158
9.1.4 Profil d'aimantation : quantification des vecteurs d'ondes	159
9.1.5 Conséquences de l'anisotropie de surface	162
9.2 Identification des modes	164
9.2.1 Procédure de gravure chimique	164
9.2.2 Identification du mode uniforme	165
9.2.3 Comparaison des D_{ex} dans la littérature : identification du second mode	167
9.2.4 Comparaison avec la FMR	167
9.2.5 Comparaison avec les domaines magnétiques	169
9.2.6 Conclusion sur l'identification des modes	170
9.3 Conditions d'observation des ondes de spins : modèle de couche finie	170
9.3.1 Matrice de passage	171
9.3.2 Effet magnéto-optique	172
9.3.3 Amplitudes des ondes de spin	174
9.3.4 Conclusion sur le modèle de couche finie	176
10 Détermination de la constante de raideur de spin dans (Ga,Mn)(As,P)	179
10.1 Etat de l'art	179
10.1.1 Résultats expérimentaux dans la littérature	179
10.1.2 Modélisation	181
10.2 Méthode pour mesurer D_{ex}	182
10.3 Indépendance de l'échange avec [P]	183
A Conditions aux limites asymétriques	189
B Liste des échantillons et caractéristiques	191

Conventions et unités :

Le système d'unité utilisé dans cette thèse est le SI. L'équation de base est $\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M})$ où $\vec{H}$ et $\vec{M}$ sont exprimés en A m⁻¹ et représentent le vecteur champ magnétique et l'aimantation respectivement¹.

Acronyme	
TRMOKE	(Expérience d')Effet Kerr résolu en temps
FMR	(Expérience de) Résonance FerroMagnétique
XMCD	(Expérience de) Dichroïsme Magnétique Circulaire par rayons X
SQUID	Superconductive Quantum Interferometer Device
OSTT	Couple de transfert de spin optique ([125])
OSOT	Couple spin-orbite optique ([182])
LLG	Equation de Landau Lifshitz Gilbert
LLB	Equation de Landau Lifshitz Bloch
LL	Equation de Landau Lifshitz
Electromagnétisme et magnéto-optique	
$\vec{E}$	Vecteur champ électrique de la lumière
$\vec{B}$	Induction magnétique
$\vec{H}$	Champ magnétique
$\vec{D}$	Vecteur déplacement électrique
$\vec{J}$	Courant électrique
χ_{el}	Tenseur de polarisabilité électronique
σ	Tenseur de conductivité électronique
λ	Longueur d'onde
$Q = Q_r + iQ_i$	Paramètre de Voigt
B_1, B_2	Constante magnéto-optique décrivant les effets en M_s^2
$n = n_r + in_i$	Indice complexe de réfraction
α_{abs}	Longueur d'absorption ($\frac{4\pi n_i}{\lambda}$)
ψ_K	Ellipticité
$\delta\beta_{K,V,F}$	Rotation Kerr, Voigt et Faraday
χ	Rapport des champs électriques réfléchis ($\frac{E_{ry}}{E_{rx}}$)
$\vec{E}_{r,t}$	Champ électromagnétique réfléchi, transmis
Δn	Différence d'indices
B_ν	Constante de Verdet
ϵ	Constante diélectrique du matériaux ($\epsilon = \sqrt{n_0}$)
ϵ_r	Tenseur diélectrique cubique
$\vec{k}$	Vecteur d'onde de la lumière
β	Angle de la polarisation de la sonde (repéré par rapport à [100])

¹Je renvoie les lecteurs vers [164] montrant les différentes conventions possibles en magnétisme

Constantes magnétiques	
M_s	Aimantation à saturation
$\vec{m}$	Aimantation réduite
$\vec{M}$	Vecteur aimantation
J_{ex}, J_{pd}, J_{sd}	Intégrale d'échange
θ_0, ϕ_0	Angles d'équilibre polaire et azimuthal de l'aimantation
θ_h, ϕ_h	Angles polaire et azimuthal du champ magnétique
F_H	Densité d'énergie Zeeman
F_a	densité d'énergie volumique d'anisotropie magnéto-cristalline
K_i	Constante d'anisotropie magnétique
H_i	Champ d'anisotropie magnétique ($H_i = \frac{K_i}{\mu_0 M_s}$)
F_{ij}	$\frac{\partial^2 F_a(\theta, \phi)}{\partial i \partial j} \bigg _{\phi_0, \theta_0}$
$\mu_0 H$	Champ magnétique
T_C	Température de Curie
Ondes de spin et dynamique	
ω	Pulsation de la précession de l'aimantation
α_{LL}	Amortissement de Landau-Lifshitz
$\alpha_{\perp}$	Amortissement transverse dans LLB ($\alpha_{\perp} = \alpha_{LL}(1 - \frac{T}{3T_C})$)
$\alpha_{\parallel}$	Amortissement longitudinal ($\alpha_{\parallel} = \alpha_{LL} \frac{2T}{3T_C}$)
α_G	Amortissement de Gilbert ($\alpha_G = \alpha_{LL}/\gamma$)
α_{eff}	Amortissement effectif
$\delta\phi(t), \delta\theta(t)$	Petites composantes dynamiques de l'aimantation
$k_{b,s}$	Vecteur d'onde de volume, surface
A_{ex}	Constante d'échange définie à partir de $A_{ex}(\nabla\vec{m})^2$
D_{ex}	Constante de raideur de spin définie par $D_{ex} = \frac{2A_{ex}}{M_s}$
F_B	Paramètre pour les profils des ondes de spin ($F_B = \frac{F_{\phi\phi}}{M_s} + k_b^2 D_{ex}$)
F_S	Paramètre pour les profils des ondes de spin ($F_B = \frac{F_{\phi\phi}}{M_s} - k_s^2 D_{ex}$)
$K_s^{\pm}$	Anisotropie de surface en $\pm \frac{L}{2}$
$\kappa^{\pm}$	$\kappa^{\pm} = \frac{2K_S}{DM_s}$
Constantes fondamentales	
c	Célérité de la lumière dans le vide
$\hbar = \frac{h}{2\pi}$	Constante de Planck
k_B	Constante de Boltzmann
μ_0	Perméabilité magnétique du vide
μ_B	Magnéton de Bohr
ϵ_0	Constante diélectrique du vide
γ	Facteur gyromagnétique

Théorie des semi-conducteurs magnétiques	
$\psi_i(\psi^*)$	Fonction d'onde électronique (conjuguée)
k_F	Vecteur d'onde de Fermi
E_F	Energie de Fermi
σ_j	Spin des porteurs
J	Moment cinétique total
L	Moment cinétique orbital
S	Spin
H_{sd}, H_{pd}	Hamiltonien d'interaction sd et pd
B_G	Paramètre de l'effet Zeeman géant ($B_G = \frac{A_F \beta M}{6g\mu_b}$)
F_c	Energie libre des porteurs
ρ_c	Densité d'états électronique
ρ_S	Densité d'états de spin
p	Densité de porteurs volumique
A_F	Interaction entre trous
Paramètres (Ga,Mn)(As,P)	
a_0	Paramètre de maille du GaAs (5.65 Å)
N_0	Densité en sites de cations de Ga ($2.2 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$)
ρ	Masse volumique du GaAs (5320 kg m^{-3})
g	Facteur de Landé
y	Concentration nominale en phosphore
x	Concentration nominale en Mn
x_{eff}	Concentration effective en Mn
L, L_S	Epaisseur nominale de la couche de (Ga,Mn)As , du substrat
n_0	Indice de réfraction de GaAs
Paramètres thermiques	
ΔT	Elevation de température
$\hat{k}$	Conductivité de thermique
C_p	Chaleur spécifique massique
D_t	Diffusivité thermique ($D_t = \frac{\hat{k}}{\rho C_p}$)
Fonctions spéciales	
B_J	Fonction de Brillouin
L_α	Fonction de Langevin
$J_n(r)$	Fonction de Bessel d'ordre n
F_F	Fonction de Friedel ($F_F = \frac{k_F r \cos k_F r - \sin k_F r}{(k_F r)^4}$)

Partie I

Introduction

Chapitre 1

Introduction

Les premières traces de la connaissance et de l'utilisation de matériaux magnétiques par l'Homme datent du premier millénaire avant J.C, en Asie par les Chinois (qui leur donnèrent le nom de "pierre tendre") et en Europe par les Grecs dont les Magnètes sont probablement à l'origine du mot moderne "magnétisme". Toutefois, pendant des siècles, l'utilisation des matériaux magnétiques est restée très rudimentaire, tout au plus à des fins d'orientation avec les boussoles, à cause du manque de compréhension des phénomènes à l'origine de leurs propriétés comme peuvent en témoigner les écrits de d'Alembert au XVIII^{ème} siècle dans l'encyclopédie [39]. Ce n'est qu'à partir du XIX^{ème} siècle qu'ont été réalisés les premiers progrès permettant d'expliquer le magnétisme, grâce au développement des théories de l'électromagnétisme et de la thermodynamique, mais c'est à partir du milieu du XX^{ème} siècle avec la compréhension de l'origine du ferromagnétisme que les premières applications modernes des matériaux magnétiques ont vu le jour.

De nos jours, le nombre d'applications des matériaux magnétiques n'égale que leur diversité. On les retrouve aussi bien dans le secteur de l'automobile (avec les moteurs à aimants permanents par exemple [117]) dans des circuits magnétiques incluant des bobines (utilisation d'aimant doux comme Fe-Si pour guider les lignes de champs), comme générateur de champ magnétique (avec des aimants durs de SmCo ou NdFeB pour les plus répandus), ou encore comme générateur d'ondes acoustiques avec les matériaux magnétostrictifs (comme le Terfenol-D ou encore le FeGa [31], pour les sonars de sous-marins par exemple) et même comme réfrigérant avec les matériaux magnéto-caloriques [111] [51]. Toutefois c'est avec le développement de l'informatique que les matériaux magnétiques ont tenu une place de choix où l'orientation rémanente de l'aimantation sert à coder des données.

Désormais, le contrôle de l'état magnétique d'un système est un sujet crucial, le but étant de pouvoir manipuler un système magnétique de façon efficace (c'est à dire en utilisant le moins de matières premières et d'énergie), toujours plus vite, de manière réversible et parfaitement contrôlée. L'application d'un champ magnétique est la méthode préférée pour provoquer un basculement de l'aimantation. Toutefois avec l'évolution des techniques, de nouvelles méthodes originales sont apparues et désormais, l'état magnétique se manipule par le biais d'un champ magnétique (pouvant être généré par des impulsions lasers), d'un courant électrique polarisé en spin [172], d'ondes acoustiques [187], de la température, de la lumière [112][174], en utilisant les ondes de spin [96] ... , en utilisant des matériaux toujours plus novateurs, décuplant encore le champ des possibles.

Chacune de ces techniques possède ses avantages et inconvénients et toutes nécessitent des matériaux ayant des propriétés particulières, pour pouvoir être appliquées stimulant la recherche

de nouveaux matériaux et hétérostructures magnétiques. Parmi ces nouveaux matériaux, on compte depuis le milieu du XX^{ème} siècle, les matériaux semi-conducteurs ferromagnétiques, une classe de matériaux hybrides dans lequel la manipulation des propriétés semi-conductrices influence les propriétés magnétiques. Désormais l'un des plus connu est (Ga,Mn)As, un semi-conducteur ferromagnétique III-V basé sur le GaAs, matériau clef dans l'opto-électronique, dont on maîtrise bien la croissance. C'est ce matériau que nous avons étudié, du fait qu'il existe de multiples manières de contrôler ses propriétés magnétiques telles que sa température de Curie, son anisotropie magnétique, son aimantation à saturation ou encore son dopage. L'une de ces méthodes consiste à phosphorer les couches de (Ga,Mn)As ((Ga,Mn)(As,P)) pour en modifier les contraintes ce qui entraîne une modification de l'anisotropie magnéto-cristalline. (Ga,Mn)(As,P) représente un banc de test idéal pour la compréhension de mécanismes fondamentaux de la dynamique, mais aussi pour de nouveaux moyens de contrôle de l'aimantation.

Cette thèse s'inscrit dans la thématique du contrôle de l'aimantation, en particulier grâce à des impulsions lasers par une technique de polarimétrie résolue en temps, plus couramment nommée pompe-sonde (TRMOKE¹). Cette thématique d'abord initiée dans les semi-conducteurs magnétiques II-Mn-VI au début des années 1980, s'est rapidement étendue aux matériaux ferromagnétiques, dans un premier temps pour étudier les processus de relaxation électronique et de spin [48], puis pour étudier la dynamique de l'aimantation induite par une excitation laser [196]. Désormais, les études se sont orientées vers un contrôle à l'échelle de la ns de l'état magnétique d'un système ([71] par exemple), le but étant d'utiliser les propriétés des ondes de spin pour effectuer des opérations de logique ou encore de stockage.

La dynamique de l'aimantation déclenchée par une excitation optique dans (Ga,Mn)As a été étudiée au cours des années 2000 et les plus grandes avancées dans cette thématique ont été réalisées par le groupe de P.Nemec à Prague au tout début de cette thèse avec entre autres, l'identification de mécanismes d'excitation [125] [182] et d'effets magnéto-optiques permettant la reconstruction de la trajectoire de l'aimantation [184]. (Ga,Mn)(As,P) en comparaison n'avait jamais été étudié en pompe-sonde. L'utilisation d'échantillons sur une large gamme de concentration en phosphore permet de modifier les paramètres de nos échantillons. Nous avons ainsi étudié la dynamique de l'aimantation par des impulsions laser de manière exhaustive et systématique sur un grand nombre d'échantillons. Le but est d'étudier tous les aspects de la dynamique, incluant l'excitation, la relaxation et la détection. La bonne connaissance et compréhension de ces mécanismes sont les enjeux de cette thèse, ce qui est un pré-requis pour envisager des mécanismes plus complexes pouvant amener au renversement de l'aimantation.

Ce manuscrit est organisé en 4 parties. La partie **I** est une partie d'introduction servant à présenter les différentes propriétés de (Ga,Mn)(As,P). La partie **II** est dédiée aux effets magnéto-optiques et à la technique expérimentale. Nous présenterons aussi une série de caractérisations de (Ga,Mn)(As,P) par des méthodes "statiques". Les parties **III** et **IV** sont dédiées à la dynamique de l'aimantation abordée sous deux points de vue différents à travers l'excitation optique pour la partie **III**, et les ondes de spin pour la partie **IV**.

Les parties **III** et **IV** sont indépendantes l'une de l'autre. Dans la partie **III** nous commencerons par soulever les questions ayant guidées nos travaux et nous réaliserons en même temps un état de l'art de la dynamique de l'aimantation dans (Ga,Mn)As. Dans un deuxième temps, nous discuterons de la correspondance FMR²/pompe-sonde dans nos matériaux.

¹Time-Resolved Magneto-Optical Kerr Effect

²FerroMagnetic Resonance

Dans un troisième temps nous étudierons les processus optiques d'excitation de l'aimantation de façon quantitative et nous verrons comment ceux-ci pilotent la dynamique de l'aimantation dans notre système.

Dans la partie **IV** nous étudierons les ondes de spin excitées par des techniques optiques. Nous en discuterons leur nature, les conditions d'observation et les différents moyens à notre disposition pour les étudier. Une des retombées de cette étude a été la détermination de la raideur de spin dans $(\text{Ga,Mn})(\text{As,P})$ en fonction du phosphore et quelques concentrations en Mn. Cette dernière sera discutée dans le dernier chapitre de cette partie.

Chapitre 2

Présentation de (Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P)

(Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P) appartiennent à la classe des semi-conducteurs ferromagnétiques dilués, une classe de matériaux où les propriétés semi-conductrices se lient aux propriétés magnétiques. L'utilisation de cette classe de matériaux s'inscrit dans la thématique de l'électronique de spin. L'intérêt est de pouvoir obtenir des hétérostructures complexes avec le même matériau utilisant la charge ainsi que le spin via la création de courant polarisé de spin par exemple), pour effectuer des tâches de stockage ou de traitement de l'information, comme le transistor à spin proposé par Datta *et al.*[37] ou encore des jonctions tunnel magnétiques [179]. L'utilisation d'un même matériau permet alors de réduire les interfaces entre les différentes parties d'une hétérostructure entraînant une perte de la polarisation des porteurs à l'interface matériaux magnétiques/semi-conducteurs, diminuant ainsi l'efficacité du dispositif.

Parmi les semi-conducteurs magnétiques, (Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P) se sont avérés deux composés très prometteurs car basés sur le GaAs, un matériau largement utilisé dans l'opto-électronique et dont la croissance est de nos jours bien maîtrisée. On peut ainsi obtenir des couches minces de (Ga,Mn)As épitaxiées sur des substrats de GaAs, avec une transition abrupte réduisant ainsi les effets d'alliage.

Dans cette première partie nous allons présenter les semi-conducteurs magnétiques ainsi que (Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P). Dans un premier temps nous ferons un petit historique sur ces matériaux puis expliquerons l'origine des propriétés magnétiques et comment on peut les modifier.

2.1 Un long chemin jusqu'aux semi-conducteurs ferromagnétiques dilués

Le début des semi-conducteurs magnétiques est intrinsèquement lié à la compréhension du mécanisme à l'origine du ferromagnétisme. L'acte fondateur qui amena à la découverte de ces matériaux date de 1951 avec le modèle d'interaction magnétique proposé par Zener *et al.*[215]. Avant de parler des semi-conducteurs magnétiques, resituons le contexte de leur apparition.

2.1.1 Interaction d'échange et ferromagnétisme

Au milieu du XX^{ième} siècle, l'origine de l'interaction d'échange entre deux atomes magnétiques était encore mal comprise. Le premier modèle décrivant le ferromagnétisme étant le modèle de

Heisenberg [72] où l'énergie d'interaction entre deux atomes i et j voisins avec une aimantation $\vec{m}_{i,j}$ était exprimée sous la forme $E_{ij} = -J_{ex}\vec{m}_i \cdot \vec{m}_j$, J_{ex} étant l'intégrale d'échange provenant de l'interaction Coulombienne : la description du ferromagnétisme nécessitait alors une valeur positive de cette intégrale. En utilisant un modèle de type Heitler-London, Heisenberg proposa que l'interaction d'échange J_{ex} entre deux atomes i et j voisins séparés d'une distance r_{ij} était due directement à l'interaction des électrons 3d des atomes i et j . L'intégrale d'échange était alors :

$$J_{ex} = 2 \int \psi_m^*(i)\psi_n^*(j) \left[\frac{1}{r_{mn}} + \frac{1}{r_{ij}} - \frac{1}{r_{im}} - \frac{1}{r_{jn}} \right] \psi_n(i)\psi_m(j) dV_i dV_j \quad (2.1)$$

m et n les indices des électrons, ψ leurs fonctions d'ondes, r_{ij} la distance inter-atomique, r_{im} (r_{jn}) la distance de l'électron m (n) par rapport au noyau i (j), r_{mn} la distance entre deux électrons, et $V_{i,j}$ le volume d'intégration. Cette intégrale d'échange est la même que celle de la molécule de H_2 dont la solution exacte était connue mais de signe négatif. L'interaction d'échange était donc à première vue de type *antiferromagnétique* en utilisant l'interprétation d'Heisenberg, même pour du Fe. A cause de la difficulté dans l'évaluation de cette intégrale dans un cas réaliste [81], ce résultat posa problème pendant 3 décennies et nombre de recherches furent réalisées afin de déterminer le véritable signe de l'échange. Ce n'est qu'à partir du début des années 50 avec les travaux de Kaplan *et al.* [81] puis de Stuart *et al.* [148] au début des années 1960 que le signe positif de cette intégrale a pu clairement être démontré grâce en particulier aux progrès de la simulation numérique. L'interaction ferromagnétique ainsi que l'échange dans des matériaux comme le Fe tirait son origine de l'interaction directe entre les fonctions d'ondes électroniques de deux atomes voisins.

Entre temps, pour expliquer le ferromagnétisme dans les métaux, partant du principe que J_{ex} était négatif pour une interaction directe, C. Zener¹ proposa un modèle d'interaction indirecte entre deux atomes voisins [215][216]. Il considéra que l'interaction magnétique entre deux atomes se faisait de façon *indirecte* grâce à une hybridation des fonctions d'ondes des électrons localisés de la couche 3d, incomplète, et celles des électrons délocalisés 4s de la bande de conduction. La résultante d'une telle hybridation est une interaction d'échange de type J_{sd} . Si l'interprétation et le traitement complet de Zener fut remis en cause pour le Fe, le Ni ou le Co [185][83], cette réflexion fut à la base de l'interaction Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) comme mécanisme d'interaction entre des atomes magnétiques. D'abord développée pour expliquer des résonances nucléaires de spin anormales par Ruderman *et al.* [149], ce modèle fut étendu théoriquement aux matériaux magnétiques par Kasuya *et al.* [83] puis appliqué à CuMn par Yosida *et al.* [212] pour expliquer ses propriétés magnétiques. Dans ce modèle, l'intégrale d'échange est décrite grâce aux oscillations de Friedel provenant de l'écrantage de la densité de charge induite par l'impureté magnétique par les autres charges environnantes. On obtient alors une fonction oscillante autour de 0 en fonction $k_F r_{ij}$, k_F représentant le vecteur d'onde de Fermi ; le modèle de Zener n'en étant qu'une limite lorsque $k_F r_{ij}$ tend vers 0.

Afin de tester la validité de l'interaction RKKY, les scientifiques de l'époque se sont concentrés sur des composés où les électrons portant les spins étaient fortement localisés. Cette propriété étant caractéristique des fonctions d'ondes de la couche 4f, l'utilisation d'alliages de terres rares avec des métaux était tout indiquée. L'interaction RKKY s'est avérée très efficace pour expliquer le ferromagnétisme dans des composés "exotiques" de tr-Ru (tr= Pr, Nd, Er [114]) ou encore dans des composés tr-Ir₂ (tr étant une terre rare [24]) à l'exception d'un composé EuIr₂ où une température de Curie (T_C) de 70 K a pu être mesurée mais un faible moment

¹Clarence Zener 1905-1993

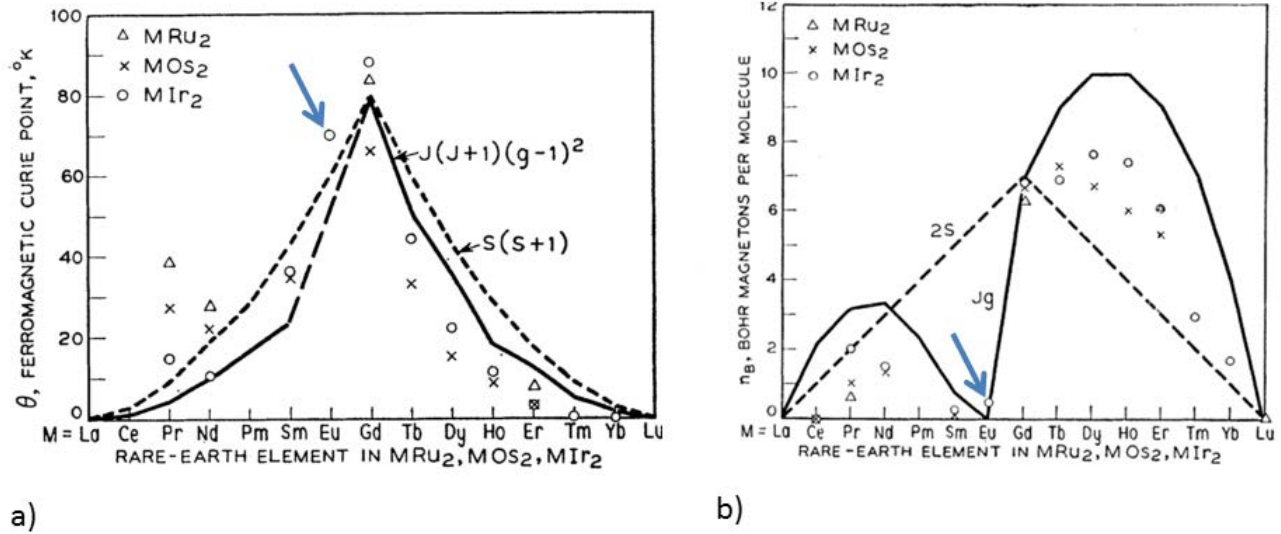


Figure 2.1: (Ref Bozorth *et al.* [24]). **a** : température de Curie pour des alliages métal/terre rare. **b** : moment magnétique en magnétons de Bohr pour divers alliages métal/terre rare comparé à la théorie magnétique (Fig. 2.1a et b).

Cette observation était surprenante, l'Eu étant sous la forme Eu^{3+} dans EuIr_2 , son moment cinétique total (donc son aimantation) est censé être nul. Or le composé d' EuIr_2 présentait une température de Curie élevée ($T_C = 70 \text{ K}$) avec aucune aimantation ce qui était contradictoire en utilisant un modèle simple où l'aimantation est paramétrée par une fonction de Brillouin. Cette contradiction a été résolue quelques années plus tard par le même groupe en étudiant EuO [113] et montra que ce dernier était présent dans leurs couches de EuIr_2 . La phase ferromagnétique était donc due à ce composé qui avait la particularité d'être semi-conducteur³. EuO est devenu le premier matériau d'un nouveau type : les *semi-conducteurs magnétiques*, un composé alliant des propriétés semi-conductrices *couplées* à un ordre ferromagnétique. Ces matériaux ont suscité un vif intérêt, d'un point de vue applicatif pour étendre les propriétés des matériaux semi-conducteurs, mais aussi d'un point de vue plus fondamental pour étudier le ferromagnétisme de bande.

2.1.2 De EuO à $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$

Après ces travaux de nombreux semi-conducteurs magnétiques furent découverts tel que EuH_2 , EuS , EuSe , EuTe [116][195] ou encore CdCr_2Se_4 [98] et de nombreuses études furent menées afin de caractériser leurs propriétés magnétiques [45], électriques[131] ... Ces composés, toujours thème de recherche actuel ([177] [133] par exemple), ont été moins étudiés à partir des années 70 du fait de leur composition⁴ ainsi que des difficultés à obtenir des couches minces, rendant ainsi leur intégration difficile avec des semi-conducteurs plus classiques comme le Si (cette difficulté n'a été passée que récemment par Schmehl *et al.* [162]). Désormais les terres rares sont

²Configuration électronique de Eu^{3+} : $4f^6 \rightarrow S = 3, L = 3, J = |L - S| = 0$

³En fait, il faut attendre quelques années pour commencer à voir apparaître le terme semi-conducteur magnétique, par exemple en 1968 [140]

⁴Utilisation de terre rare, cher et polluant à l'exploitation et dont les sources sont désormais très localisées géographiquement (Chine). Petit exemple pour le prix : Ni : 10 \$ / kg (source bourse des matériaux de Londres), Eu : 680 \$ / kg (source HEFA rare earth group).

principalement utilisées dans des alliages avec des métaux de transition pour leurs anisotropie uniaxiale élevée, augmentant les champs coercitifs (pour les aimants durs SmCo par exemple), soit pour leurs coefficients magnéto-strictifs très importants [120].

Avant les années 60, les échantillons préparés étaient principalement polycristallins à cause des méthodes de croissance par dépôt chimique en phase vapeur (premier exemple sur PbS en 1948 par Elleman *et al.*[50]). A partir du milieu des années 60, l'évolution des techniques de croissance a permis d'obtenir des couches minces monocristallines [165], d'abord de PbS puis des couches de GaAs et Ge[38]. Au début des années 70, les premières épitaxies par jets moléculaires apparaissent avec l'épitaxie de couches minces de GaAs [28]. Cette évolution des techniques a ainsi permis aux scientifiques de se tourner vers des matériaux basés sur des semi-conducteurs IV-VI (comme PbMnSe [60]), ou encore des II-VI (CdTe, ZnTe, HgTe, CdS) dans lesquels est incorporée une faible concentration d'atomes magnétiques (quelques %). On distingue ce type de matériaux par rapport à leurs prédécesseurs par l'utilisation de la terminologie de semi-conducteurs magnétiques *dilués* (DMS).

Parmi les DMS les plus étudiés, on compte les semi-conducteurs II-Mn-VI où les propriétés optiques, magnéto-optiques [58][159], magnétiques[12] et de transport[82] ont été étudiées. L'intérêt de l'étude de ces composés est que le Mn est parfaitement soluble dans la matrice cristalline, permettant ainsi d'obtenir des couches minces d'excellente qualité ce qui donne des mobilités électroniques très importantes avec un gaz électronique fortement polarisé en spin. Au début des années 70, les II-Mn-VI étaient obtenus à l'état massif et étaient paramagnétiques. Ce n'est qu'avec l'évolution des techniques de croissance avec l'épitaxie par jets moléculaires que les chercheurs sont passés de matériaux massifs à des puits quantiques augmentant ainsi le dopage et permettant l'apparition d'une phase ferromagnétique mais avec une faible T_C . Nous renvoyons le lecteur à la revue de J.K. Furdyna *et al.* [57] pour une vision de l'état de l'art déjà très abondante sur ces matériaux en 1988. Toutefois, les propriétés magnétiques de ces matériaux étaient décevantes, ces derniers étant le plus souvent paramagnétiques ou ferromagnétiques avec une T_C très faible inférieure à 4 K. Même si l'âge d'or de ces matériaux est passé, ces derniers restent d'excellents systèmes modèles pour les gaz polarisés en spin ([150]).

L'émergence des DMS III-Mn-V est plus tardive par rapport aux II-Mn-VI à cause de la limite de solubilité du Mn dans les matrices cristallines entraînant la formation d'îlots de MnAs en surface[41]. Ce problème de solubilité a été résolu par Munekata *et al.* en 1989 en synthétisant par MBE (In,Mn)As à basse température (250°C)[122]. Si ce type de croissance présente l'avantage de passer la limite de solubilité, elle présente l'inconvénient de matériaux de moins bonne qualité avec de multiples défauts (exemple pour le GaAs basse température [109]). Les couches minces produites avaient une T_C égale à 7.5 K. En 1996, c'est au tour de (Ga,Mn)As d'être synthétisé pour la première fois par Ohno *et al.* [126] avec une T_C de 60 K. Ce dernier a suscité un grand intérêt, (Ga,Mn)As étant basé sur le GaAs, un des matériaux dont on contrôle le mieux la croissance et dont on connaît bien les caractéristiques.

(Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P) seront au centre de notre attention le long de ce manuscrit et nous allons présenter dans les parties suivantes leurs différentes caractéristiques.

2.2 Ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As

Dans cette partie nous allons nous intéresser aux propriétés magnétiques de (Ga,Mn)As et nous montrerons comment celles-ci peuvent être modifiées à volonté.

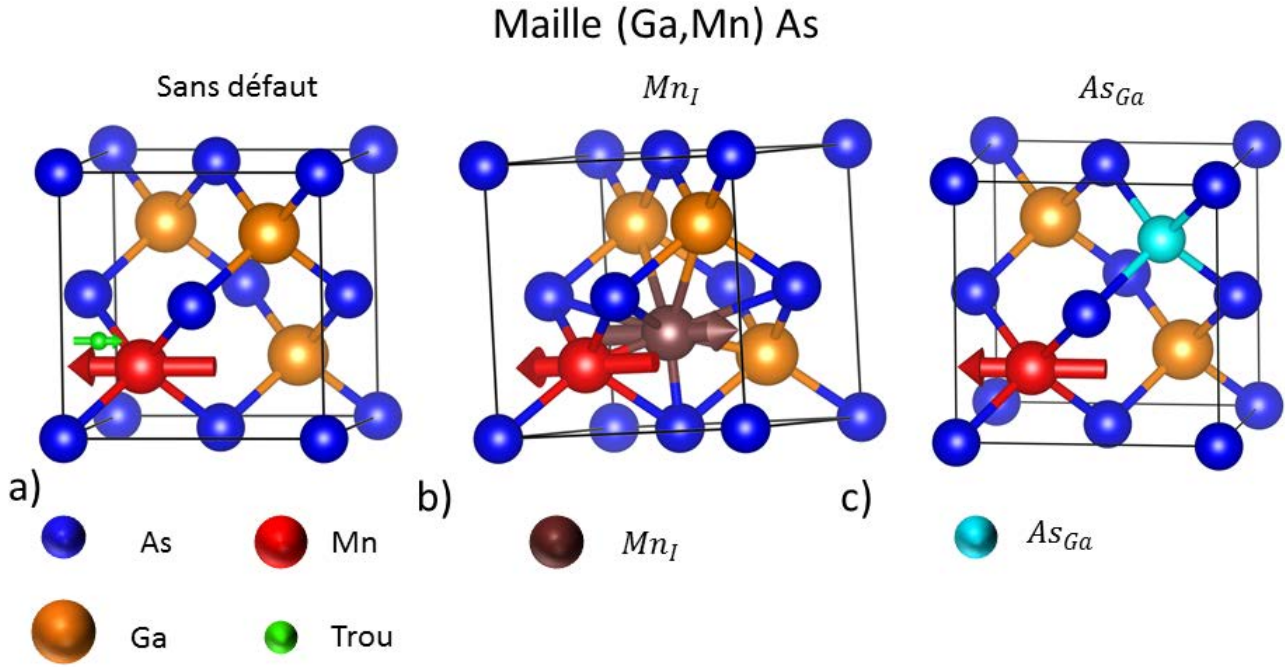


Figure 2.2: Représentation schématique de la maille élémentaire de (Ga,Mn)As . Les flèches indiquent la direction des spins. **a** : maille élémentaire sans défaut cristallin. **b** : maille avec la présence de Mn en position interstitielle. **c** : maille avec un As substitué à un Ga.

2.2.1 Structure cristallographique et croissance

La structure cristallographique de (Ga,Mn)As se base sur celle du GaAs. C'est une structure de type Blende de Zinc, c'est à dire un cristal cubique face centrée constitué de deux sous-réseaux portant le Ga et l'As décalés de $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$. Cette structure cristallographique fait partie du groupe d'espace $F\bar{4}3m^5$, de paramètre de maille $a_0 = 5.6 \text{ \AA}$. Cette structure cristallographique est la même que celle du diamant ou CaF_2 mais ne possède pas de centre d'inversion.

La croissance de (Ga,Mn)As se fait par épitaxie par jets moléculaires à basse température en incorporant des Mn qui vont se substituer aux atomes de Ga (Mn_{Ga}) car le Mn a une structure électronique ($[\text{Ar}]3d^5 4s^2$) plus proche de celle du Ga ($[\text{Ar}]3d^{10} 4s^2 4p^1$) que de l'As ($[\text{Ar}]3d^{10} 4s^2 4p^3$). Dans la matrice cristalline, Mn se place sur des sites tétraédriques et forme 4 liaisons avec les As voisins (Fig. 2.2a). Des mesures de spectroscopie [25] et de résonance paramagnétique électronique [163] ont démontré que Mn_{Ga} se comporte comme un accepteur, avec une structure électronique $3d^5 +$ un trou faiblement localisé autour du Mn, avec un rayon de Bohr de $7.8 \text{ \AA}$ pour des concentrations faibles en Mn (représenté schématiquement dans la Fig. 2.2 et Fig. 2.3). Une faible concentration en Mn permet d'obtenir des dopages très importants (de l'ordre de $10^{19} - 10^{20}$ porteurs/ cm^3). C'est le couplage entre le spin du trou et celui des ions magnétiques qui va être au coeur du ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As . Notons que la croissance d'un (Ga,Mn)As métallique ne se fait que sur une petite gamme de concentration de Mn comme nous le montrerons plus loin.

Lors de la croissance, les Mn peuvent se placer en position interstitielle (Mn_I) soit à cause de la faible solubilité du Mn dans la matrice de GaAs, soit à cause du fait que l'on ne peut pas

⁵Numéro 216 dans les tables cristallographiques [1]

augmenter indéfiniment le dopage dans les semiconducteurs (formation de défauts amphotères stabilisant le niveau de Fermi [197][198]). Ce positionnement a deux conséquences :

1. Mn_I se comporte comme un double donneur réduisant ainsi la densité de porteurs. Ce dernier va avoir tendance à se positionner proche d'un Mn_{Ga} car attiré par son environnement électrostatique ce qui va compenser le trou introduit par Mn_{Ga} [21] (Fig. 2.2b).
2. Lorsque 2 Mn sont trop proches l'un de l'autre, les deux atomes ont une interaction antiferromagnétique diminuant le moment total dans la couche.

Ces deux effets vont contrer le ferromagnétisme et diminuer l'aimantation à saturation M_s . Dans les faits, à cause des Mn_I , la concentration de Mn contribuant activement aux propriétés magnétiques est inférieure à la concentration nominale incorporée et nous montrerons par la suite une façon de déterminer la concentration effective en Mn (x_{eff}). Les Mn_I possédant une mobilité importante, l'optimisation des couches de (Ga,Mn)As passe par des recuits de l'ordre de 200 °C pendant plusieurs heures ce qui fera migrer les Mn_I dans des positions en surface, moins défavorables pour les propriétés magnétiques [136][123].

A cause de la croissance à basse température, des atomes d'As peuvent se positionner sur des sites de Ga (As_{Ga}) [104]. Comme les Mn_I ces derniers sont des donneurs compensant les trous des Mn_{Ga} . La concentration de ces défauts dans du GaAs basse température est d'environ de quelques pourcents et ceux-ci forment une bande d'impureté en dessous de la bande de conduction. Retirer ces défauts est expérimentalement difficile sans altérer la couche magnétique, les recuits nécessaires étant de l'ordre de 400 °C, température à laquelle il se forme des agrégats de MnAs.

2.2.2 Origine du ferromagnétisme

Du fait de la faible concentration des Mn_{Ga} dans la matrice de GaAs, ces derniers sont trop éloignés les uns des autres pour que leurs fonctions d'ondes se recouvrent. Cette observation exclut tous les mécanismes d'interaction directe comme dans les matériaux magnétiques constitués uniquement d'atomes de transition. Pour la même raison, le super-échange est lui aussi à écarter.

L'origine du ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As a été comprise au début des années 2000 par Dietl *et al.*[42] en se basant sur les travaux dans les II-Mn-VI [15] comme étant une interaction indirecte médiée par les porteurs, c'est à dire les trous. Lorsque l'on incorpore du Mn dans la matrice de GaAs, on introduit un atome magnétique ayant un moment cinétique total $J = 5/2$, et un trou. L'hybridation des fonctions d'ondes des électrons 3d du Mn avec les trous de la bande de valence est à l'origine d'un couplage antiferromagnétique de type J_{pd} . A faible concentration de Mn, le trou reste localisé autour du Mn sur un niveau d'accepteur un peu au dessus de la bande de valence. L'hybridation entraînant un élargissement de la bande d'impuretés, celle-ci finit par fusionner avec le haut des bandes de valences : les trous utilisent désormais la bande de valence du GaAs et se délocalisent dans la matrice cristalline. La conséquence est la présence d'un gaz de trous, en interaction avec des ions Mn localisés (Fig. 2.3). Une vision approximative consiste à imaginer que le champ créé par les Mn va polariser le gaz de trou. Un Mn interagit antiferromagnétiquement avec un trou qui ira à son tour interagir antiferromagnétiquement avec un autre Mn et ainsi de suite. De façon effective, on obtient alors une interaction ferromagnétique entre Mn *médiée* par les porteurs.

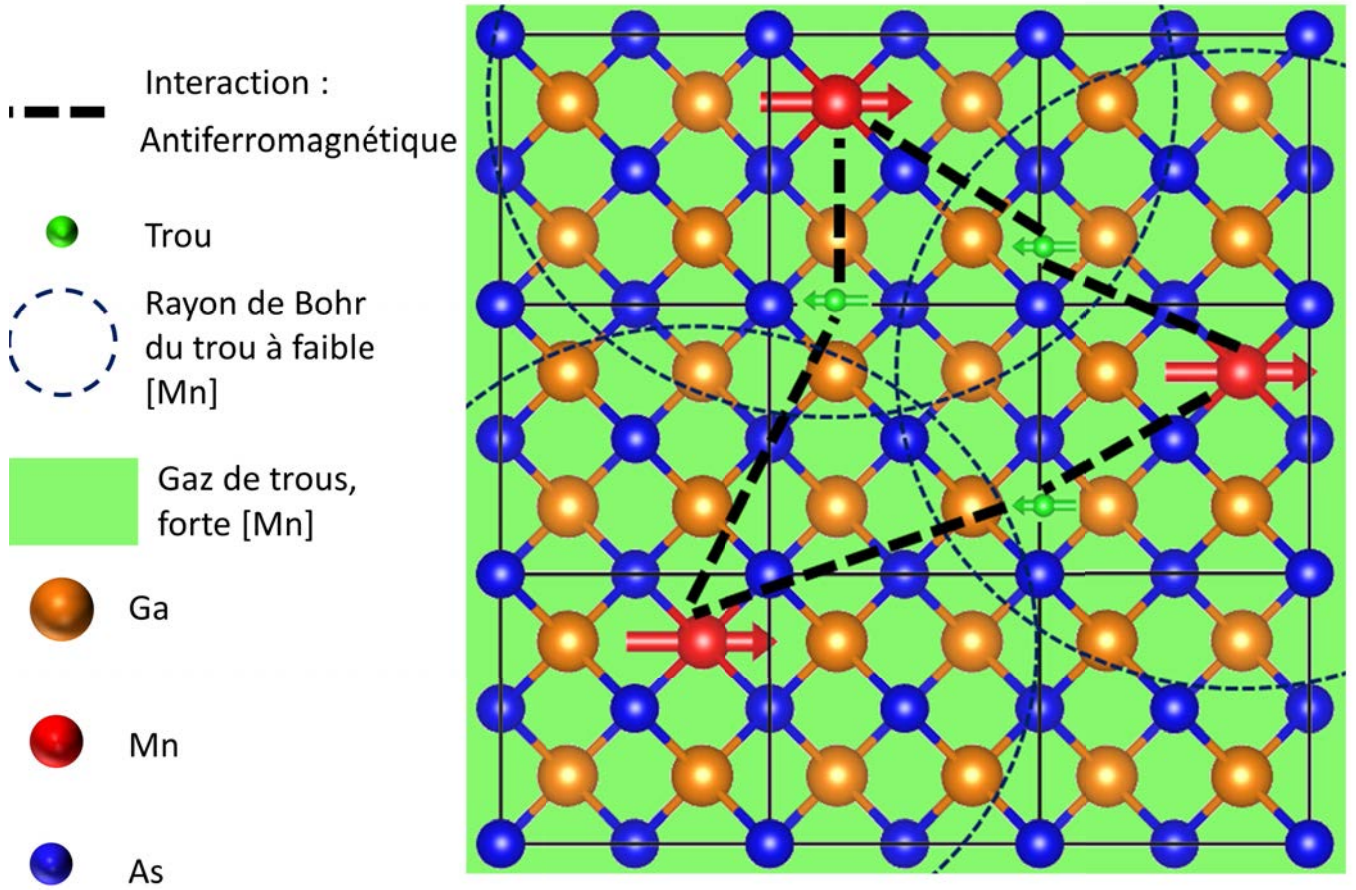


Figure 2.3: Structure cristallographique composée de 9 mailles de (Ga,Mn)As vue suivant [010]. Le nombre d'atomes de Mn correspond à une concentration de 8 % en Mn.

L'interaction entre deux Mn est une interaction de type RKKY dont la valeur de l'échange est décrite par la fonction $F_F(\xi) = \frac{\xi \cos \xi - \sin \xi}{\xi^4}$ avec $\xi = 2k_F r_{ij}$, k_F étant le vecteur d'onde de Fermi et r_{ij} la distance entre deux atomes i et j [42]. Dans le cas de (Ga,Mn)As et d'un faible dopage en Mn, $k_F \frac{a_0}{2\pi} \ll 1$ ($a_0 = 5.65 \text{ \AA}$ et $k_F \approx 1 \text{ nm}^{-1}$), on a alors $k_F r_{ij} \leq 1$ ce qui revient à considérer le modèle de Zener : l'intégrale d'échange est positive et l'interaction d'échange est de type ferromagnétique (Fig. 2.4).

2.2.3 Effet Zeeman géant et magnétisme

Dans cette partie, nous allons détailler un peu plus le mécanisme amenant au ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As .

L'interaction entre les porteurs et les Mn menant à un ordre ferromagnétique peut être décrite comme une hybridation des fonctions d'ondes 3d des Mn avec les fonctions des porteurs de la bande de valence à travers un hamiltonien de type $H_{s,p-d}$. Le calcul de cet hamiltonien est compliqué mais peut être condensé dans une forme d'hamiltonien d'échange [166]. En guise d'illustration, nous allons calculer l'effet de cet hamiltonien sur la structure de bande du GaAs dans le cas simple d'une aimantation suivant l'axe de quantification $\vec{z}$ c'est à dire une aimantation

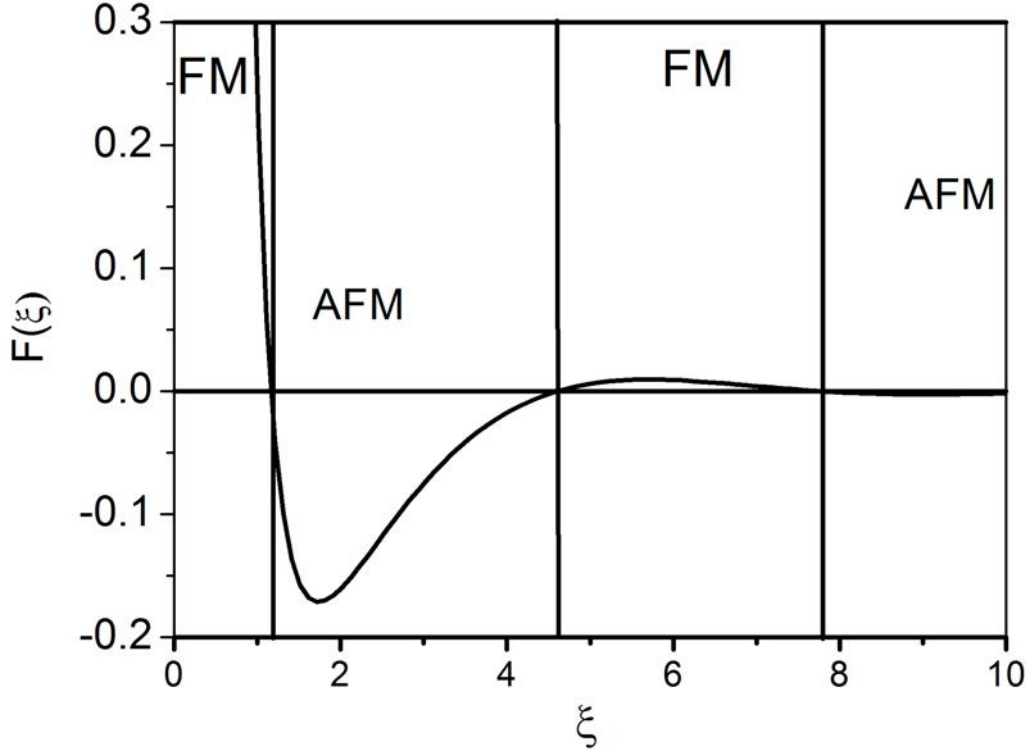


Figure 2.4: Signe de l'intégrale d'échange suivant les valeurs de la fonction $F(\xi)$. FM indique les zones où l'interaction sera ferromagnétique, AFM les zones où l'interaction sera antiferromagnétique.

tation hors-plan.

Considérons la structure de bande du GaAs proche du point Γ (Fig. 2.5a). Celle-ci est constituée d'une bande de conduction (Γ_6) décrivant les états 4s, et d'une bande de valence constituée de sous-bandes décrivant les trous lourds et les trous légers (Γ_8). L'inclusion des Mn dans la matrice de GaAs va avoir pour effet d'introduire un champ magnétique interne. Ce champ va interagir avec les porteurs présents dans les bandes de valence et de conduction et peut être mis sous la forme d'un hamiltonien de Heisenberg :

$$H_{s,p-d} = - \sum_{\vec{R}_i, j} J_{s,p-d}(\vec{r}_j - \vec{R}_i) \vec{J}_i \cdot \vec{\sigma}_j \quad (2.2)$$

avec $\vec{R}_i$ représentant la position de tous les sites occupés par un Mn et $\vec{J}_i$ son spin, tandis que $\vec{\sigma}_j$ représente le spin du porteur j . Pour calculer cette somme, on réalise deux approximations :

1. On se place dans une approximation de champ moyen où les $\vec{J}_i$ sont remplacés par leurs moyennes thermodynamiques ($\langle \vec{J} \rangle = \bar{J}$). Cette approximation permet de passer outre les phénomènes de fluctuations thermiques ou quantiques.
2. Pour s'affranchir du désordre inhérent à la structure de (Ga,Mn)As, on fait l'approximation du cristal virtuel ce qui permet de considérer un échange moyen pondéré par la concentration en Mn.

On obtient alors une expression simplifiée du hamiltonien :

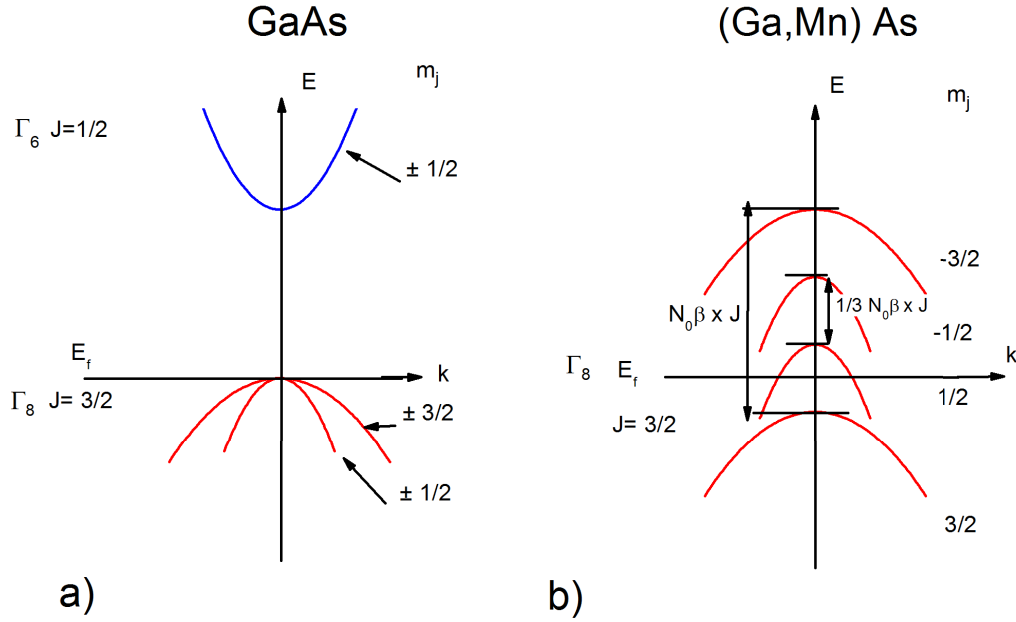


Figure 2.5: **a** Structure de bande du GaAs. **b** Zoom sur la structure de la bande Γ_8 près du point Γ dans (Ga,Mn)As .

$$H_{s,p-d} = -xN_0\bar{J} \cdot \sum_{\vec{R}_i,j} J_{s,p-d}(\vec{r}_j - \vec{R}_i)\vec{\sigma}_j \quad (2.3)$$

où xN_0 représente la densité d'atomes de Mn et N_0 la densité de sites de cations et la somme se fait désormais sur les sites du réseau. Dans le cas où les spins sont suivant l'axe de quantification, les éléments de matrice des $H_{s,p-d}$ sont exprimés dans la base des $|S, m_s\rangle$ pour Γ_6 ($S = \frac{1}{2}$, $m_s = -\frac{1}{2}, \frac{1}{2}$) et $|J, m_j\rangle$ pour Γ_8 ($J = \frac{5}{2}$, $m_j = -\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{3}{2}$). On obtient alors :

$$(\Gamma_6) \quad H_{sd} = \frac{1}{2}x\bar{J} \begin{bmatrix} N_0\alpha & 0 \\ 0 & -N_0\alpha \end{bmatrix} \quad (\Gamma_8) \quad H_{pd} = \frac{1}{6}x\bar{J} \begin{bmatrix} 3N_0\beta & 0 & 0 & 0 \\ 0 & N_0\beta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -N_0\beta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -3N_0\beta \end{bmatrix} \quad (2.4)$$

où $N_0\alpha$ représente l'intégrale d'échange s-d (J_{sd}), et $N_0\beta$ l'échange p-d (J_{pd}). Les hamiltoniens d'échange $H_{s,p-d}$ créent un effet Zeeman levant la dégénérescence sur les bandes de trous lourds et trous légers, ainsi que sur les électrons de la bande de conduction. Cette levée de dégénérescence donne la structure de bande représentée sur la Fig. 2.5b. L'éclatement des bandes sera alors proportionnel aux intégrales d'échange, et à la concentration en Mn. Dans (Ga,Mn)As, les intégrales d'échanges ont pour valeur : $N_0\alpha \approx 0.2$ eV et $N_0\beta \approx -1.2$ eV [130]. En définissant le paramètre de l'éclatement d'échange par B_G (≈ 20 meV [42]), l'éclatement Zeeman en résultant pour les trous lourds sera de $6B_G = 120$ meV, une valeur comparable à l'énergie de Fermi ($E_F \approx 0.1$ eV [42]). Les champs équivalents nécessaires pour obtenir un éclatement similaire seraient de plusieurs Tesla ce qui vaut à l'effet Zeeman produit par le champ des Mn le qualificatif de géant. Cet effet Zeeman géant est à l'origine d'effets magnéto-optiques géants comme l'effet Faraday ([58]) ou encore l'effet Voigt comme nous le verrons plus loin. Notons que l'effet est 3 fois plus fort dans le cas des trous lourds que des trous légers.

Les deux paramètres clefs dans (Ga,Mn)As pour nombre de propriétés magnétiques sont la densité et la polarisation des porteurs au niveau de Fermi (les deux étant reliées). Pour donner une image approximative, prenons le cas d'une densité de porteurs fixe, la polarisation des porteurs peut être ajustée grâce à l'effet Zeeman géant et c'est polarisation qui va être au centre du ferromagnétisme de (Ga,Mn)As. Dans une approche de champ moyen, on peut relier $\bar{J}$ à l'aimantation moyenne des Mn en l'absence de porteurs par $M_s = -g_{Mn}\mu_B x N_0 \bar{J} B_J(g\mu_B\mu_0 H_{eff}/k_B T)$, B_J étant une fonction de Brillouin, $\mu_0 H_{eff}$ un champ magnétique effectif dépendant de H_{ext} et de l'énergie total des porteurs, et définir l'aimantation moyenne des porteurs par $\vec{m}_h = -g_h\mu_B/V \sum_j \vec{\sigma}_j$, V représentant le volume du cristal. L'énergie d'échange E_{pd} s'écrit alors avec une forme de type $\vec{M}_{Mn} \cdot \vec{m}_h$: l'aimantation moyenne des Mn est alors sensible au champ moyen des porteurs.

Considérons uniquement une bande (la bande de trous lourds par exemple). En l'absence d'effet Zeeman géant, les bandes de trous lourds sont dégénérées et donc remplies de façon égale. On a alors $m_h = 0$ entraînant $H_{pd} = 0$ et donc aucun ordre ferromagnétique. La présence de l'effet Zeeman due au champ produit par les Mn (auquel peut s'ajouter un champ magnétique externe) change la polarisation des porteurs au niveau de Fermi ce qui donne $\vec{m}_h \neq 0$. L'interaction antiferromagnétique (car $N_0\beta < 0$) permet ensuite la polarisation des Mn permettant l'émergence d'un ordre ferromagnétique du aux Mn.

2.3 Propriétés magnétiques

Le lien entre ferromagnétisme et structure électronique entraîne que les propriétés magnétiques comme la température de Curie (T_C), la densité d'énergie volumique d'anisotropie magnéto-cristalline (F_a) ou encore l'aimantation à saturation (M_s) de (Ga,Mn)As dépendent de façon directe des propriétés électroniques par l'intermédiaire de la densité et de la polarisation des porteurs au niveau de Fermi. Ces deux paramètres peuvent être modifiés de multiples manières, en modifiant directement la densité de porteurs par exemple ou alors en ajustant les contraintes ce qui aura pour effet de modifier la proportion trous lourds/trous légers. Nous allons ici passer en revue les différentes propriétés magnétiques pouvant être modifiées et les différentes manières d'y arriver.

2.3.1 Température de Curie

La première caractéristique que nous allons présenter est la température de Curie des échantillons. Les semi-conducteurs magnétiques dilués étant des matériaux prometteurs vis à vis de l'électronique de spin, il est nécessaire que ces derniers aient une T_C à l'ambiante permettant ainsi des applications.

T_C peut être modélisée dans une approche de champ moyen en réalisant un développement de l'énergie libre en fonction de M_{Mn} . Une façon de procéder consiste à décrire l'aimantation avec une fonction de Brillouin en tenant compte du champ produit par les états de valence[42] :

$$M_{Mn} = -g_{Mn}\mu_B x N_0 \bar{J} B_J \left[\frac{g\mu_B\mu_0 \left(-\frac{\partial F_c[M_{Mn}]}{\partial M_{Mn}} + H_{ext} \right)}{k_B(T + T_{AF})} \right] \quad (2.5)$$

où $-\frac{\partial F_c[M_{Mn}]}{\partial M_{Mn}}$, représente le champ créé par les porteurs dépendants de l'aimantation des Mn avec $F_c = U_c$ l'énergie libre et l'énergie des porteurs, et T_{AF} représentant une correction à T_C à cause de l'interaction antiferromagnétique entre deux Mn premiers voisins. T_C peut être modélisée à partir d'un modèle à deux bandes paraboliques séparées d'une valeur $B_G = A_F\beta M/6g\mu_b$ dû à l'effet Zeeman géant, A_F représentant un paramètre prenant en compte les interactions des trous. Proche de T_C on montre que $F_c[M] - F_c[0] = \frac{-A_F\beta^2 M^2}{2(2g\mu_b)^2} \rho_c(E_f)$, E_f étant l'énergie de Fermi. La prise en compte de T_{AF} nécessite de raffiner la définition de la concentration en Mn et nous considérerons une concentration effective x_{eff} . Par un développement limité de la fonction de Brillouin B_J lorsque son argument est petit, on obtient alors :

$$M_{Mn} = \frac{M_{Mn} N_0 x_{eff} J(J+1) A_F \beta^2 \rho_c(E_F)}{12k_B(T + T_{AF})} \quad (2.6)$$

Ce qui donne l'expression de la température de Curie :

$$T_C = \frac{N_0 x_{eff} J(J+1) A_F \beta^2 \rho_c(E_F)}{12k_B} - T_{AF} \quad (2.7)$$

Cette équation donnant la température de Curie de (Ga,Mn)As a été la clef de l'engouement au début des années 2000 pour ce matériau. T_C est proportionnelle à la concentration effective de Mn et à la densité de porteurs avec une certaine puissance⁶. Dans son article originel, Dietl *et al.* [42] prédisait que pour un $x_{eff}=12.5\%$ et $p = 3.5 \cdot 10^{20}$ porteurs/cm³, $T_C = 300\text{ K}$.

En pratique, cette prédiction ne fut jamais atteinte avec des T_C maximales de 200 K [202] pour des échantillons à forte concentration de Mn (12%). Plusieurs raisons ont été invoquées afin d'expliquer ce phénomène.

La densité de porteurs est un des deux paramètres centraux pour atteindre des T_C élevées donc cela implique des concentrations effectives en Mn importantes également. Or il est de plus en plus difficile de positionner des atomes de Mn en position substitutionnelle dans la maille pour de trop fortes concentrations (Fig. 2.6a). La seule prise en compte d'une contribution antiferromagnétique de Mn premiers voisins ne suffit pas à expliquer une saturation de T_C . Pour de fortes concentrations en Mn, le nombre de Mn participant effectivement au ferromagnétisme est très réduit du fait de la présence de plus en plus de Mn en position interstitielle diminuant ainsi la densité de porteurs à cause de leur nature de doubles donneurs (on peut également former des agrégats de MnAs). Les températures permettant de retirer ces agrégats sont trop importantes pour ne pas dégrader la couche de (Ga,Mn)As. Toutefois même dans un cas idéal où les Mn se placent en position substitutionnelle, une trop forte concentration de porteurs entraînera un libre parcours moyen plus faible pour les porteurs : l'information portée par le spin des trous sera perdue dans la diffusion entraînant alors une limitation intrinsèque de T_C [85].

Désormais, il est acquis que toutes ces limitations font qu'il est pour le moment impossible d'atteindre une température de Curie à 300 K, et des calculs-ab-initio [43] montrent que $T_C(x_{eff})$ théorique suit les données expérimentales (Fig. 2.6b) et présente une saturation pour des concentrations de Mn élevées.

⁶Dans le cas d'un modèle à deux bandes paraboliques, on a une T_C proportionnelle à la densité de porteurs à la puissance 1/3.

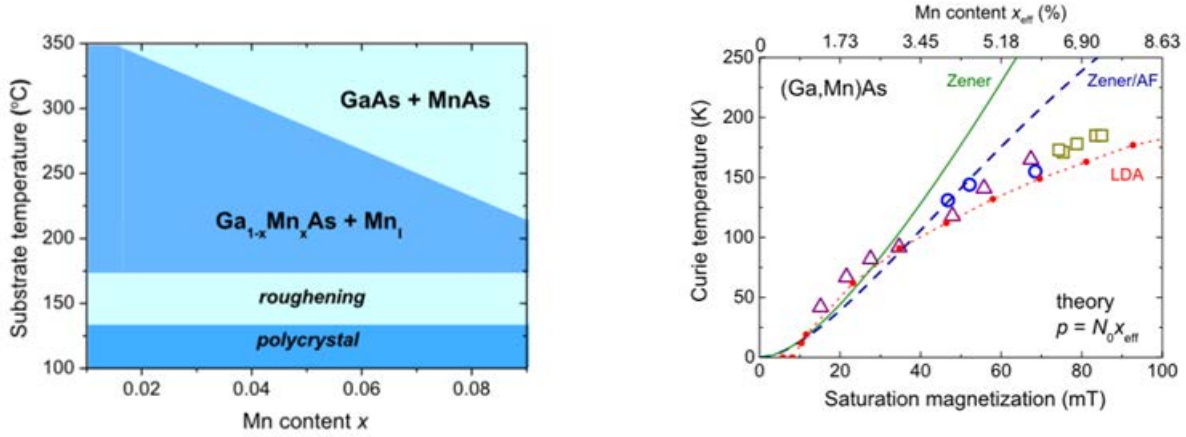


Figure 2.6: (Ref [43] et références citées) **a** : diagramme représentant les différentes phases atteignables suivant la température de croissance et la concentration en Mn nominale. **b** : température de Curie en fonction de l'aimantation à saturation expérimentale (symbole), comparé à des calculs dans le modèle de Zener ou des calculs ab-initio.

2.3.2 Anisotropie magnéto-cristalline

De façon effective, les propriétés magnétiques seront décrites par l'anisotropie magnéto-cristalline dont nous allons définir l'origine physique ainsi que les différentes notations qui nous serviront dans le reste de ce manuscrit.

Lorsque l'on considère un atome dans une matrice cristalline, les électrons composant les orbitales électroniques sont sensibles à l'environnement électrostatique produit par le cristal, c'est à dire au champ cristallin : on a donc un couplage entre les orbitales et le réseau. A cause de l'interaction Coulombienne et des effets spin-orbite, il y aura une levée de dégénérescence des niveaux décrits par les orbitales des électrons 3d. Les électrons occuperont alors les orbitales de plus faibles énergie. On a donc une anisotropie du moment cinétique orbital et donc du moment magnétique.

Dans le cas de (Ga,Mn)As, l'origine est plus compliquée car $L_{Mn}=0$. En fait l'anisotropie magnéto-cristalline dans (Ga,Mn)As reflète la complexité de la bande de valence. Son calcul s'effectue en calculant l'énergie du gaz de trou pour une certaine orientation de l'aimantation ce qui nécessite de calculer précisément la structure de bande pour pouvoir calculer $\rho(E_f)$. L'orientation de l'aimantation donnant l'énergie la plus faible sera alors facile. (Ga,Mn)As étant un matériau appartenant au groupe ponctuel de symétrie cubique, avec une symétrie réduite (structure Blende de Zinc) on utilise une expression de F_a avec une symétrie tétragonale à cause de la croissance sur le substrat abaissant encore la symétrie du cristal (compression biaxiale). La densité volumique d'énergie libre décrivant l'anisotropie magnéto-cristalline F et l'énergie Zeeman (F_h) se met sous la forme suivante [53] :

$$F(\theta, \phi) = \left(\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 - K_{2\perp}\right) \cos^2 \theta - \frac{K_{4\perp}}{2} \cos^4 \theta - K_{2\parallel} \sin^2\left(\phi - \frac{\pi}{4}\right) \sin^2 \theta - \frac{K_{4\parallel}}{8} [3 + \cos 4\phi] \sin^4 \theta \quad (2.8)$$

$$F_h(\theta, \phi) = -\mu_0 H_{ext} M_s [\sin \theta \sin \theta_h \cos(\phi_h - \phi) + \cos \theta_h \cos \theta] \quad (2.9)$$

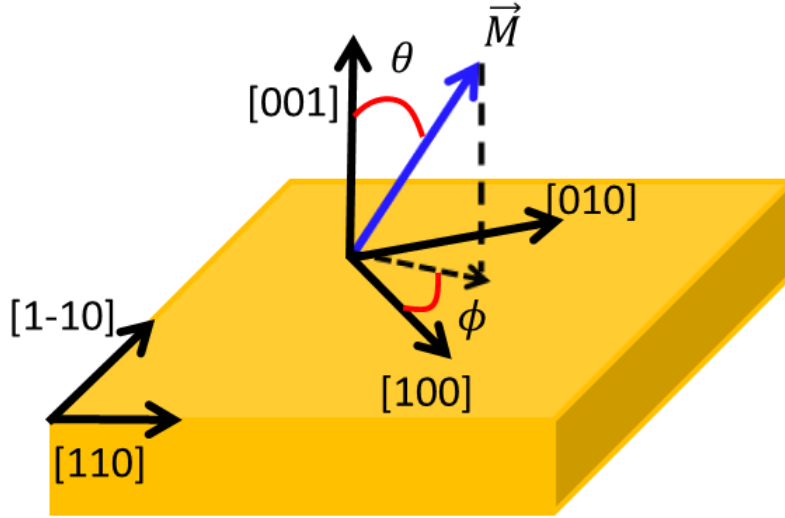


Figure 2.7: Repère de coordonnées utilisé pour décrire l'anisotropie magnéto-cristalline.

avec K_i représentant les ordres de l'anisotropie magnéto-cristalline, M_s l'aimantation à saturation, et θ , ϕ les angles polaires ($\theta = 0 \rightarrow [001]$) et azimutal ($\phi = 0 \rightarrow [100]$). A K_i fixés, la position d'équilibre de l'aimantation (θ_0 et ϕ_0) est donnée par une minimisation de l'énergie libre par rapport aux variables libres à savoir θ et ϕ . A un jeu de K_i correspondront alors une ou des positions d'équilibre de l'aimantation⁷ pouvant dépendre de l'histoire magnétique de l'échantillon. On peut considérer en supplément l'énergie produite par un champ externe $\mu_0 H_{ext}$ orienté suivant θ_h et ϕ_h (repérés par rapport aux mêmes axes). Nous allons décrire la signification de chaque K_i pris séparément.

$K_{2\perp}$: ce coefficient définit la difficulté de l'aimantation d'être dans le plan de la couche. Si $K_{2\perp} < 0$, alors $\theta_0 = \pi/2$: le plan (100) est alors facile d'aimantation. Si $K_{2\perp} > 0$, alors $\theta_0 = 0$: le plan (100) est difficile d'aimantation.

$K_{4\perp}$: ce coefficient tire son origine de la symétrie cubique et la contrainte biaxiale des échantillons de (Ga,Mn)As. Ce coefficient décrira la tendance de l'aimantation à se placer suivant des plans de type $\langle 111 \rangle$ et donc une anisotropie cubique (ou tétragonale).

$K_{4\parallel}$: ce terme possède la même origine que $K_{4\perp}$ et décrit l'anisotropie dans le plan de l'échantillon. Pour $K_{4\parallel} > 0$, les axes de type $\langle 100 \rangle$ sont faciles d'orientation et pour $K_{4\parallel} < 0$, les axes de type $\langle 110 \rangle$. En l'absence de contraintes, $K_{4\parallel} = K_{4\perp}$.

$K_{2\parallel}$: ce terme décrit une anisotropie uniaxiale suivant des axes de type $\langle 110 \rangle$ dans le plan de la couche. Dans (Ga,Mn)As, l'origine de ce terme n'est pas claire car cette symétrie ne se retrouve pas dans la bande de valence. Plusieurs hypothèses récentes suggèrent que celui-ci provient de paires Mn-Mn[18] pouvant résulter de l'existence de fautes d'empilement [94] lors de la croissance de (Ga,Mn)As. Pour une aimantation dans le plan, ($\theta_0 = \pi/2$), $K_{2\parallel} > 0$ décrira une orientation facile suivant [1-10] tandis que $K_{2\parallel} < 0$, une orientation suivant [110].

Expérimentalement, toutes ces constantes d'anisotropies étant à considérer, l'anisotropie dans (Ga,Mn)As sera particulièrement complexe, celle-ci reflétant la complexité de la bande

⁷On suppose que le matériau est uniformément aimanté

de valence. Pour les échantillons à aimantation planaire qui seront particulièrement étudiés au cours de cette thèse, ϕ_0 sera donné par la compétition entre l'anisotropie uniaxiale et biaxiale, décrite par $\sin 2\phi_0 = -\frac{K_{2\parallel}}{K_{4\parallel}}$ tant que ϕ_0 ne s'aligne pas suivant un axe de type [1-10] ($|\frac{K_{2\parallel}}{K_{4\parallel}}| < 1$). Comme dans tous les matériaux magnétiques, les K_i ont chacun leurs dépendances avec la température. En fonction de la température, quand le plan de la couche est facile d'aimantation, l'anisotropie est biaxiale et l'aimantation s'aligne suivant des axes de type [100] [157] à basse température (en général $T < T_C/2$), puis vers des axes de types [1-10] à plus haute température. Nous ne détaillerons pas plus ici cet effet se retrouvant communément dans la littérature sur (Ga,Mn)As ([157] par exemple) et dont nous donnerons par la suite de multiples illustrations.

2.3.3 Ajustement des propriétés magnétiques

La proportion trous lourds/trous légers au niveau de Fermi va gouverner les propriétés magnétiques de notre système. Il existe de multiples façons de changer ces deux paramètres et certaines modifient plus d'un paramètre magnétique à la fois. Les propriétés magnétiques au centre de notre intérêt seront l'anisotropie magnéto-cristalline (à travers les K_i), M_s et la température de Curie (T_C).

Dopage

Dans leur article originel, Dietl *et al.* [42] avaient calculé que les propriétés magnétiques telles que l'anisotropie magnéto-cristalline, M_s et T_C pouvaient être modifiées par le dopage. Les confirmations expérimentales de ces premiers calculs sont venues au cours des années qui suivirent.

Deux méthodes existent pour augmenter la densité de porteurs : l'augmentation de la concentration de Mn (ce qui augmente mécaniquement le dopage jusqu'à une certaine limite, augmente l'effet Zeeman géant, mais aussi modifie les contraintes) et les recuits afin d'enlever les Mn_I (permettant de restaurer les trous donnés par un Mn_{Ga}). Sur les propriétés fondamentales de (Ga,Mn)As, l'effet principal sera une augmentation de T_C et de M_s ainsi qu'une modification des K_i . Ces techniques présentent néanmoins plusieurs inconvénients pour étudier des modifications des propriétés magnétiques en fonction de la concentration en porteurs seulement. Le premier est que l'on ne travaille pas à x_{eff} constant (ie : concentration en Mn actif). De plus l'augmentation de la concentration en Mn entraîne aussi un changement des contraintes sur la couche de (Ga,Mn)As ce qui aura aussi un incidence sur les K_i comme nous le verrons plus loin.

Ces deux méthodes se sont révélées rapidement efficaces pour démontrer la validité des calculs réalisés par Dietl *et al.* sur l'effet du dopage. Dès 2001, à concentration en Mn fixe et grâce à des recuits, Potashnik *et al.* [137] (Fig. 2.8a) puis Edmonds *et al.* [49] furent parmi les premiers démontrant qu'une augmentation de la densité de porteurs était possible. Cette augmentation s'accompagnait d'une augmentation de T_C et de M_s (Fig. 2.8b). En 2004, Sawicki *et al.* [157] démontrèrent qu'en plus d'une modification de T_C et M_s , le dopage influait également sur l'anisotropie magnétique (Fig. 2.8c). Le lien entre concentration en Mn, densité de porteurs T_C et M_s a été démontrée en 2002 par Potashnik *et al.* [136].

Dans certains cas, il peut être intéressant de passiver la couche de (Ga,Mn)As, par exemple pour texturer la surface. La méthode la plus commode consiste à exposer (Ga,Mn)As à un plasma d'hydrogène qui va diffuser dans la couche [63]. L'hydrogène ira se fixer au niveau des Mn_{Ga} remplaçant le trou donné par les Mn entraînant la stabilisation de l'environnement électrostatique. Cette procédure permet de modifier le dopage sur une large gamme en concentration, jusqu'à la suppression de la phase ferromagnétique de (Ga,Mn)As. Cette méthode

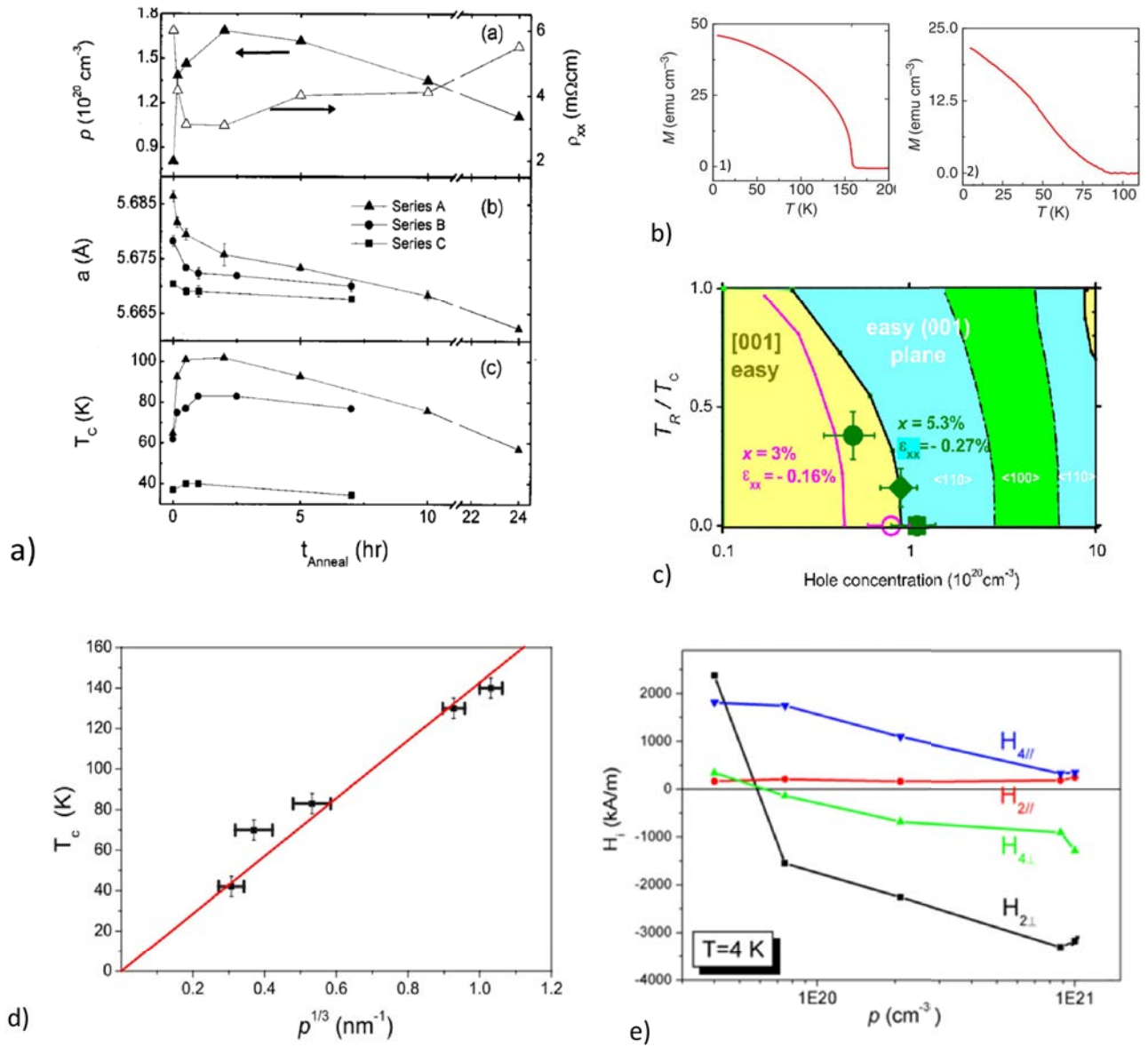


Figure 2.8: **a** : (Ref Potashnik *et al.* [137]) Evolution en fonction du temps de recuit à 250°C de (a) la densité de porteur, (b) le paramètre de maille, (c) de la T_C . **b** : (Ref Nemec *et al.* [123]) Evolution de M_s et T_C pour un échantillon recuit (1) et non recuit (2). **c** : (Ref Dietl *et al.* [43] repris de Sawicki *et al.* [157]) Température de Curie et axes faciles d'aimantation en fonction de la densité de porteurs. **d** : (Ref Thevenard *et al.* [189]) Evolution de la T_C en fonction de la densité de porteurs pour un échantillon de (Ga,Mn)As avec $[\text{Mn}] = 7\%$. **e**: (Thevenard *et al.* [186]) évolution des champs d'anisotropie magnéto-cristalline ($H_i = K_i/\mu_0 M_s$).

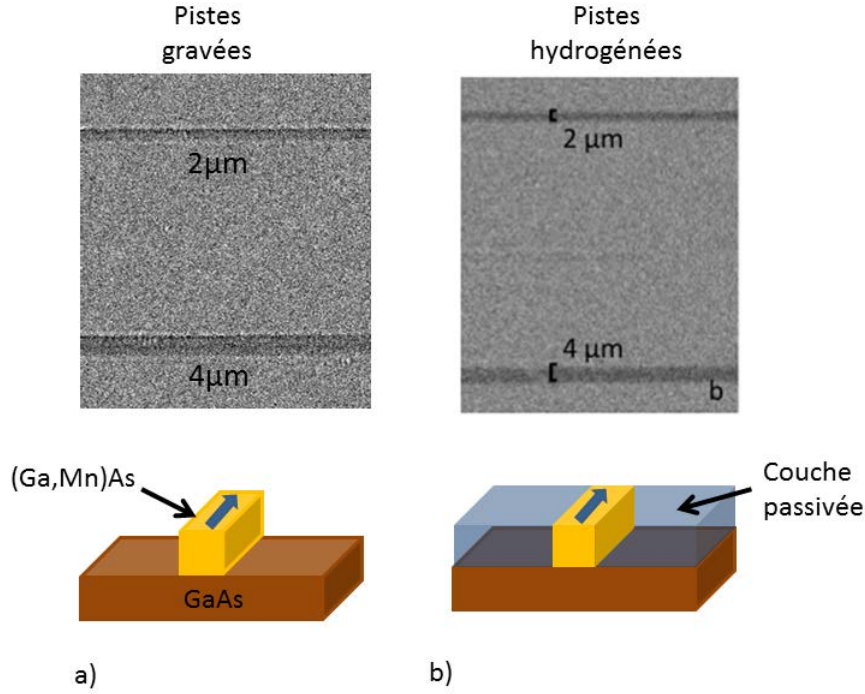


Figure 2.9: Images obtenues en microscopie magnéto-optique d'échantillons sur lesquels ont été délimitées des pistes micromagnétiques ($\vec{M}$ dans le plan). **a** : échantillon dont les pistes sont gravées (les bords des pistes sont bien visibles). **b** : (image prise par B. Boutigny, INSP) échantillon hydrogéné (aucun bord de piste visible). Les schémas sous chaque image représentent le profil des pistes dans l'épaisseur.

possède deux avantages : le premier est qu'elle permet de modifier le dopage sans modifier les contraintes ; la deuxième est qu'elle est totalement réversible et un recuit à 100 °C permet de retrouver les propriétés magnétiques originelles.

Cette méthode a été appliquée par Thevenard *et al.* [189] qui ont démontré l'effet d'une augmentation seule de la densité de porteurs sur la T_C (Fig. 2.8d) avec une évolution en $p^{1/3}$ comme prédit par la théorie, ainsi que sur les K_i (Fig. 2.8e). Notons que parmi les champs d'anisotropie planaires ($K_{4\parallel}$ et $K_{2\parallel}$), $K_{4\parallel}$ est le plus impacté par une variation de la densité de porteurs, tandis que $K_{2\parallel}$ en est indépendant ce qui est cohérent avec une origine structurale de ce dernier.

Un autre avantage de cette technique de passivation est qu'elle permet de délimiter des structures magnétiques par hydrogénation autour d'un masque sans procédure de gravure [191] ce qui facilite les études optiques lorsque les objets sont de l'ordre de la résolution du microscope (un exemple est donné dans la Fig. 2.9 sur des pistes micromagnétiques fabriquées en début de thèse pour une thématique de STT⁸).

En conclusion, un meilleur dopage augmente la T_C et renforce M_s . Concernant les axes faciles d'orientation, à faible dopage l'aimantation de (Ga,Mn)As en compression sur le substrat est hors-plan, à plus fort dopage, dans le plan. Nous voyons ici tout l'intérêt de (Ga,Mn)As : c'est à dire la possibilité d'obtenir l'anisotropie désirée afin de tester des effets les propriétés

⁸Spin-Transfer-Torque, propagation de parois sous courant polarisé en spin

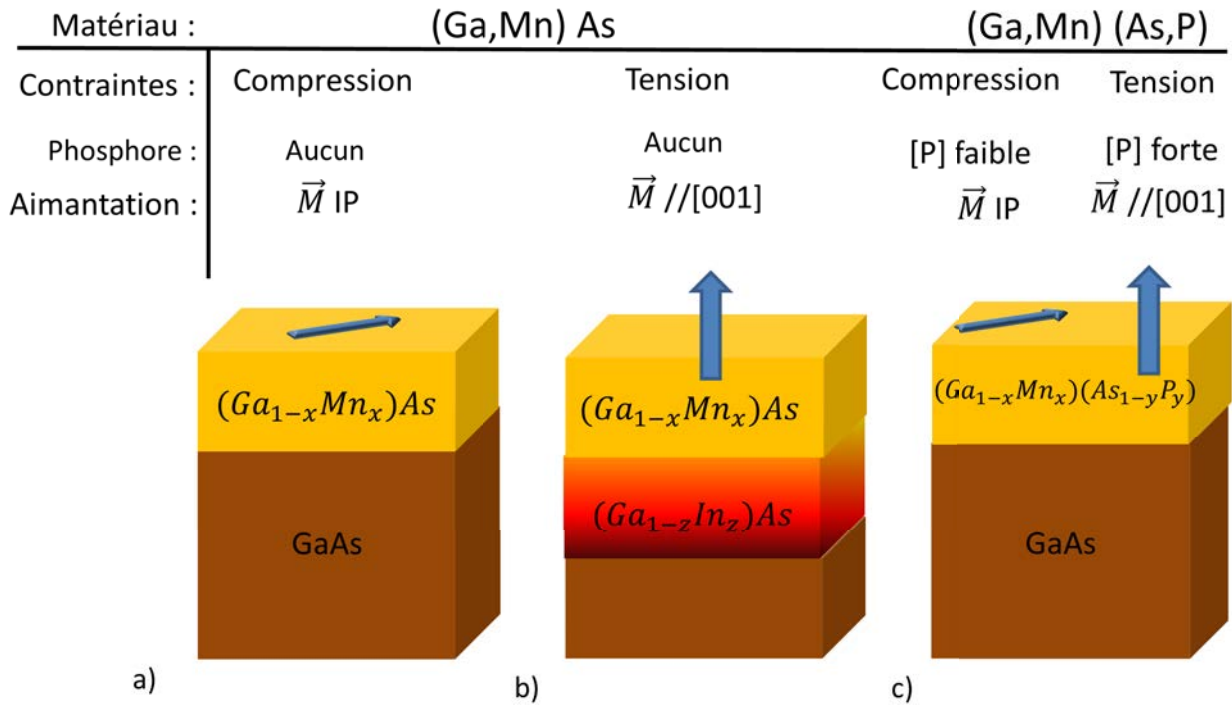


Figure 2.10: Schémas illustrant la modification de l'anisotropie magnéto-cristalline en fonction des paramètres des échantillons. **a** (Ga,Mn)As / GaAs , **b** (Ga,Mn)As / (Ga,In)As / GaAs , **c** (Ga,Mn)(As,P) / GaAs.

magnétiques. Dans cette thèse nous utilisons surtout des échantillons à aimantation planaire en compression dans un régime de fort dopage, avec une densité de porteurs supérieure à 10^{20} porteurs/cm³.

Modification des contraintes

Le dopage est un premier moyen efficace de modifier les K_i . Toutefois ce procédé est très limité dans le sens où $K_{2\parallel}$ est indépendant de l'effet. Le moyen le plus efficace pour modifier les K_i consiste à modifier directement les populations trous lourds/trous légers à densité de porteurs fixe. Pour des raisons pédagogiques, nous ne considérerons que des échantillons à forte densité de porteurs. Suivant que la couche est en compression ou en tension, on obtient soit des échantillons avec un axe facile dans le plan de l'échantillon, soit avec un axe facile suivant $[001]$ [42]. Plusieurs méthodes existent afin de faire varier les contraintes.

La première méthode pour modifier les contraintes consiste à faire croître (Ga,Mn)As sur différents substrats. De façon usuelle, (Ga,Mn)As est obtenu par croissance sur un substrat de GaAs. La maille de (Ga,Mn)As étant plus grande que celle de GaAs, on obtient naturellement une couche en compression et donc une aimantation dans le plan de la couche. Suivant la concentration en Mn, on favorise soit $K_{2\parallel}$ soit $K_{4\parallel}$. Pour obtenir une couche en tension, on fait croître le (Ga,Mn)As sur un substrat de (Ga,In)As [168] dont la concentration en In est ajustée afin d'obtenir la propriété désirée. Pour limiter la présence de défauts due à la différence de paramètres de maille entre (Ga,In)As et GaAs, les épitaxieurs utilisent des gradients de (Ga,In)As ce qui permet de relâcher les contraintes et éviter la remontée de dislocations dans la couche de (Ga,Mn)As [69][190]. On obtient ainsi une couche en tension et donc une

aimantation hors-plan. Ce type de méthode a été très utilisée durant les années 2000 pour étudier des échantillons à aimantation hors-plan.

Une autre méthode, plus directe, consiste à placer une couche de (Ga,Mn)As sur des transducteurs piézo-électriques [40]. Cette méthode a été utilisée par Nemec *et al.* [125] afin d'augmenter artificiellement $K_{2\parallel}$ permettant alors d'avoir une anisotropie uniaxiale avec une aimantation suivant [1-10]. Cette procédure a permis aux auteurs de mettre en évidence un mécanisme d'excitation dépendant de la polarisation des porteurs injectés optiquement. Nous reviendrons plus loin sur ce mécanisme d'excitation (partie **III** chapitre 2).

La dernière méthode permettant de modifier les contraintes a été réalisée pour la première fois en 2007 par Stone *et al.* [175] et consiste à substituer des atomes d'As par des atomes de phosphore dans (Ga,Mn)As, deux atomes isovalents. Le phosphore étant plus petit que l'As, on peut atteindre pour des concentrations en phosphore de l'ordre de quelques % des couches en tension avec une aimantation hors-plan [33]. On obtient ainsi du (Ga,Mn)(As,P) / GaAs qui sera le matériau le plus étudié au cours de ce manuscrit. L'avantage de (Ga,Mn)(As,P) par rapport à (Ga,Mn)As / (Ga,In)As est que l'on limite la présence de défauts due à la différence de paramètre de maille. Cette méthode permet d'obtenir des couches de bonne qualité avec peu de défauts, et une anisotropie magnéto-cristalline ajustable. Ainsi, avec la bonne proportion de phosphore, on peut obtenir des échantillons à aimantation planaire pour de fortes concentrations en Mn et de faibles anisotropies magnétiques dans le plan. Une première étude réalisée par Haghgoo *et al.* [65] a montré une auto-organisation des domaines magnétiques ce qui atteste d'un faible piégeage des parois de domaines Fig. 2.11d.

Autres DMS III-Mn-V

Nous venons de mentionner (Ga,Mn)(As,P), un DMS ayant une structure quelque peu modifiée par rapport à (Ga,Mn)As. Historiquement, la modification de la contraintes n'a pas été la première motivation pour la synthèse de (Ga,Mn)(As,P).

Après la découverte de (Ga,Mn)As, d'autres DMS basés sur des hôtes différents ont été étudiés comme GaN[173][154] [156], GaSb[3] et GaP[158]. L'idée de l'utilisation de ces différents matériaux était de faire varier la position de la bande d'accepteur du Mn par rapport aux bandes de valence en utilisant des matériaux avec des bandes interdites plus ou moins grandes. Ces études permettaient de confirmer l'applicabilité du modèle de l'origine du ferromagnétisme dans les DMS développé par Dietl *et al.* [42] (Fig. 2.11a) ainsi que la position même de la bande d'accepteurs.

Comparé aux autres semi-conducteurs III-Mn-V, GaP s'est révélé celui le plus proche en terme de propriétés électroniques par rapport à GaAs avec un niveau d'accepteur au dessus de la bande de valence. Après la première synthèse de (Ga,Mn)P par le groupe de Dubon *et al.*, ce même groupe s'orienta vers la synthèse de (Ga,Mn)(As,P) [175]. Leur première motivation était de tester le couplage J_{pd} à l'origine du ferromagnétisme dans (Ga,Mn)(As,P) en ajustant continument la largeur de la bande interdite. En effet une bande interdite plus large devait entraîner une hybridation moins forte entre les électrons p et d, entraînant une diminution de J_{pd} , et donc de l'interaction d'échange dans (Ga,Mn)(As,P). Toutefois Masek *et al.* [115] démontrèrent par calculs ab-initio que l'incorporation de phosphore réduit le volume de la maille cristalline, augmentant ainsi J_{pd} . L'augmentation de J_{pd} entraîne alors une augmentation de T_C , suffisamment importante pour atteindre 300 K.

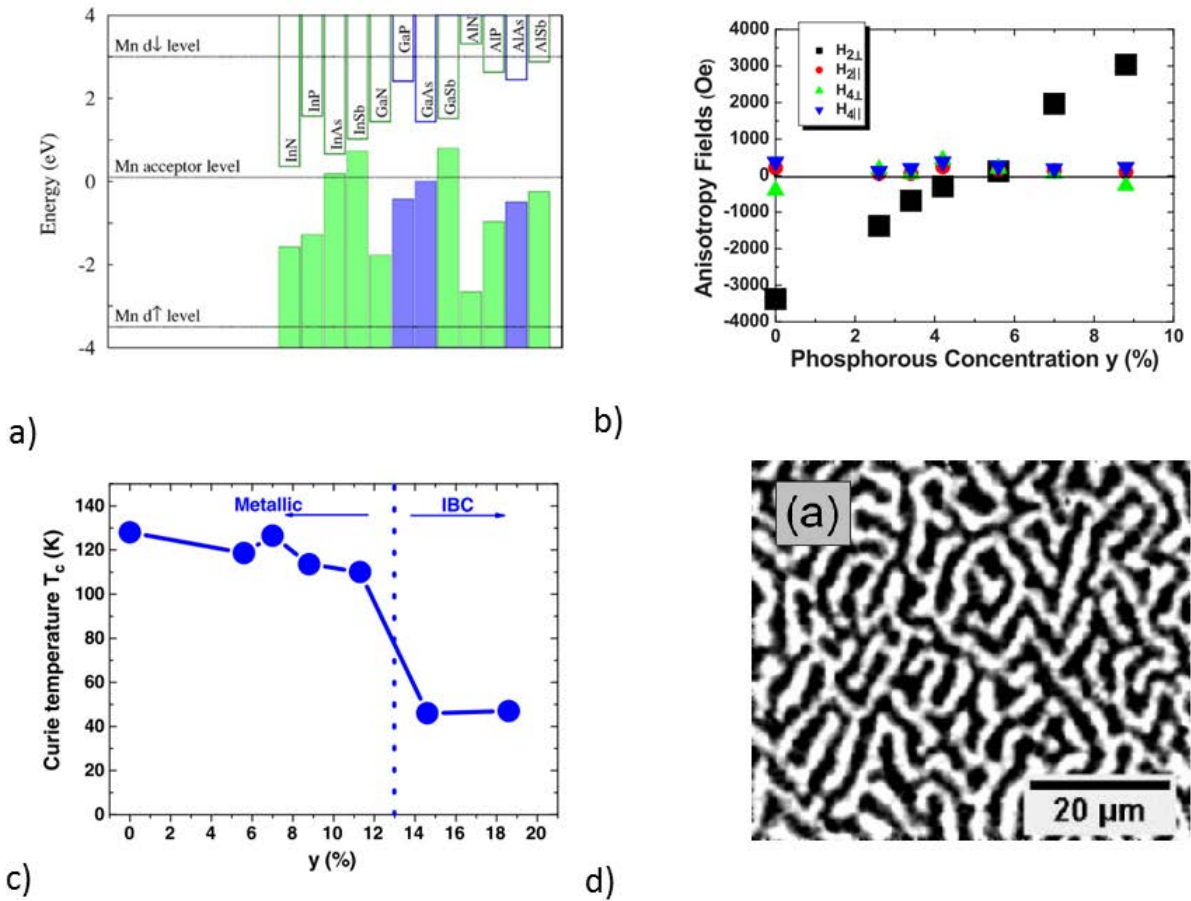


Figure 2.11: **a**: (Ref Masek *et al.* [115]) Niveaux d'énergie de la bande de conduction de valence et d'accepteur du Mn pour plusieurs composés de la famille III-Mn-V. **b**: (Ref Cubukcu *et al.* [33]) Evolution des K_i ($H_i = \frac{K_i}{\mu_0 M_s}$) en fonction de [P] avec [Mn]=7 %. **c**: (Cubukcu *et al.* [34]) Evolution de la température de Curie en fonction de la concentration en phosphore. **d**: (Ref Haghighi *et al.* [65]) image obtenue en microscopie Kerr de l'auto-organisation de domaines magnétiques dans (Ga,Mn)(As,P)

En comparaison de (Ga,Mn)As, (Ga,Mn)(As,P) n'a été que très peu étudié. Dès le début, la modification de l'anisotropie magnéto-cristalline a pu être mise en évidence par Lemaître *et al.* [99]. L'étude systématique de la modification de l'anisotropie magnéto-cristalline en fonction de la concentration en phosphore a été réalisée par Cubukcu *et al.* [33] par des expériences de résonance ferromagnétique (FMR) (Fig. 2.11b).

2.3.4 20 ans après la première synthèse de (Ga,Mn)As ...

Après vingt ans d'étude et près de deux mille articles et d'études portant sur des sujets allant de la caractérisation des propriétés magnétiques à la propagation de parois de domaine en passant par le renversement acoustique de l'aimantation [187] sur (Ga,Mn)As, la compréhension par la communauté des propriétés de (Ga,Mn)As ainsi que des différentes façons de les utiliser a

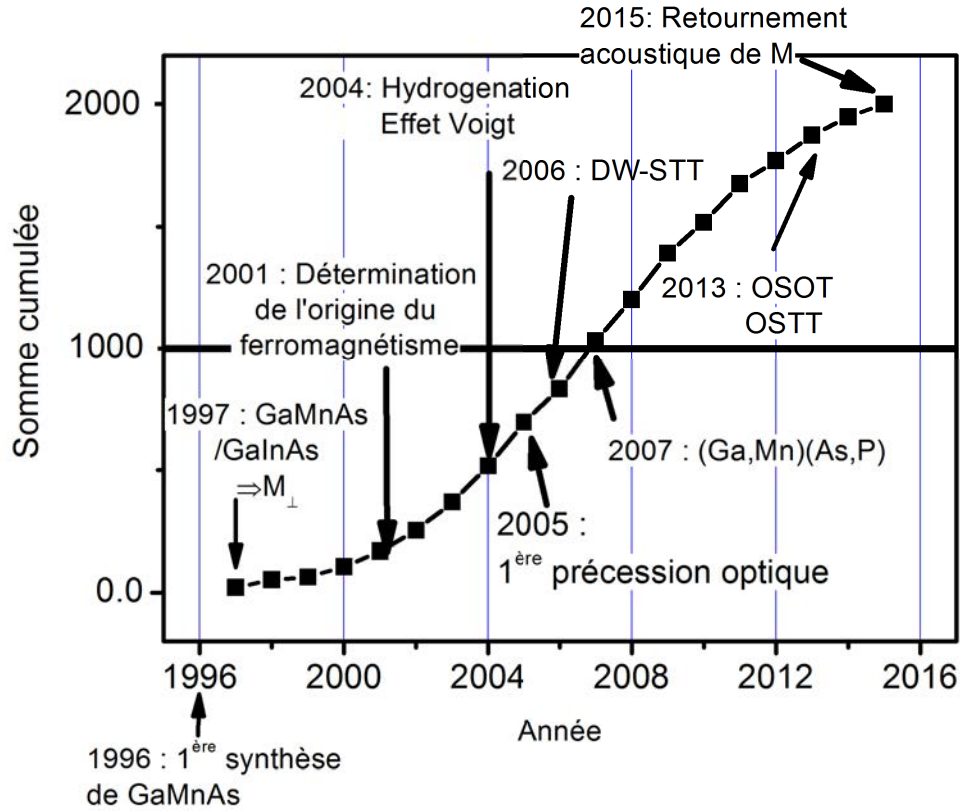


Figure 2.12: Somme cumulative des publications sur (Ga,Mn)As en fonction de l'année. Quelques faits marquants sont mis en avant. 1996 : Première synthèse de (Ga,Mn)As [126] ; 1997 : synthèse de (Ga,Mn)As sur un substrat de (Ga,In)As et obtention d'un $M_{\perp}$ [168] ; 2001 : théorie sur l'origine du ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As [42] ; 2004 : développement de la technique d'hydrogénation [63], observation d'un effet Voigt géant [87] ; 2005 : précession induite optiquement [129] ; 2006 : propagation de parois de domaines sous courant polarisé en spin [211] ; 2007 : synthèse de (Ga,Mn)(As,P) [175] ; 2013 : observation de l'OSOT [182] et l'OSTT [125] ; 2015 : retournement de l'aimantation par onde acoustique (Source Web of Knowledge le 29/09/2015, nombre total d'articles 2000)

considérablement augmenté. Si au début l'objectif majeur était de trouver des solutions pour augmenter T_C jusqu'à la température ambiante, désormais il semble acquis que l'on pourra difficilement dépasser les 200 K. Toutefois, grâce à tous les procédés de contrôle des propriétés magnétiques développés, (Ga,Mn)As est devenu au fil des années un matériau modèle afin de tester de nouveaux concepts pour l'électronique de spin [43][78] comme la propagation de parois sous courant ou le retournement de l'aimantation assisté par des ondes acoustiques [187].

Toutefois des débats continuent sur des questions fondamentales comme la localisation du niveau de Fermi (cf Samarth *et al.* [152]). Ce problème se pose depuis l'article de Dietl *et al.* [42] décrivant l'origine du ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As, et tire son origine de la difficulté d'observer la densité d'états près du niveau de Fermi. Concrètement, la question est de savoir si les trous apportés par les Mn se délocalisent réellement dans la bande de valence du GaAs ou restent dans la bande d'impureté du Mn détachée de la bande de valence. Dans le premier cas on a un gaz de trous (validant alors le modèle de Zener et correspondant à la description faite dans cette thèse), dans le deuxième cas des polarons magnétiques faiblement localisés autour des Mn. Ce débat a été relancé en 2014 par Kobayashi *et al.* [89] qui ont observé la bande d'accepteur par des techniques d'ARPES mais dans des échantillons de faible qualité (faible

T_C).

2.4 Echantillons

Les échantillons que nous utiliserons sont des couches de (Ga,Mn)(As,P) épitaxiées au Laboratoire de Photonique et Nanostructure par Aristide Lemaître, avec différentes concentrations en [Mn] et en phosphore. Ces échantillons seront par la suite dénommés Mn_xP_y , x représentant le pourcentage nominal en Mn et y en Phosphore de la couche. Différentes méthodes ont été utilisées afin de caractériser leurs propriétés structurales ainsi que magnétiques.

2.4.1 Caractérisation de T_C , M_s et de l'épaisseur

L'épaisseur des échantillons a été déterminée par Olivia Mauguin (LPN) en utilisant une technique de diffraction X. Lorsque les couches de (Ga,Mn)(As,P) ont des propriétés similaires par rapport au substrat (cas de couche peu contrainte), le pic de diffraction du substrat étant confondu avec celui de (Ga,Mn)As, la valeur considérée est celle fournie par les épitaxieurs. En général toute l'épaisseur de la couche de (Ga,Mn)(As,P) n'est pas forcément active à cause d'une fine couche oxydée en surface ce qui peut être mis en évidence soit par microscopie électronique par transmission, soit par XMCD (sur $Mn_{7.4.3}P_{4.3}$ de l'ordre de 3 nm). Toutes les épaisseurs données dans la Table 2.1 tiennent compte de la présence de cet oxyde et représente donc l'épaisseur magnétiquement active de (Ga,Mn)As.

La densité de porteurs n'a pas été évaluée dans nos échantillons. En général, celle-ci est réalisée par des expériences de transport en découplant les termes d'effet Hall normal (proportionnel à la densité de porteurs), et anormal dépendant de l'aimantation. Toutefois, l'effet anormal étant grand comparé à l'effet Hall normal à cause de l'aimantation dans (Ga,Mn)As, il est nécessaire d'aller soit à fort champ magnétique ($\mu_0 H > 1$ T) pour avoir une saturation de l'effet anormal, soit de se mettre à haute température dans la phase paramagnétique. Des expériences de transport en fonction du champ ont été réalisées sur la série d'échantillon présentée, mais celles-ci ne montent pas au delà de 1 T et peuvent donner des résultats avec de très fortes barres d'erreur [186]. D'autres techniques comme la spectroscopie Raman permettent également d'évaluer la densité de porteurs et ont été menées par Haghighi *et al.* précédemment sur (Ga,Mn)(As,P) sans plus de succès. Toutefois, l'aimantation de nos échantillons est comparable à d'autres dont la densité de porteurs est connue ($2 \cdot 10^{20}$ porteurs cm^{-3} Thevenard *et al.* [186]) ce qui nous donne un ordre d'idée de cette dernière.

L'aimantation à saturation, M_s , a été caractérisée systématiquement par SQUID⁹ par Cubukcu *et al.* en réalisant une courbe $M(T)$ pour des champs saturant les échantillons. Ces données ont été utilisées pour obtenir les constantes d'anisotropie pour tous les échantillons en fonction de la température grâce à la FMR. La concentration effective en Mn peut être évaluée en utilisant l'Eq. 2.5 à champ nul¹⁰ ($M_s = x_{eff} N_0 g \mu_B J$ avec $N_0 = 2.2 \cdot 10^{22} cm^{-3}$, la densité en site de cations avec $J = \frac{5}{2}$). On obtient pour tous les échantillons qu'environ la moitié des Mn seulement participent effectivement à l'aimantation.

⁹Superconducting Quantum Interferometer Device

¹⁰L'aimantation des trous égale à 10 % des Mn n'a pas été prise en compte.

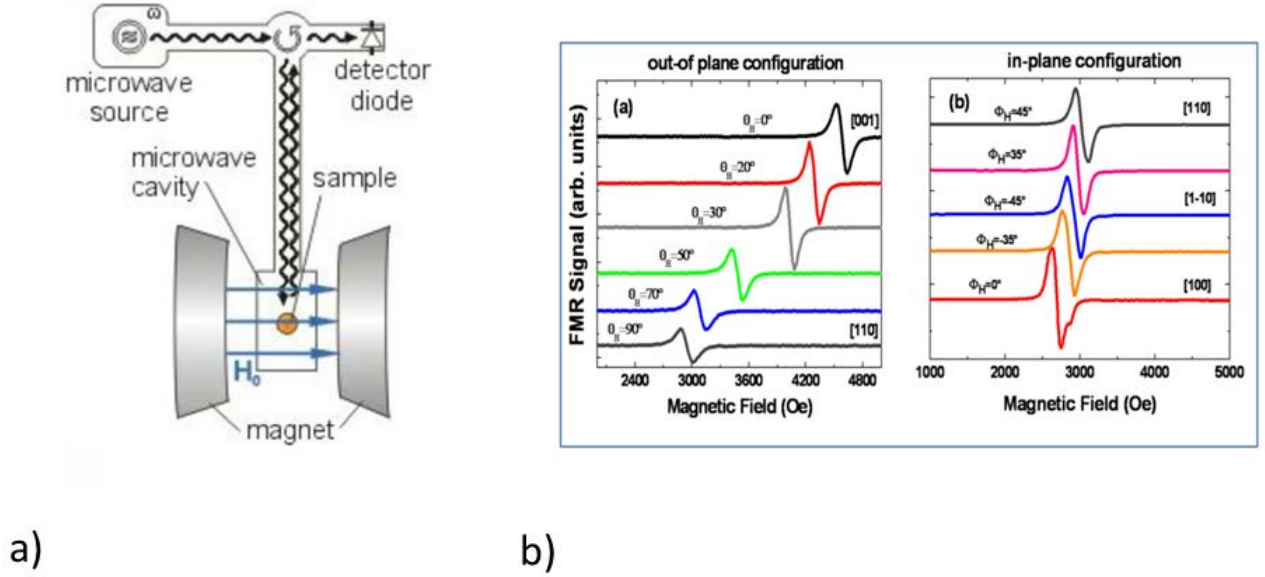


Figure 2.13: **a**: (Ref Khazen *et al.* [86]) Schéma expérimental illustrant le principe de la FMR. **b**: (Ref Cubukcu *et al.* [32]) Signaux FMR pris sur $\text{Mn}_7\text{P}_{3.4}$ à différents θ_H et ϕ_H .

2.4.2 Caractérisation des K_i : Résonance ferromagnétique (FMR)

La caractérisation des constantes d'anisotropie a été réalisée par M. Cubukcu et J. Von Bardeleben au sein du laboratoire grâce à des expériences de résonance ferromagnétique.

Le principe de ce type d'expérience consiste à exciter les ondes de spin d'un système magnétique grâce à un petit champ radio-fréquence ayant des fréquences typiques de l'ordre de quelques GHz (Fig. 2.13a). En général, la génération de ce champ se fait à l'aide d'une cavité, fixant la fréquence FMR. Toutefois, de nouvelles méthodes permettent d'exciter les ondes de spin en ajustement continu la fréquence FMR [13]. Lorsque la fréquence de ce champ est égale à la fréquence de l'onde de spin, la susceptibilité magnétique présentera une forte absorption. Tout le jeu consiste donc à pouvoir ajuster la fréquence du champ radio-fréquence avec les ondes de spins. Pour ce faire, on applique un champ externe (>0.1 T généralement) avec une orientation θ_H et ϕ_H , de préférence avec une valeur suffisamment forte pour aligner l'aimantation suivant son axe. La fréquence de précession du mode uniforme sera alors donnée par la formule usuelle de Smit-Beljers [77] définie par rapport aux dérivées secondes de l'énergie libre par :

$$\omega^2 = \frac{\gamma^2}{M_s^2 \sin^2 \theta_0} (F_{\theta\theta} F_{\phi\phi} - F_{\theta\phi}^2) \quad (2.10)$$

où $F_{ij} = \frac{\partial^2 F_a}{\partial i \partial j}$ à θ_0 et ϕ_0 correspondent à la position d'équilibre de l'aimantation. En FMR, ω étant imposée, on ajuste la valeur du champ ($\mu_0 H_{res}$) de sorte à ce que l'onde spin entre en résonance avec le champ rf. H_{res} dépendra principalement des constantes d'anisotropie, de M_s , de g . Des spectres typiques obtenus en FMR sont portés dans la Fig. 2.13b. Lorsque M_s (pouvant être mesuré avec un SQUID), et g sont connus, il est possible de déterminer les K_i en ayant mesuré le champ pour plusieurs orientations de θ_H ou ϕ_H . g peut être obtenu en mesurant la pente à fort champ de la fréquence de précession en fonction du champ par des techniques résolues en temps (TRMOKE) ou encore en ayant toute la dépendance en ϕ_H pour H_{res} . Expérimentalement, cette procédure n'a été réalisée par Cubukcu *et al.* que sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$.

et les auteurs ont trouvé $g=1.93$ à $T=4$ K (la quantité est réduite à cause de la contribution des trous [171]), et $g=2$ à T_C . En l'absence de données pour les autres échantillons, nous avons utilisé systématiquement $g=2$.

L'évolution des K_i en fonction de la température pour chaque échantillon est placé en annexe (voir Appendice B) et nous résumons les propriétés de chacun dans la Table 2.1. Chaque échantillon de type $(\text{Ga}_{1-x}, \text{Mn}_x)(\text{As}_{1-y}, \text{P}_y)$ est désigné par la nomenclature Mn_xP_y .

Nomenclature	Echantillon	[Mn] (%)	[Mn _{eff}] (%)	[P] (%)	Lm (ppm)	ϵ_{zz} (%)	$M_s(4K)$ (kA/m)	T _C (K)	Epaisseur (nm)	Aimantation
Mn _{10.4} P _{8.8}	B8P48	10.4	4.9	8.8	-5120	-0.24	50	117	46±5	M _⊥
Mn _{10.4} P _{5.1}	B8P51	10.4	5	5.1	-1800	-0.09	51	121	47±5	M _∥
Mn _{10.4} P ₀	C8P53	10.4	4.7	0	6890	0.33	36	130	46±1	M _∥
Mn ₇ P ₀	C8P54	7	3.5	0	4990	-0.24	36	110	45±2	M _∥
Mn ₇ P ₇	C8P56	7	3.8	7	-3580	0.17	39.2	81	50±5	M _⊥
Mn ₇ P _{5.6}	C8P57	7	4.2	5.6	-2320	0.11	42.6	86	46±3	M _∥
Mn ₇ P _{4.3}	C8P59	7	4	4.3	-1200	0.06	40.75	85	50±5	M _∥
Mn ₇ P _{3.4}	C8P60	7	3.7	3.4	0	0	37.3	120	50±5	M _∥
Mn ₇ P _{2.6}	C8P61	7	3.7	2.6	280	-0.01	37.7	134.5	50±5	M _∥
Mn ₇ P _{5.6}	49P71	7	3.1	5.6	<-1100	-0.05	32	101	50±5	M _⊥
Mn _{6.64} P _{6.64}	49P73	5	4.9	6.64	1480	-0.07	50	116	46±1	M _⊥

Table 2.1: Tableau des échantillons récapitulant leurs différentes caractéristiques. La concentration effective en Mn_{eff} a été obtenue en utilisant la formule $M_s = g\mu_B S x_{eff} N_0$ à champ nul (voir l'Eq. 2.5). L'aimantation des trous n'a pas été prise en compte.

Partie II

Effets magnéto-optiques et technique expérimentale

Chapitre 3

Effets magnéto-optiques

Les effets magnéto-optiques sont des processus décrivant l'interaction d'une lumière polarisée avec la matière aimantée ou soumise à un champ magnétique. Historiquement, ces processus ont été découverts par M. Faraday en 1845 [52], au moment où l'on s'interrogeait sur l'action d'un courant électrique sur la polarisation. M. Faraday a observé qu'une lumière avec une polarisation linéaire, se propageant dans un milieu plongé dans un champ magnétique appliqué suivant l'axe de propagation de la lumière, voyait sa polarisation tourner et devenir elliptique

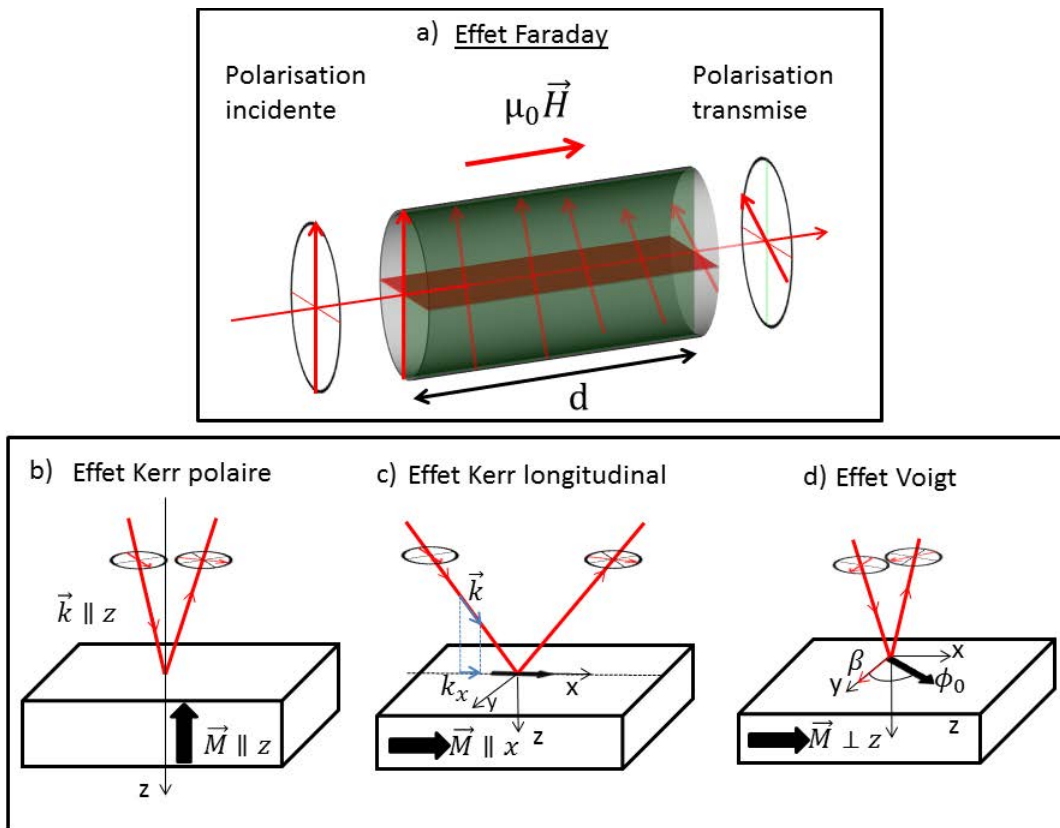


Figure 3.1: Schéma représentant les principaux effets magnéto-optiques. **a**: Effet Faraday. **b**: Effet Kerr polaire : l'aimantation est hors-plan ; le vecteur d'onde de la lumière incidente est perpendiculaire au plan de la couche. **c**: Effet Kerr longitudinal : l'aimantation est dans le plan ; l'effet est proportionnel à la projection du vecteur d'onde de la lumière sur l'aimantation. **d**: Effet Voigt : aimantation planaire ; la rotation est proportionnelle à $M_{\parallel}$

(Fig. 3.1). Cette même observation a été réalisée par J. Kerr en 1877 [84] en étudiant cette fois-ci la réflexion d'une onde polarisée sur des miroirs aimantés. Entre 1895 et 1911, le pouvoir rotatoire magnétique due à l'absorption de la lumière a ensuite été étudié par W. Voigt, A. Cotton et H. Mouton tout d'abord avec de la lumière polarisée circulairement [4] dans des composés comme la liqueur de Thoulet, puis avec de la lumière polarisée linéairement [5]. La rotation de la polarisation a été rapprochée des phénomènes de dichroïsme et est désormais connu sous le nom d'effet Voigt, ou Cotton-Mouton.

Le principe général des effets magnéto-optiques repose sur une différence d'indice de réfraction suivant les vecteurs propres de propagation de la lumière dans le matériau. Suivant les effets considérés, on peut avoir une différence d'indice entre des polarisations levogyre et dextrogyre dans le cas de l'effet Kerr polaire (aussi appelé biréfringence magnétique circulaire [2]), ou encore entre des axes parallèle et perpendiculaire à l'aimantation dans le cas de l'effet Voigt (aussi appelé dichroïsme magnétique linéaire).

Du fait de leurs sensibilités, les effets magnéto-optiques suscitent beaucoup d'intérêt dans l'étude et la caractérisation des matériaux magnétiques en tant que technique non destructive et ce dans de nombreux domaines. Par exemple, ceux-ci sont utilisés pour la détection de fraude sur des billets de banques imprimés avec une encre magnétique (euros, ou dollars par exemple), pour la caractérisation de système de stockage magnétique (disque dur) ou encore pour empêcher le retour des faisceaux lasers grâce aux isolateurs de Faraday. En recherche les applications permettent entre autres de visualiser des domaines magnétiques [6], évaluer les constantes d'anisotropie ou encore de résoudre la dynamique de l'aimantation comme on le verra par la suite.

Les effets magnéto-optiques que l'on peut observer dépendent du matériau ainsi que de la géométrie expérimentale. De façon usuelle, l'effet Faraday concerne la géométrie en transmission, l'effet Kerr la géométrie en réflexion (Fig. 3.1a). L'effet Kerr polaire s'observe en présence d'une aimantation hors-plan en incidence normale (Fig. 3.1b). L'effet Kerr longitudinal s'observe en incidence oblique et implique la projection du vecteur d'onde, parallèle à l'aimantation (Fig. 3.1c avec $\vec{M} \parallel \vec{u}_x$). L'effet Voigt est un effet du deuxième ordre, sensible à la composante dans le plan de l'échantillon de l'aimantation, et dépend de l'angle entre la polarisation (β) et l'aimantation (ϕ_0). Dans le cadre de ce manuscrit, le faisceau incident a une incidence normale au plan de l'échantillon ; ainsi les seuls effets considérés seront l'effet Kerr polaire et l'effet Voigt.

3.1 Tenseur diélectrique et équations de Maxwell

Dans un premier temps, nous allons définir les équations de base qui vont nous servir pour le reste du manuscrit.

3.1.1 Equations de Maxwell

Les effets magnéto-optiques peuvent se décrire macroscopiquement avec les équations de Maxwell dont on précise ici les notations :

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (3.1)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \vec{J} + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (3.2)$$

$$(3.3)$$

avec $\vec{J}$ la densité de courant, et ρ la densité de charge. On introduit aussi le vecteur déplacement électrique dans un matériau linéaire $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \epsilon_r \vec{E}$ et le champ $\mu_0 \vec{H} = \vec{B} - \mu_0 \vec{M}$. On obtient alors deux équations supplémentaires :

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0 \quad (3.4)$$

A partir des équations de Maxwell, on introduit aussi l'équation de propagation pour $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}$:

$$n^2 \vec{E} - \vec{n}(\vec{n} \cdot \vec{E}) = \epsilon_r \vec{E} \quad \vec{n} = \frac{\vec{k}c}{\omega} \quad (3.5)$$

Par la suite, on considèrera une onde électromagnétique se propageant suivant $\vec{u}_z$.

3.1.2 Tenseur diélectrique

A l'échelle microscopique, les effets magnéto-optiques reposent sur l'interaction spin-orbite couplant le moment magnétique d'un électron avec son moment angulaire ($\mathbf{H}_{\text{SO}} = -\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$)[75][7]. Une lumière incidente polarisée linéairement peut être décomposée en une polarisation levogyre et dextrogyre. Ces polarisations circulaires vont exciter une transition électronique en changeant la projection du moment angulaire d'un électron m , suivant les règles de sélection $\Delta m = \pm 1$, changeant ainsi son moment cinétique total $\mathbf{J}$ avec $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ où $\mathbf{J}$ représente l'opérateur moment cinétique total, $\mathbf{L}$ le moment cinétique orbital et $\mathbf{S}$ le moment cinétique de spin. Puisque $\mathbf{S}$ est conservé, seul $\mathbf{L}$ va varier créant un champ spin-orbite différent suivant la polarisation.

L'hamiltonien total du système étudié s'écrit $\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_{\text{SO}} + \mathbf{H}_{\text{lumiere}}$, avec $\mathbf{H}_{\text{lumiere}}$ l'hamiltonien décrivant l'interaction de la lumière, et $\mathbf{H}_0$ l'hamiltonien décrivant les électrons dans le champ cristallin. Les effets magnéto-optiques s'obtiennent en calculant la densité de courant macroscopique comprenant le tenseur de polarisabilité χ_{el} et de conductivité σ du système en traitant $\mathbf{H}_{\text{lumiere}}$ comme une perturbation sur les états propres du système. Dans le cas des métaux, on calcule la densité de courant qui prend alors la forme générale [110][7] $\vec{J} = \epsilon_0 \chi_{\text{el}} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \sigma \vec{E}$. Cette notation est condensée en considérant le tenseur diélectrique $\epsilon = 1 + \chi_{\text{el}} - \sigma / i\omega \epsilon_0$. Dans (Ga,Mn)As à cause des multiples transitions électroniques possibles, les éléments du tenseur diélectrique sont calculés à partir de la formule de Kubo en sommant sur toutes les transitions optiques dans la première zone de Brillouin entre la bande de valence et de conduction[170][176].

Soit un milieu diélectrique possédant une aimantation spontanée de vecteur unitaire $\vec{m} = \vec{M}/M_s$. Le tenseur diélectrique à symétrie cubique prend la forme suivante[6] :

$$\epsilon_r = \epsilon \begin{bmatrix} 1 & -iQm_z & iQm_y \\ iQm_z & 1 & -iQm_x \\ -iQm_y & iQm_x & 1 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} B_1m_x^2 & B_2m_xm_y & B_2m_xm_z \\ B_2m_xm_y & B_1m_y^2 & B_2m_y m_z \\ B_2m_xm_z & B_2m_y m_z & B_1m_z^2 \end{bmatrix} \quad (3.6)$$

ϵ correspond à la constante diélectrique du matériau, Q le paramètre de Voigt proportionnel à l'aimantation M_s (ou au champ), m_x, m_y, m_z les composantes réduites de l'aimantation et B_1 et B_2 des paramètres magnéto-optiques décrivant l'effet Voigt. Le système de coordonnées utilisé est celui de la Fig. 3.1b. Notons que le cas $B_1=B_2$ correspond à une symétrie sphérique pour la partie en M^2 du tenseur diélectrique. De manière générale, on voit immédiatement que les effets magnéto-optiques du premier ordre vont dépendre des éléments non diagonaux du tenseur diélectrique.

3.1.3 Rotation et ellipticité

Pour la bonne compréhension de la suite du texte, on rappelle ici quelques formules usuelles pour caractériser la rotation et l'ellipticité d'une polarisation. Considérons une polarisation elliptique orientée suivant $\vec{x}$ avec une ellipticité ψ_K , dans le formalisme de Jones.

Considérons un faisceau avec une polarisation linéaire que l'on fait traverser un premier milieu rendant sa polarisation elliptique (ψ_K), puis un deuxième milieu faisant tourner sa polarisation d'un angle $\delta\beta_K$. Soit $\vec{E}_f$ le vecteur représentant la polarisation après passage du deuxième milieu. On a :

$$\begin{pmatrix} E_{fx} \\ E_{fy} \end{pmatrix} = E_0 \begin{pmatrix} \cos \delta\beta_K & -\sin \delta\beta_K \\ \sin \delta\beta_K & \cos \delta\beta_K \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \psi_K \\ i \sin \psi_K \end{pmatrix} \quad (3.7)$$

On définit le paramètre $\chi = \frac{E_{fy}}{E_{fx}}$. La rotation $\delta\beta_K$ et l'ellipticité ψ_K de l'état de la polarisation après le passage dans le milieu se déduit alors directement de χ .

$$\chi = \frac{\tan(\delta\beta_K) + i \tan(\psi_K)}{1 - i \tan(\delta\beta_K) \tan(\psi_K)} \quad \Rightarrow \quad \boxed{\tan(2\delta\beta_K) = \frac{2\text{Re}(\chi)}{1 - |\chi|^2}} \quad ; \quad \boxed{\sin(2\psi_K) = \frac{2\text{Im}(\chi)}{1 + |\chi|^2}} \quad (3.8)$$

Notons que dans le cas où l'on considère une petite rotation et ellipticité c'est à dire, χ petit, $\chi = \delta\beta_K + i\psi_K$; ainsi la partie réelle donnera directement la rotation et la partie imaginaire l'ellipticité.

3.2 Effet Faraday

Les effets Kerr polaire et Faraday interviennent pour des matériaux où l'aimantation possède une composante suivant l'axe z . Considérons $\vec{M} \parallel \vec{z}$ soit $m_z = 1$. Le tenseur de l'Eq. 3.6 se réduit alors à :

$$\epsilon_r = \epsilon \begin{bmatrix} 1 & -iQ & 0 \\ iQ & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 + B_1/\epsilon \end{bmatrix} \quad (3.9)$$

En utilisant $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0$ on obtient le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} (n^2 - \epsilon)E_{0x} + iQ \epsilon E_{0y} = 0 \\ -iQ \epsilon E_{0x} + (n^2 - \epsilon)E_{0y} = 0 \end{cases} \quad (3.10)$$

Les valeurs propres de l'équation sont alors données par :

$$(n^2 - \epsilon)^2 + (i\epsilon Q)^2 = 0 \quad \Rightarrow \quad \boxed{n_{\pm}^2 = \epsilon(1 \pm Q)} \quad (3.11)$$

associées aux vecteurs propres :

$$\vec{E}_+ = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{-i\omega(t - \frac{n_+}{c}z)} \quad (3.12)$$

$$\vec{E}_- = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{-i\omega(t - \frac{n_-}{c}z)} \quad (3.13)$$

Les vecteurs propres $E_{\pm}$ correspondent à une polarisation levogyre (E_+) et dextrogyre (E_-).

Considérons une onde électromagnétique incidente polarisée linéairement suivant $\vec{u}_x$, $\vec{E} = (E_0, 0)$. A l'intérieur du milieu celle-ci se décompose sur les vecteurs propres $e_{\pm}$.

$$\vec{E}_{milieu}(t, z) = c_+ E_+ + c_- E_- \quad (3.14)$$

A partir des conditions de continuité en $z = 0$ sur la composante tangentielle de $\vec{E}$ et de $\vec{H}$, on en déduit $c_+ = c_- = \frac{E_0}{\sqrt{2}}$. On obtient alors :

$$E(z) = E_0 \begin{pmatrix} \cos[\frac{1}{c}\omega\Delta n z] \\ -\sin[\frac{1}{c}\omega\Delta n z] \end{pmatrix} e^{-i\omega(t - \frac{1}{c}n_0 z)} \quad (3.15)$$

avec, $n_0 = \frac{n_+ + n_-}{2} = \sqrt{\epsilon}$ et $\Delta n = \frac{n_+ - n_-}{2} = \frac{1}{2}n_0 Q$. Si ϵ et Q sont réels. En utilisant l'Eq. 3.8, on obtient dans l'approximation d'une petite rotation :

$$\boxed{\delta\beta_F = -\frac{1}{c}\omega\Delta n z = -\frac{\omega n_0}{2c}Qz} \quad (3.16)$$

Ainsi, l'Eq. 3.16 montre que la rotation faraday est proportionnelle à la différence d'indice ($n_{\pm}$) donc au paramètre de Voigt Q (proportionnel à M_s) et à la distance parcourue (z). Dans le cas des matériaux paramagnétiques, on définit la constante de Verdet B_v en $\text{deg T}^{-1} \text{mm}^{-1}$ ce qui donne des rotations de la forme $\delta\beta_F = B_v \mu_0 H z$ où H représente le champ appliqué.

Les rotations Faraday dans les matériaux ferro(i)magnétiques sont typiquement de quelques dizaines de degrés par mm à quelques dizaines de degrés par μm (par exemple $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$: 28 deg mm^{-1}). Dans les matériaux paramagnétiques, des rotations Faraday peuvent être observées lorsque l'on applique un champ magnétique mais avec des ordres de grandeurs beaucoup plus faibles du fait que l'aimantation moyenne est faible en comparaison d'un matériau ferromagnétique. Par exemple dans la lentille que l'on place devant notre échantillon, une rotation de $0.084 \text{ deg T}^{-1} \text{mm}^{-1}$, soit $0.084 \text{ deg mm}^{-1}$ avec un champ d'1 T a pu être mesurée ; les plus fortes rotations enregistrées étant de $0.76 \text{ deg T}^{-1} \text{mm}^{-1}$ dans des composés des grenats de terbium et de gallium, couramment utilisés dans les isolateurs de Faraday.

¹On parlera plutôt en radian par la suite : $1.47 \text{ mrad T}^{-1} \text{mm}^{-1}$

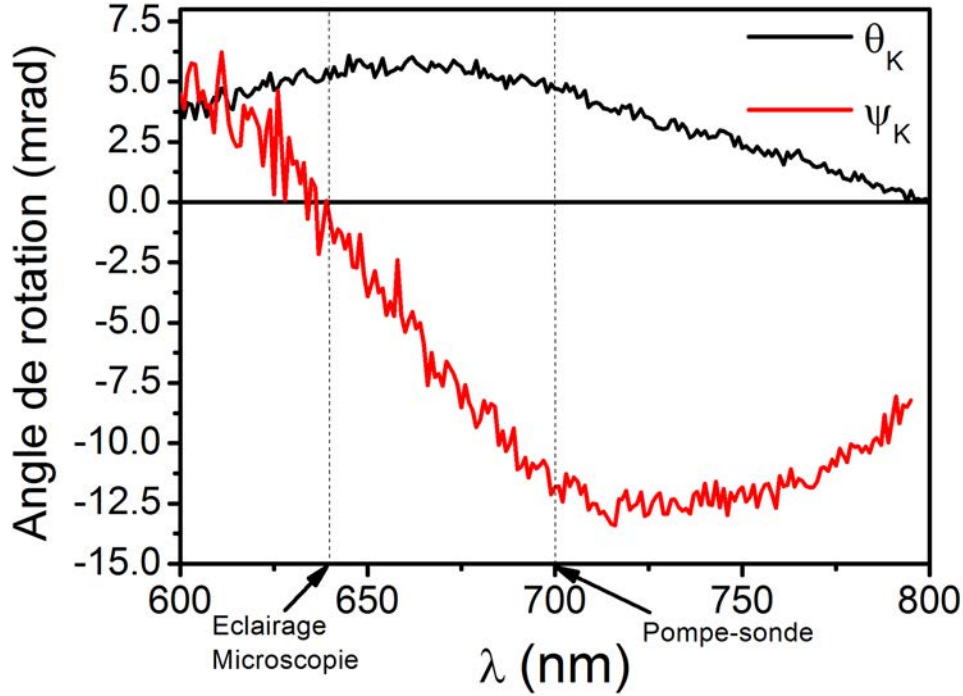


Figure 3.2: Rotation et ellipticité Kerr statique pour Mn_8P_7 à $T=10$ K en fonction de la longueur d'onde. Les deux longueurs d'onde les plus utilisées dans cette thèse sont représentées en pointillés (mesure réalisée par Hasen Riahi).

3.3 Effet Kerr polaire

L'effet Kerr polaire se déduit directement de l'effet Faraday sauf que l'on considère cette fois la géométrie en réflexion. Le champ électrique réfléchi est donné par :

$$\vec{E}_r = \frac{1}{\sqrt{2}} E_{r+} \vec{e}_+ + \frac{1}{\sqrt{2}} E_{r-} \vec{e}_- \quad (3.17)$$

avec $\vec{E}_{r\pm} = \vec{E}_i \frac{1-n_{\pm}}{1+n_{\pm}}$ donné directement par les formules de Fresnel, et $n_{\pm} = n_0(1 \pm \frac{1}{2}Q)$, avec $n_0 = \sqrt{\epsilon}$. On obtient alors :

$$\vec{E}_r = \frac{1}{2} \vec{E}_i \left(i \left[\frac{1-n_+}{1+n_+} - \frac{1-n_-}{1+n_-} \right] \right) = \vec{E}_i \left(\frac{\frac{1-n_0}{1+n_0} - \frac{-in_0 Q}{(n_0+1)^2}}{2} \right) \quad (3.18)$$

On obtient alors la rotation et l'ellipticité dans le cas statique :

$$\delta\beta_K = \text{Im} \left[\frac{n_0 Q}{n_0^2 - 1} \right] m_z = P_{\text{Kerr}} m_z \quad (3.19)$$

$$\psi_K = -\text{Re} \left[\frac{n_0 Q}{n_0^2 - 1} \right] m_z = P'_{\text{Kerr}} m_z \quad (3.20)$$

avec $P_{\text{Kerr}} = \text{Im} \left[\frac{n_0 Q}{n_0^2 - 1} \right]$ et $P'_{\text{Kerr}} = -\text{Re} \left[\frac{n_0 Q}{n_0^2 - 1} \right]$.

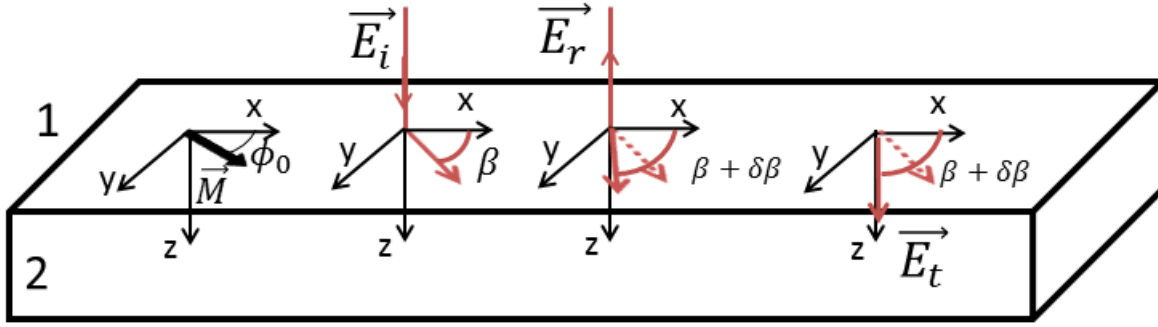


Figure 3.3: Repère de coordonnées pour le calcul de l'effet Voigt et de l'effet Kerr. β indique l'angle de la polarisation incidente avec le vecteur $\vec{x}$, $\delta\beta$ l'angle de rotation de la polarisation due à l'effet Voigt (ou Kerr), $\vec{E}_{i,r,t}$ représente le champ électrique de l'onde incidente, réfléchie et transmise respectivement. Dans le cas de l'effet Kerr, l'aimantation est hors plan (non indiqué sur la figure).

Les rotations de polarisation dues à l'effet Kerr polaire sont de l'ordre du mrad (9.2 mrad pour le Fe par exemple) et dépendent de la longueur d'onde. Dans (Ga,Mn)(As,P) ceux-ci sont de l'ordre de quelques mrad pour les effets statiques comme le montre la Fig. 3.2 obtenue dans des expériences d'effet Kerr résolu spectralement². Dans cette thèse nous nous sommes principalement intéressés à la rotation. Nous avons donc utilisé des longueurs d'ondes pour notre imagerie et notre faisceau laser proche du pic en longueur d'onde de la rotation.

3.4 Effet Voigt

L'état magnétique d'un système à aimantation dans le plan de l'échantillon peut être caractérisé en utilisant les effets Kerr longitudinaux et Voigt. Là où l'effet Kerr longitudinal nécessite que le vecteur d'onde de la lumière incidente ait une composante selon l'aimantation, nécessitant un angle d'incidence oblique, l'effet Voigt peut s'observer pour un faisceau laser polarisé linéairement en incidence normale. Ce dernier est en général plus faible que l'effet Kerr longitudinal et donc plus rarement utilisé (la première observation date des années 90 [159]), néanmoins dans (Ga,Mn)As cet effet est géant [87]. Du fait de notre géométrie expérimentale, nous utiliserons principalement l'effet Voigt. Nous présenterons ici le cas général avec une aimantation orientée dans le plan de l'échantillon, avec la symétrie sphérique ($B_1 = B_2$).

Pour calculer la rotation et l'ellipticité de l'effet Voigt, il faut considérer les termes en M^2 dans le tenseur diélectrique. Pour une aimantation quelconque dans le plan (x,y,0), avec l'aimantation repérée par l'angle ϕ_0 avec l'angle $\vec{u}_x$, celui-ci prend la forme suivante :

$$\epsilon_r = \epsilon \begin{bmatrix} 1 & 0 & iQ \sin \phi_0 \\ 0 & 1 & -iQ \cos \phi_0 \\ -iQ \sin \phi_0 & iQ \cos \phi_0 & 1 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} B_1 \cos^2 \phi_0 & B_2 \cos \phi_0 \sin \phi_0 & 0 \\ B_2 \cos \phi_0 \sin \phi_0 & B_1 \sin^2 \phi_0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (3.21)$$

Lorsque l'aimantation est dans le plan perpendiculaire au plan d'incidence de la lumière incidente, à l'intérieur du matériau, les vecteurs $\vec{D}$ et $\vec{E}$ ne sont plus colinéaires et les trois composantes du champ électrique peuvent être non nulles de sorte à satisfaire l'équation de propagation. En considérant $\vec{D}$, $\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0$ impose $\vec{D} = (D_x, D_y, 0)$ à l'intérieur du matériau,

²H. Riahi *et al.* communication privée.

rendant ainsi les calculs plus simples.

L'équation de propagation se résout en calculant l'inverse du tenseur diélectrique. On calcule les quantités $\vec{E} = \epsilon_r^{-1} \vec{D}$ que l'on réinjecte dans l'Eq. 3.5. On obtient alors à l'intérieur du matériau le système d'équations :

$$\begin{cases} (\epsilon_{xx}^{-1} - \frac{1}{n^2})D_x + \epsilon_{xy}^{-1}D_y = 0 \\ \epsilon_{yx}^{-1}D_x + (\epsilon_{yy}^{-1} - \frac{1}{n^2})D_y = 0 \end{cases} \quad (3.22)$$

où ϵ_{ij}^{-1} représente les composantes du tenseur diélectrique inverse.

L'étape suivante consiste à calculer les valeurs propres de l'Eq. 3.22 correspondant aux carrés des inverses des indices de réfraction pour le matériau. On obtient alors en développant au premier ordre sur B_1 et Q^2 :

$$n_{\parallel}^2 = \epsilon + B_1 \quad (3.23)$$

$$n_{\perp}^2 = \epsilon(1 - Q^2) \quad (3.24)$$

Les vecteurs propres se déduisent directement de l'Eq. 3.22 en calculant :

$$\begin{cases} D_x = \frac{-n^2 \epsilon_{xy}^{-1}}{(n^2 \epsilon_{xx}^{-1} - 1)} D_y \\ D_y = \frac{-n^2 \epsilon_{yx}^{-1}}{(n^2 \epsilon_{yy}^{-1} - 1)} D_x \end{cases} \quad (3.25)$$

On obtient alors les vecteurs propres associés aux indices de propagation $n_{\parallel, \perp}$ pour $D_{\parallel, \perp}$, et $E_{\parallel, \perp} = \epsilon_r^{-1} D_{\parallel, \perp}$:

$$D_{\parallel} = \begin{pmatrix} \cos \phi_0 \\ \sin \phi_0 \\ 0 \end{pmatrix} ; E_{\parallel} = \begin{pmatrix} \frac{\cos \phi_0}{B_1 + \epsilon} \\ \frac{\sin \phi_0}{B_1 + \epsilon} \\ 0 \end{pmatrix} ; D_{\perp} = \begin{pmatrix} -\sin \phi_0 \\ \cos \phi_0 \\ 0 \end{pmatrix} ; E_{\perp} = \frac{1}{n_0^2} \begin{pmatrix} \frac{\sin \phi_0}{(Q^2 - 1)} \\ \frac{\cos \phi_0}{(1 - Q^2)} \\ \frac{-iQ}{(1 - Q^2)} \end{pmatrix} \quad (3.26)$$

La rotation $\delta\beta_V$ se calculant à partir de $\chi = \frac{E_{ry}}{E_{rx}}$, on calcule les composantes de l'onde réfléchie en utilisant la continuité de la composante tangentielle de $\vec{E}$ et de $\vec{H}$ à l'interface entre le milieu 1 et 2, magnétique, avec $\vec{H}$ calculé à partir de l'Eq. 3.4. En prenant en compte que l'onde transmise se décompose dans le milieu magnétique suivant les vecteurs propres en $\alpha\vec{E}_{\parallel} + \beta\vec{E}_{\perp}$, on obtient le système d'équation suivant :

$$\begin{cases} \alpha \left(\frac{D_{y\parallel}}{n_{\parallel}} \right) + \beta \left(\frac{D_{y\perp}}{n_{\perp}} \right) + E_{ry} = E_{0y} \\ \alpha \left(\frac{D_{x\parallel}}{n_{\parallel}} \right) + \beta \left(\frac{D_{x\perp}}{n_{\perp}} \right) + E_{rx} = E_{0x} \\ \alpha E_{x\parallel} + \beta E_{x\perp} - E_{rx} = E_{0x} \\ \alpha E_{y\parallel} + \beta E_{y\perp} - E_{ry} = E_{0y} \end{cases} \quad (3.27)$$

Avec $E_{0x} = E_0 \cos(\beta)$ et $E_{0y} = E_0 \sin(\beta)$, on obtient:

$$E_{rx} = E_0 \frac{(1 - n_{\perp} n_{\parallel}) \cos(\beta) + (n_{\perp} - n_{\parallel}) \cos(\beta - 2\phi_0)}{(1 + n_{\parallel})(1 + n_{\perp})} \quad (3.28)$$

$$E_{ry} = E_0 \frac{(1 - n_{\perp} n_{\parallel}) \sin(\beta) - (n_{\perp} - n_{\parallel}) \sin(\beta - 2\phi_0)}{(1 + n_{\parallel})(1 + n_{\perp})} \quad (3.29)$$

$$(3.30)$$

On calcule ensuite χ en développant l'expression au premier ordre en B_1 et Q^2 :

$$\chi = \frac{(B_1 + n_0^2 Q^2) \sin[2(\phi_0 - \beta)]}{2n_0(n_0^2 - 1) \cos(\beta)^2} + \tan(\beta) \quad (3.31)$$

La dernière étape consiste à calculer la rotation avec l'Eq. 3.8, en considérant une petite rotation $\delta\beta_V$ due à l'effet Voigt. On obtient alors directement en prenant la partie réelle de χ :

$$\boxed{\delta\beta_V = P_{\text{Voigt}} \sin[2(\phi_0 - \beta)]} \quad (3.32)$$

avec $P_{\text{Voigt}} = \text{Re} \left[\frac{B_1 + n_0^2 Q^2}{2n_0(n_0^2 - 1)} \right]$ qui peut se remettre sous une forme plus compacte en introduisant la différence d'indice $\Delta n_V = n_{\parallel} - n_{\perp}$: $P_{\text{Voigt}} = \text{Re} \left[\frac{2\Delta n_V}{n_0^2 - 1} \right]$.

Dans (Ga,Mn)As, l'effet Voigt a été étudié en détail par Tesarova *et al.* [183] où les auteurs ont mesuré grâce à des expériences d'ellipsométrie la rotation et l'ellipticité provoqué par cet effet en fonction du pourcentage de Mn. L'amplitude est de quelques mrad comme on peut le voir sur la Fig. 3.4. Dans notre cas, nous travaillons plus principalement à 700 nm (1.77eV). Plus récemment, l'effet Voigt a aussi pu être observé dans un Heusler [67] avec une amplitude de l'ordre de 5 mrad.

3.5 Rotation dynamique

La rotation due à une petite variation des composantes de l'aimantation peut être obtenue à partir de la rotation statique, en posant $\theta(t) = \theta_0 + \delta\theta(t)$ et $\phi(t) = \phi_0 + \delta\phi(t)$, avec $\delta\phi(t) \ll \phi_0$ et $\delta\theta(t) \ll \theta_0$. La formule de la rotation statique est la somme de l'effet Kerr polaire et de l'effet Voigt. Soit $\delta\beta^s$ la rotation de la polarisation dues aux effets statique, on a alors :

$$\boxed{\delta\beta^s = \delta\beta_K + \delta\beta_V = P_{\text{Kerr}} \cos \theta(t) + P_{\text{Voigt}} \sin 2[\phi(t) - \beta]} \quad (3.33)$$

On considère la possibilité d'avoir une variation du module de l'aimantation $\frac{\delta M_s}{M_s}$. Pour une aimantation dans le plan de l'échantillon, la rotation dynamique $\delta\beta^d$ est alors égale à :

$$\boxed{\delta\beta_{\theta_0=\pi/2}^d(t) = -P_{\text{Kerr}} \delta\theta(t) + 2 \frac{\delta M_s(t)}{M_s} P_{\text{Voigt}} \sin 2(\phi_0 - \beta) + 2P_{\text{Voigt}} \delta\phi(t) \cos 2(\phi_0 - \beta)} \quad (3.34)$$

Dans le cas d'une aimantation hors-plan, $\theta_0 = 0(-)$ ou $\pi (+)$, l'expression se simplifie encore plus et en négligeant la contribution de la variation d'indice, on obtient une quantité ne dépendant plus que de $\Delta M_s/M_s$:

$$\boxed{\delta\beta_{\theta_0=0}^d = \mp P_{\text{Kerr}} \frac{\delta M_s}{M_s}} \quad (3.35)$$

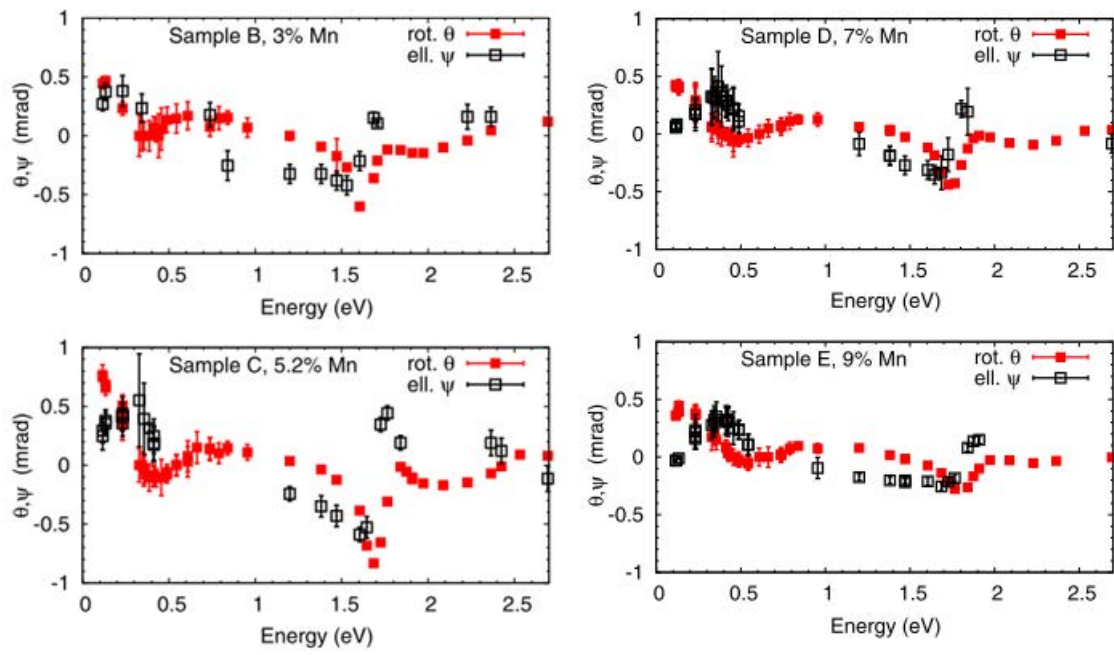


Figure 3.4: Ref [183] Ellipticité (ψ) et rotation (θ) Voigt en fonction de la longueur pour plusieurs concentration de Mn.

Chapitre 4

Technique expérimentale

Les techniques "pompe-sonde" sont des dispositifs standards, utilisant des lasers pulsés, afin d'étudier la dynamique ultrarapide d'un système physique. Le principe repose sur la mise hors d'équilibre du système étudié à l'aide d'une impulsion intense, la pompe, à t_0 . Une deuxième impulsion, moins intense, sonde les propriétés optiques du matériau à un instant $t + t_0$. Le choix de cet instant est déterminé par l'écart entre la longueur du trajet optique de la pompe par rapport à celui de la sonde. En pratique, cet ajustement est réalisé à l'aide d'une ligne à retard, composée d'un cube rétro-rélecteur pouvant se déplacer. 1 mm de déplacement équivaut à une différence de longueur de 2 mm correspondant à un incrément temporel de 6.67 ps. Cela nous permet de résoudre la dynamique de l'aimantation avec une fenêtre temporelle de 4 ns, et une résolution inférieure à la picoseconde (maximum de 100 fs).

4.1 Dispositif experimental

Nous utilisons une source laser Titane Saphir MIRA900 pompée à 532 nm par un laser VERDI G10 un laser YAG doublé pompé optiquement par un semi-conducteur. Le laser produit des impulsions d'une largeur d'environ 130 fs, avec un taux de répétition de 76 MHz sur une gamme de longueur d'onde allant de 690 nm à 1 μm . La largeur des impulsions a été mesurée grâce à un autocorrélateur¹ (Fig. 4.2a). Le diamètre du faisceau en sortie du laser est de 800 μm , avec une divergence de 1.7 mrad. Le faisceau laser maître est séparé en deux dès la sortie par une lame séparatrice.

Nous avons de plus couplé au dispositif standard utilisé pour les techniques pompe-sonde (Fig. 4.1), un système d'imagerie magnéto-optique (Fig. 4.4) permettant de visualiser le contraste magnétique, ainsi que les images de la pompe et de la sonde. Ce dispositif nous permettra de visualiser un possible retournement de l'aimantation provoqué par la pompe.

Les échantillons de (Ga,Mn)(As,P) sont placés dans un cryostat à galette de type Oxford Microstat Hi Res II, collés sur un doigt froid en Cu à l'aide de laque d'argent, dans une enceinte sous vide. La laque d'argent assure un le contact thermique entre le doigt froid et l'échantillon. L'utilisation d'un cryostat à galette a été privilégiée de sorte à avoir un dispositif plus compact ce qui nous permet d'insérer l'échantillon entre des bobines magnétiques rotatives (donc volumineuses). Néanmoins, le refroidissement se faisant par contact indirect avec le réfrigérant, celui-ci est moins efficace comparé à des cryostats où l'échantillon est placé dans un bain ou un gaz d'hélium. A cause du rayonnement provenant de la fenêtre du cryostat, et de la résistance

¹Réalisé par F. Margaillat (INSP)

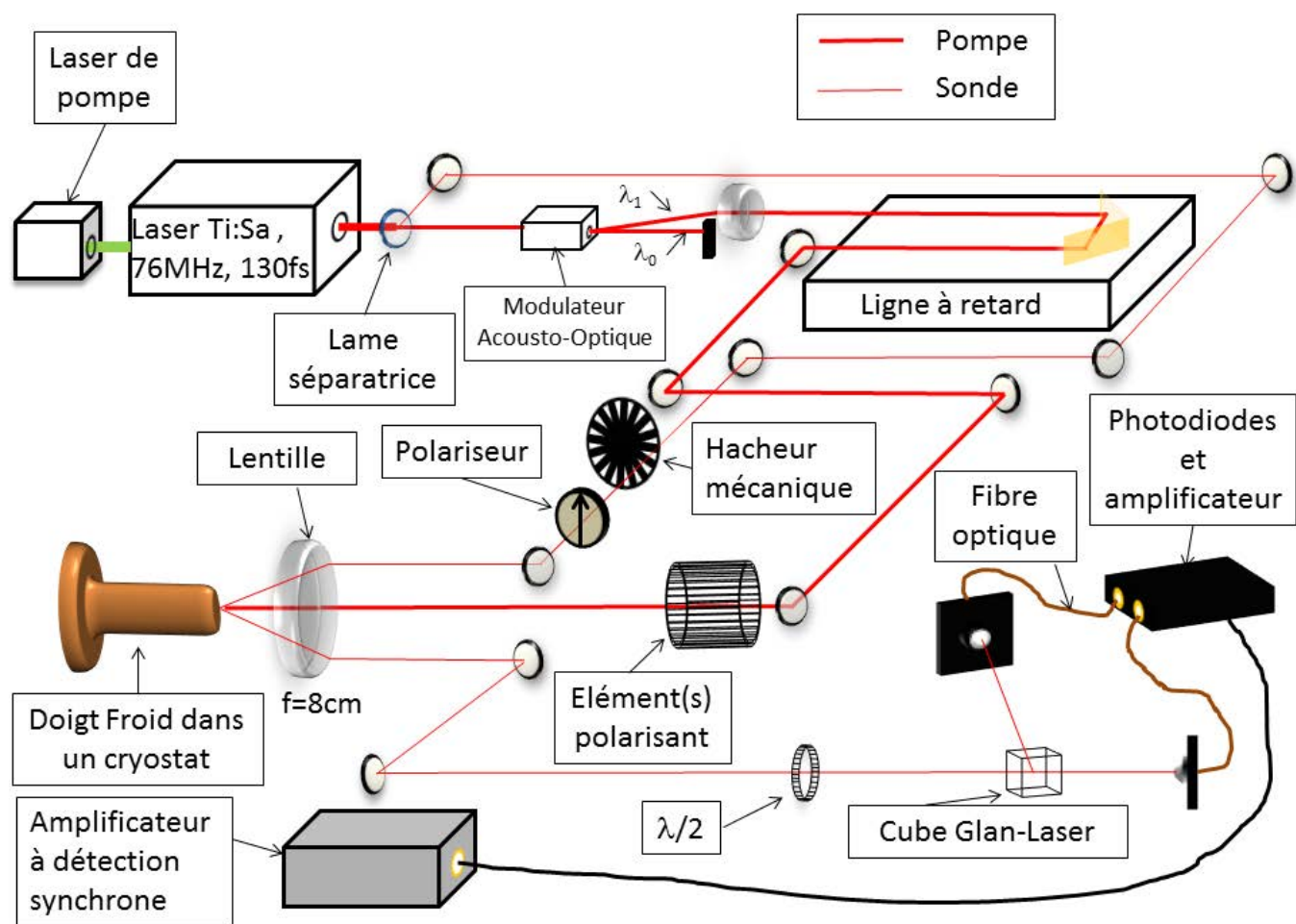


Figure 4.1: Schéma du dispositif expérimental pompe-sonde.

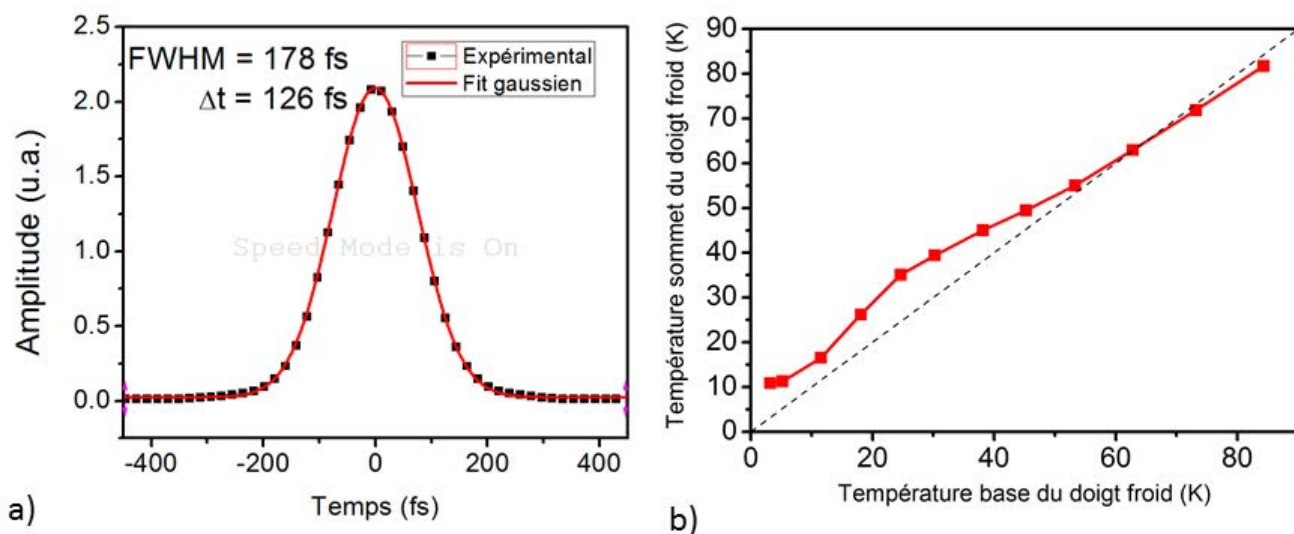


Figure 4.2: **a** : courbe d'autocorrelation permettant de remonter à la largeur des impulsions optiques. La largeur de la courbe d'autocorrelation (178 fs) est reliée à la largeur des impulsions ($\Delta t = 126$ fs). **b** : Température au sommet du doigt froid en fonction de la température de consigne à la base du doigt froid.

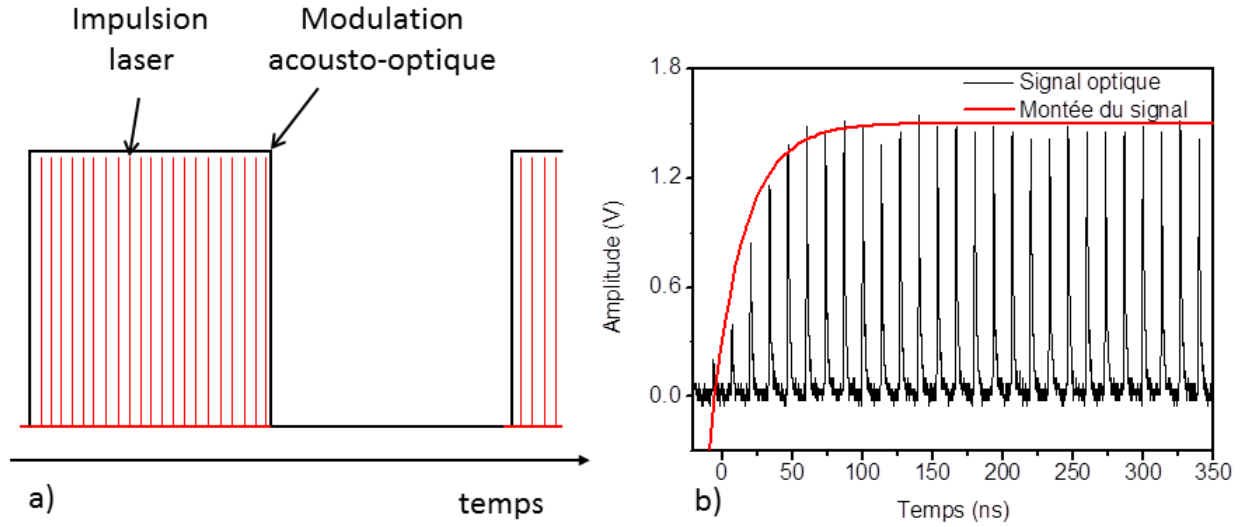


Figure 4.3: **a** : schéma de la modulation imposée par le modulateur acousto-optique (non à l'échelle). **b** : visualisation du temps de montée du modulateur acousto-optique obtenue à l'aide d'une diode rapide et d'un oscilloscope avec une bande passante de 400 MHz. En rouge le fit utilisé pour obtenir le temps de montée. Les pics correspondent aux impulsions laser convoluées avec la fonction d'appareil de la diode et de l'oscilloscope.

de contact créée par la laque d'argent, la température de l'échantillon est plus élevée qu'à la base du doigt froid. La calibration de la température réelle sur l'échantillon pour une certaine température à la base du doigt froid a été faite à l'aide d'une diode silicium collée à la laque d'argent fixé au sommet du doigt froid (Fig. 4.2)². Dans le reste de ce manuscrit, les températures données seront donc toujours les températures réelles sur l'échantillon.

4.1.1 Faisceau pompe

Le faisceau pompe est envoyé dans un modulateur acousto-optique. Le modulateur génère des ondes acoustiques de longueur d'onde de $14 \mu\text{m}$, avec une modulation d'amplitude à 50 kHz. Ces ondes acoustiques créent des zones en compression et en extension, ce qui modifie alternativement l'indice de réfraction. On crée alors un réseau de pas égal à la longueur d'onde acoustique qui va diffracter la lumière incidente. On récupère l'ordre 1 du signal de diffraction qui est alors modulé à 50 kHz. Sur notre montage, le temps de montée de ce signal est d'environ 25 ns comme montré sur la Fig. 4.3b.

Avant d'être envoyé dans la ligne à retard, le faisceau pompe passe par un agrandisseur de faisceau (non représenté sur la figure) constitué de deux lentilles de 1.5 cm et de 10 cm de focale, réduisant la divergence du faisceau laser à 0.1 mrad lors de son passage dans la ligne à retard. Cette faible divergence nous permet d'éviter les variations de l'aire de la pompe sur l'échantillon lors du déplacement de la ligne à retard, qui entraînerait alors une variation de la fluence. Sans ce dispositif, les variations de fluence ont été mesurées à plus de 30% ; avec, aucune variation ne peut être observée. Ceci assure donc une excitation constante sur l'échelle de temps considérée. L'amplitude maximale de la ligne à retard est de 60 cm ce qui correspond

²La non linéarité visible sur la courbe est due à la non linéarité de la conductivité thermique du cuivre à basse température

à 4 ns.

Après son passage dans la ligne à retard, le faisceau est ensuite envoyé vers des éléments polarisants, puis la lentille devant l'échantillon de focale 8 cm et d'ouverture numérique 0.28. L'angle d'incidence sur l'échantillon est de 3 deg. Afin d'obtenir la taille désirée sur l'échantillon, un couple de lentilles est utilisé juste après la ligne à retard afin de remodeler le faisceau (non représenté sur la figure). La pompe fait alors sur l'échantillon un diamètre théorique (expérimental à $1/e^2$) d'environ $49\text{ }\mu\text{m}$ ($44\text{ }\mu\text{m}$) pour une divergence de 20 mrad. Avec ce dispositif, les fluences maximum que l'on peut atteindre sont de l'ordre de $180\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$ à 700 nm et $250\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$ à 800 nm.

4.1.2 Faisceau sonde

Le faisceau sonde est modulé par un hacheur mécanique. Pour éviter des parasites provenant de la tension de secteur à 50 Hz, la modulation a été imposée à 523 Hz. Le faisceau passe ensuite par un couple de lentilles permettant d'ajuster la taille de la sonde sur l'échantillon. Enfin, on envoie le faisceau dans un polariseur linéaire, avant de l'envoyer sur la lentille devant l'échantillon. L'angle d'incidence de la sonde sur l'échantillon est d'environ 3 deg. Sur l'échantillon, le diamètre de la sonde est théoriquement (expérimentalement à $1/e^2$) de $14\text{ }\mu\text{m}$ ($20\text{ }\mu\text{m}$), pour une divergence de 70 mrad.

Le trajet du faisceau sonde est ajusté de sorte à correspondre exactement à la longueur maximale du trajet de la pompe. Les impulsions sonde arrivent ainsi après le faisceau pompe.

Une fois réfléchi par l'échantillon, le faisceau est ensuite redirigé vers un pont de diodes, constitué d'une lame demi-onde, d'un cube polarisant Glan-Laser et de deux photodiodes fibrées reliées à un amplificateur. Le cube Glan-Laser projette la polarisation incidente suivant ses axes. La composante perpendiculaire de la polarisation est réfléchie, tandis que la composante parallèle est transmise. Les deux faisceaux sont récoltés par les photodiodes. Le signal que l'on récupère est la différence en voltage des deux diodes que l'on amplifie. On peut également récolter le signal mesuré par une diode et l'envoyer sur une entrée DC de notre détection synchrone ce qui nous permet de mesurer en temps réel le voltage mesuré sur cette photodiode (voir section 4.2)

L'équilibrage du pont est effectué à l'aide de la lame demi-onde, de sorte à orienter la polarisation incidente à 45 deg des arêtes du cube Glan-Laser. Ainsi, lorsque la polarisation aura tourné sous l'action des effets magnéto-optiques, il y aura un petit déséquilibre correspondant à la rotation de la polarisation (voir section 4.2 et l'Eq. 4.6).

4.1.3 Imagerie magnéto-optique

Au dispositif standard des techniques pompe sonde, nous avons rajouté un système de microscopie afin de réaliser de l'imagerie magnéto-optique mais aussi d'imager la pompe et la sonde sur l'échantillon, pour les aligner l'une sur l'autre. Ce dispositif est illustré sur le schéma de la Fig. 4.4.

La source lumineuse est une diode émettant une lumière à 635 nm, une longueur d'onde où l'effet Kerr est maximum dans (Ga,Mn)(As,P). Cette source est fibrée par une fibre optique

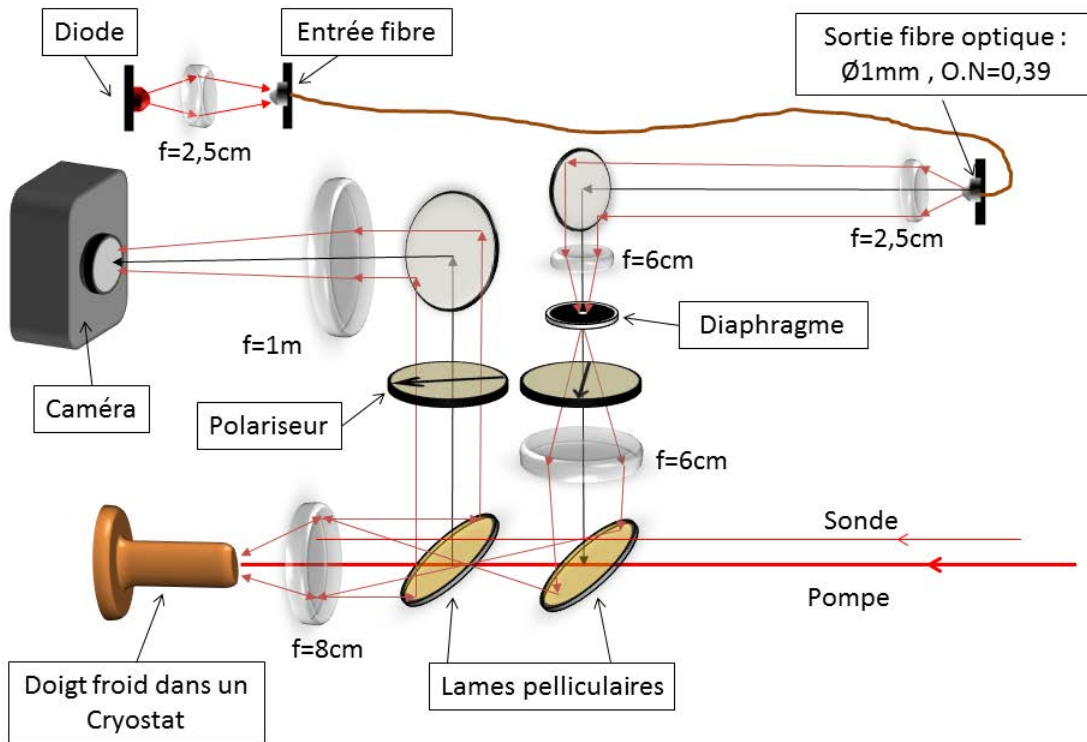


Figure 4.4: schéma du dispositif d'imagerie qui sert à l'alignement des tâches pompe et sonde sur l'échantillon, et à réaliser de l'imagerie magnéto-optique. Le grandissement du système est de 12, avec un pouvoir de résolution de $2\ \mu\text{m}$.

de diamètre de coeur d'1 mm et d'ouverture numérique 0.39.

À la sortie de la fibre, la lumière est envoyée au travers d'une lentille de $f=2.5\text{ cm}$. Afin d'avoir un éclairage aussi homogène que possible sur l'échantillon, on réalise un éclairage de Köhler. La source est focalisée sur un diaphragme qui va jouer le rôle de source auxiliaire. On réalise ensuite l'image de cette source sur le plan focal arrière de la lentille placée devant l'échantillon. La taille de cette image est ajustée afin d'utiliser un maximum de l'ouverture numérique de la lentille, de sorte à augmenter notre pouvoir de résolution sur l'échantillon. La lumière passe par deux lames pelliculaires puis est envoyée sur l'échantillon.

La collection de la lumière est réalisée tout d'abord en passant par une lame pelliculaire en réflexion, puis la lumière est focalisée sur une caméra à l'aide d'une lentille de distance focale d'1 m.

Les deux lames pelliculaires sont amovibles ce qui nous permet de sélectionner le type d'expérience à réaliser. Pour une expérience de type pompe sonde standard, la focalisation sur l'échantillon, l'alignement de la pompe sur la sonde, ainsi que leur positionnement sur l'échantillon sont réalisés directement à l'imagerie. Lors de la prise des signaux par le pont de diodes, les deux lames pelliculaires sont retirées afin de mieux préserver la polarisation ainsi que la puissance des faisceaux sans que cela affecte leur positionnement.

La calibration du grandissement et du pouvoir de résolution a été réalisée avec un réseau constitué de crêtes de 300 nm de largeur, espacées de 4 μm . On réalise un profil sur les crêtes. De la période de ce profil, on en déduit la calibration 0.5 $\mu\text{m}/\text{px}$ ce qui donne un grandissement de 12. Les crêtes ayant une taille inférieure au micron, le pouvoir de résolution se mesure directement en regardant la largeur des pics. Le pouvoir de résolution de notre dispositif est de 2 μm , proche de la valeur maximale de notre système 1.4 μm calculée en utilisant le critère de Rayleigh. Le fait que nos faisceaux n'utilisent que 70% de l'ouverture numérique de la lentille avant l'échantillon est ici le facteur limitant pour obtenir une meilleure résolution.

4.2 Calibration de la rotation magnéto-optique

Les signaux nous intéressant issus du pont de diodes sont doublement modulés, à la fréquence de la pompe et celle de la sonde. Ceux-ci sont envoyés dans une détection synchrone qui effectue une double démodulation, d'abord à la fréquence de la pompe ($\omega_1 = 2\pi \cdot 50 \text{ kHz}$) puis à la fréquence de la sonde ($\omega_2 = 2\pi \cdot 523 \text{ Hz}$). Cette procédure permet d'éviter la détection de signaux parasites (le signal issu de la diffusion du faisceau pompe seul ou encore de l'effet Faraday de la lentille par exemple).

Le signal est le produit de deux signaux carrés de fréquences ω_1 et ω_2 avec $\omega_1 \gg \omega_2$. L'amplitude est ΔV qui représente la grandeur recherchée. Par simplicité, nous ne considérerons ici que la première composante de la série de Fourier de ces deux signaux :

$$\begin{aligned} S(t) &= \Delta V \left[\frac{1}{2} + \frac{2}{\pi} \cos(\omega_1 t) \right] \left[\frac{1}{2} + \frac{2}{\pi} \cos(\omega_2 t) \right] \\ &= \Delta V \left[\frac{1}{4} + \frac{1}{\pi} \left\{ \cos(\omega_1 t) + \cos(\omega_2 t) \right\} + \frac{2}{\pi^2} \left\{ \cos[(\omega_1 + \omega_2)t] + \cos[(\omega_1 - \omega_2)t] \right\} \right] \end{aligned} \quad (4.1)$$

La première étape consiste à multiplier le signal de l'Eq. 4.1 par $I_1 \cos(\omega_1 t)$ puis à intégrer le signal résultant sur une période $\tau_1 = \frac{2\pi}{\omega_1}$.

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_1} \int_0^{\tau_1} S_1(t) dt &= \frac{\Delta V I_1}{\tau_1} \int_0^{\tau_1} \left[\frac{1}{4} \cos(\omega_1 t) + \frac{1}{\pi} \left\{ \cos^2(\omega_1 t) + \frac{1}{2} \cos[(\omega_1 + \omega_2)t] + \frac{1}{2} \cos[(\omega_1 - \omega_2)t] \right\} \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{\pi^2} \left\{ \cos[(2\omega_1 + \omega_2)t] + \cos[(2\omega_1 - \omega_2)t] + 2 \cos(\omega_2 t) \right\} \right] dt \end{aligned} \quad (4.2)$$

Avec $S_1(t) = S(t) I_1 \cos(\omega_1 t)$. Puisque $\omega_1 \gg \omega_2$, la première démodulation est filtrée avec une constante de temps courte. On obtient alors :

$$\frac{1}{\tau_1} \int_0^{\tau_1} S_1(t) dt = \frac{\Delta V I_1}{2\pi} + \frac{2\Delta V I_1}{\tau_1 \pi^2} \int_0^{\tau_1} \cos(\omega_2 t) dt \quad (4.3)$$

La variation du $\cos(\omega_2 t)$ étant petite sur la durée τ_1 , on peut considérer ce terme comme constant sur la durée d'intégration. On obtient alors directement le signal dont il ne reste que la modulation à la deuxième fréquence :

$$S_2(t) = \Delta V I_1 \left[\frac{1}{2\pi} + \frac{2}{\pi^2} \cos(\omega_2 t) \right] \quad (4.4)$$

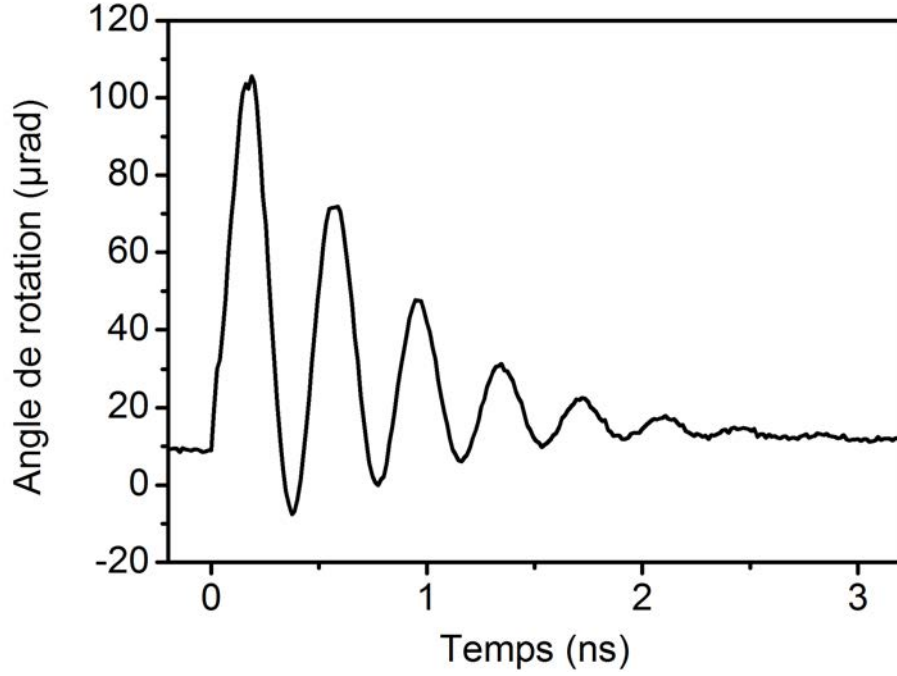


Figure 4.5: Signal dynamique caractéristique obtenu sur Mn_7P_7 .

Echantillon : Mn_7P_7 ; $T=11.5\text{ K}$; $F_{pompe}=7.5\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$; $F_{sonde}=0.6\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$; polarisation sonde : $//[100]$; polarisation pompe : $//[110]$; $H_{//[110]+10\text{ deg}}=113\text{ mT}$

La seconde étape de la démodulation est identique à la première avec une multiplication par $I_2 \cos(\omega_2 t)$. Une intégration directe donne alors le signal doublement démodulé S_3 , indépendant du temps :

$$S_3 = \frac{\Delta V I_1 I_2}{\pi^2} \quad (4.5)$$

Expérimentalement, à la détection synchrone on obtient directement le signal ΔV , en Volt, qui correspond à une rotation de la polarisation. Pour relier ces deux grandeurs, on cherche à calculer explicitement ΔV . Pour ce faire, on considère que le pont de diode est équilibré avec une polarisation à 45 deg des axes du cube Glan-Laser. On note $\delta\beta$ la rotation de la polarisation due aux effets magnéto-optiques statiques ou dynamiques. On a alors :

$$\Delta V = 2V \left\{ \sin^2\left(\frac{\pi}{4} + \delta\beta\right) - \cos^2\left(\frac{\pi}{4} + \delta\beta\right) \right\} \quad (4.6)$$

V représente la tension d'une des deux diodes, à la détection synchrone en démodulation simple. La mesure se fait, soit en cachant physiquement une des deux diodes soit en détectant la composante continue de l'une des diodes numérisée grâce à une entrée ADC de la détection synchrone. En posant $\delta\beta$ petit, un calcul direct donne alors :

$$\boxed{\delta\beta = \frac{1}{4} \frac{\Delta V}{V}} \quad (4.7)$$

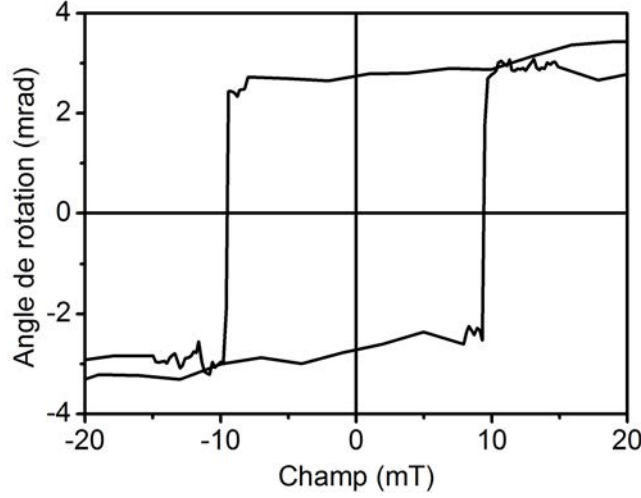


Figure 4.6: Cycle d'hystérésis obtenu sur un plot de (Ga,Mn)(As,P) de 15 μm de diamètre d'un échantillon comportant un réseau de plots élaborés par hydrogénation à aimantation perpendiculaire, avec le champ appliqué suivant l'axe facile.

$Mn_{6.64}P_{6.64}$; $T=11.5\text{ K}$; $F_{\text{sonde}}=1.8\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$; polarisation sonde : $\parallel [1-10]$; $\lambda =700\text{ nm}$

4.3 Signaux typiques

Avec notre dispositif, deux types de signaux peuvent être obtenus. Des signaux dynamiques, en enregistrant le signal doublement démodulé aux deux fréquences, ou statiques en ne démodulant qu'à la fréquence de la sonde.

4.3.1 Signal dynamique de type pompe sonde

Un signal dynamique caractéristique est représenté sur la Fig. 4.5. L'amplitude représente l'angle de la rotation de la polarisation de la sonde en fonction du retard de la sonde par rapport à la pompe. Cette rotation peut ensuite être reliée à la dynamique de l'aimantation via les effets magnéto-optiques décrits auparavant.

Le point à $t = 0$ correspond au moment où la pompe excite le système magnétique ce qui place l'aimantation en position hors d'équilibre. L'aimantation revient ensuite à sa position initiale en précessant autour d'un champ effectif.

La sensibilité maximum de notre dispositif est d'environ $0.1\text{ }\mu\text{rad}$. En supposant que les oscillations ne sont dues qu'à de l'effet Kerr, donc que l'on observe la précession que de la composante hors-plan de l'aimantation, en utilisant $P_{\text{Kerr}}=5.5\text{ mrad}$ on obtient un angle de précession maximum de 1.64 deg pour le signal de la Fig. 4.5.

4.3.2 Signaux magnéto-optiques statiques

En détectant le signal uniquement à la fréquence de la sonde, on sonde les effets magnéto-optiques statiques.

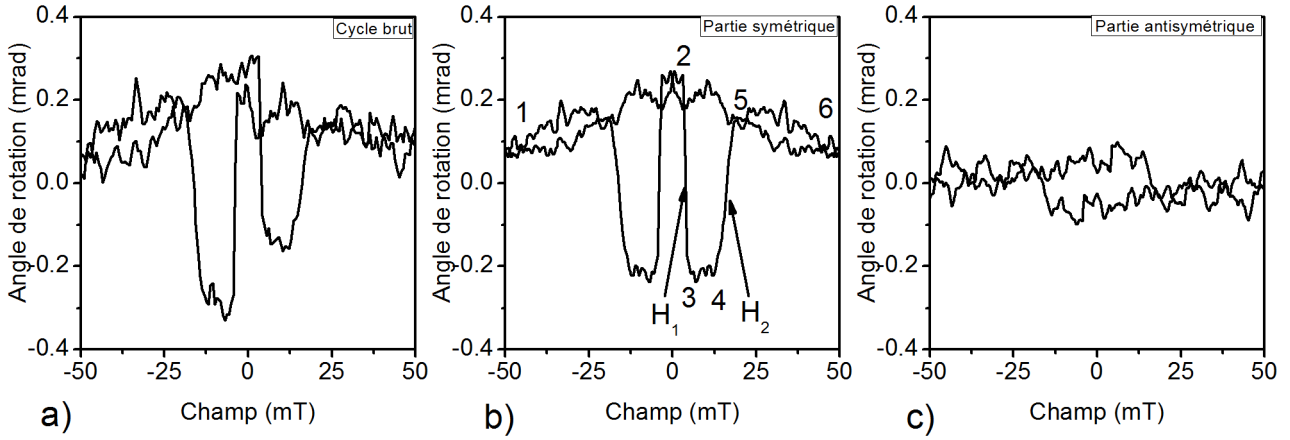


Figure 4.7: Cycles d'hystérésis typiques obtenus lors des expériences statiques. **a**: le cycle caractéristique brut d'un échantillon aimanté dans le plan. **b**: partie symétrique du cycle correspondant à l'effet Voigt. La numérotation correspond à celle de la Fig. 4.8. **c**: partie antisymétrique du cycle correspondant à la présence d'effet Kerr longitudinal.

Echantillon $Mn_8P_{4.3}$, $T=11.5$ K ; $F_{sonde}=0.22 \mu J cm^{-2}$; polarisation sonde : $\parallel [1-10]$; $\lambda = 700$ nm

Cycle Kerr polaire

Comme vu au chapitre précédent, l'effet Kerr polaire peut s'observer lorsqu'il existe une composante hors-plan de l'aimantation. Considérons un échantillon à aimantation perpendiculaire. L'application d'un champ hors-plan nous permet d'observer un cycle d'hystérésis si le champ est suffisamment fort pour retourner l'aimantation (Fig. 4.6).

Cycle Voigt

Les cycles Voigt s'obtiennent avec une aimantation dans le plan et une lumière en incidence normale ou oblique. Un cycle Voigt caractéristique est représenté sur la Fig. 4.7. L'asymétrie entre les parties en champ positif et négatif est due à la présence de l'effet Kerr longitudinal décrivant la projection de la composante dans le plan de l'aimantation sur le champ. Ce dernier n'est pas systématiquement présent mais peut être visible malgré notre faible angle d'incidence (3 deg).

Afin de bien découpler les deux effets, on extrait la partie symétrique du cycle, correspondant au cycle Voigt, et la partie antisymétrique correspondant au cycle Kerr. L'identification de la partie antisymétrique a été réalisée en comparant les cycles obtenus sur notre dispositif à des cycles obtenus sur un dispositif d'imagerie beaucoup plus sensible à l'effet Kerr longitudinal. Notons que les champs de retournement de l'effet Kerr correspondent aux plus élevés pour l'effet Voigt (H_2 par la suite).

On peut remarquer immédiatement la différence dans les amplitudes de chaque type de cycle. Les cycles Kerr longitudinal ont des amplitudes au moins six fois inférieures aux cycles Voigt qui ont eux mêmes des amplitudes cinq fois plus faibles que les cycles Kerr polaire. Cela nous permet de négliger en première approche l'effet Kerr longitudinal.

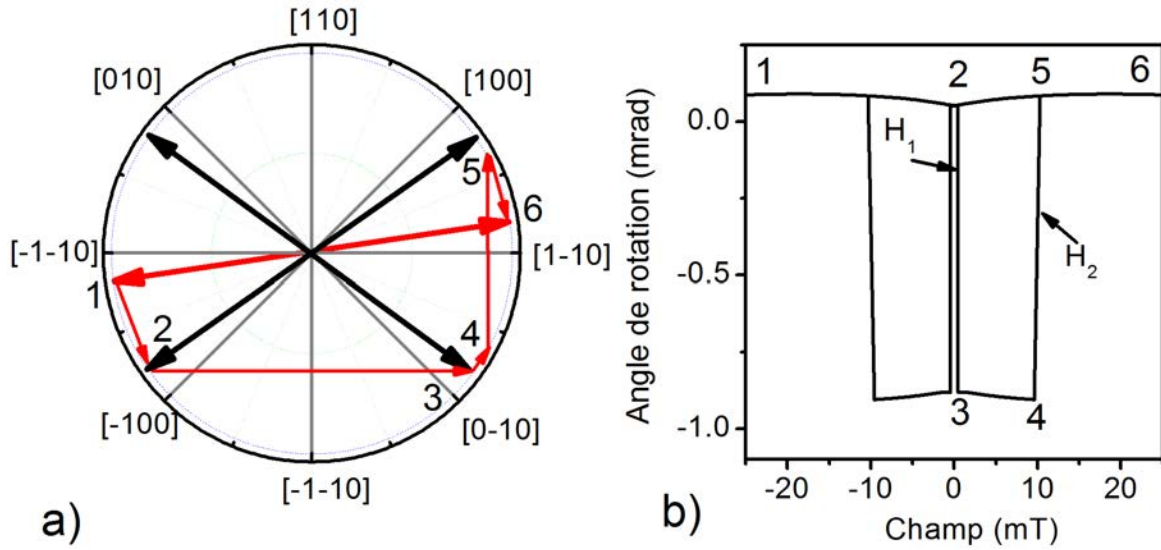


Figure 4.8: **a**: Mécanisme de retournement de l'aimantation à basse température, pour une anisotropie biaxiale dans le plan. **b**: Simulation d'un cycle Voigt avec un champ et une polarisation sonde suivant [1-10].

Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; $T=12\text{ K}$; $F_{sonde}=0.22\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$; $\lambda =700\text{ nm}$

4.4 Mécanisme de retournement de l'aimantation

Les échantillons de (Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P) à aimantation planaire présentent une anisotropie biaxiale à basse température avec des axes faciles proches des directions $\langle 100 \rangle$. Cette caractéristique peut être mise en évidence par SQUID, par FMR, par effet Hall planaire [180] mais aussi en utilisant les effets magnéto-optiques. Grâce à ces derniers, on peut voir les domaines magnétiques directement grâce à l'effet Kerr longitudinal [44] ou indirectement grâce à un révélateur magnéto-optique se basant sur l'effet Faraday [203]; soit mesurer un cycle d'hystérésis en utilisant l'effet Voigt [119][87]. Avec une anisotropie biaxiale, l'utilisation de l'effet Voigt est beaucoup plus pratique dans (Ga,Mn)As, ce dernier s'observant en incidence normale et étant important par rapport à d'autres matériaux[87].

Dans le cas illustré ici (Fig. 4.8), le champ est appliqué suivant [1-10] avec un très léger désalignement suivant [100]. On prend en compte le fait qu'à fort champ l'aimantation peut ne pas être totalement alignée suivant la direction du champ. Le mécanisme de retournement de l'aimantation lors d'un cycle d'hystérésis est le suivant (Fig. 4.8):

- 1→2** : Le champ décroît de $-H_{max}$ à 0. L'aimantation tourne de façon cohérente vers l'état d'équilibre **2**.
- 2→3** : Le champ devient positif. L'aimantation passe brusquement de l'état d'équilibre **2** à **3** par des processus de nucléation et expansion de domaines. On note le champ correspondant H_1 .
- 3→4** : L'aimantation reste proche de l'état d'équilibre **3** tout en se dirigeant vers **4**, tirée par le champ.
- 4→5** : L'aimantation bascule par des processus de nucléation et expansion de domaines vers l'état d'équilibre **4** plus proche du champ. On note le champ correspondant H_2 .

5→6 : L'aimantation tourne de façon cohérente pour s'aligner vers une direction proche ou superposée à celle du champ.

Comme vu au chapitre précédent, l'effet Voigt est un effet dépendant de la polarisation de la sonde Fig. 4.9. Pour modéliser les amplitudes des cycles d'hystérésis, il faut considérer la rotation de la polarisation due à l'effet Voigt :

$$\delta\beta_V = P_{\text{Voigt}} \sin \left[2(\phi_0 - \beta) \right] \quad (4.8)$$

avec les angles comptés à partir de la direction $[100]$ dans le plan. L'amplitude de la rotation entre la position **2** (ϕ_2) et **3** (ϕ_3) s'écrit alors :

$$\Delta(\delta\beta_V) = 2P_{\text{Voigt}} \sin(2\beta) \cos(2\phi_2) \quad (4.9)$$

avec $\phi_3 = -\frac{\pi}{2} - \phi_2$.

Considérons des cycles à basse température où l'anisotropie est biaxiale. Les cycles Voigt seront ouverts avec une amplitude maximale correspondant à $2P_{\text{Voigt}} \cos(2\phi_2)$ pour une polarisation alignée suivant un axe $\langle 110 \rangle$, et nulle pour la polarisation de la sonde alignée suivant un axe $\langle 100 \rangle$ (Fig. 4.9). Sur la Fig. 4.9 on peut noter une asymétrie en amplitude entre les axes de type $[110]$ et $[1-10]$ ce que nous n'avons pas réussi à expliquer, aucune biréfringence non-magnétique n'ayant été mesurée sur nos échantillons³.

Si l'anisotropie est uniaxiale comme c'est le cas dans $(\text{Ga,Mn})(\text{As,P})$ à haute température ($T \cong T_c/2$) avec un axe facile aligné suivant $[1-10]$ ($\phi_2 = -\frac{\pi}{4}$), en appliquant un champ magnétique suivant l'axe facile, on observera aucune ouverture de cycle ($\Delta(\delta\beta) = 0$). A contrario, si on applique un champ magnétique suivant l'axe difficile $[110]$, alors on pourra observer un cycle d'hystérésis due à la rotation cohérente de l'aimantation. Ceci nous permet de confirmer les axes cristallographiques de nos échantillons mais aussi de repérer la température ou le champ où l'échantillon devient uniaxe comme nous le verrons par la suite.

³Mesure réalisé par B. Gallas, INSP

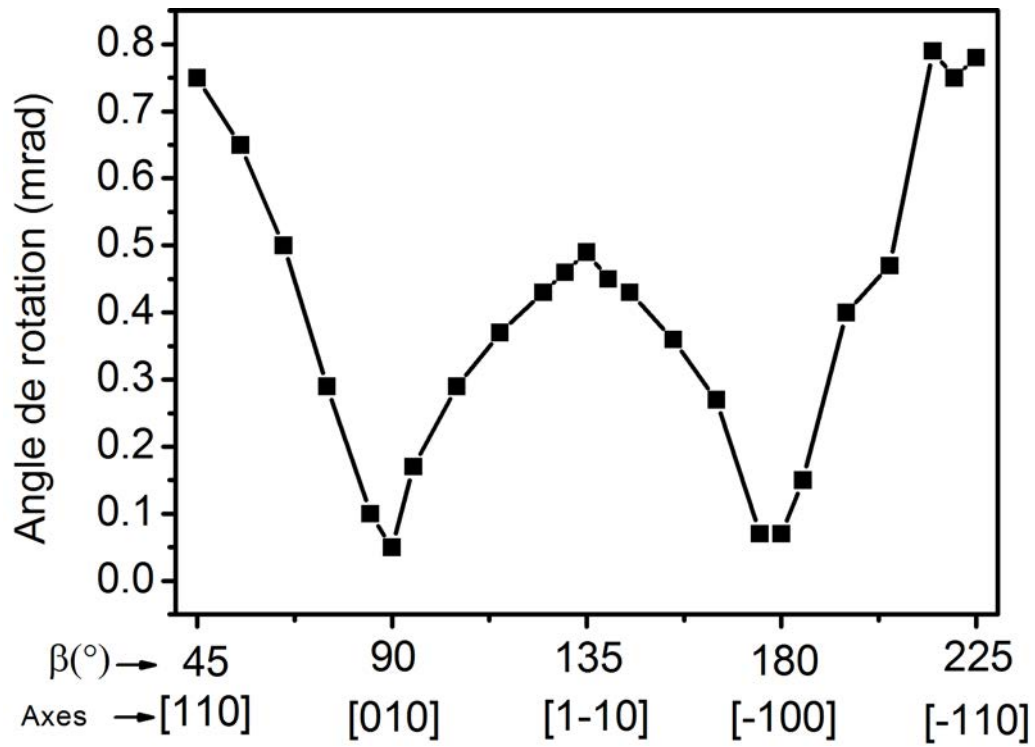


Figure 4.9: Amplitude des cycles d'hystérésis à H_1 en fonction de la polarisation du faisceau sonde.

Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; $T=12\text{ K}$; $H\parallel[110]$; $\lambda = 700\text{ nm}$

Chapitre 5

Caractérisation des élévations de température

Le dispositif expérimental présenté précédemment nous permet d'avoir accès aux effets stationnaire et dynamique de l'aimantation dans $(\text{Ga,Mn})(\text{As,P})$. Parmi ces effets, se pose la question de la température du système magnétique à une certaine fluence de pompe.

Lorsque l'on excite $(\text{Ga,Mn})(\text{As,P})$ avec une impulsion pompe avec une énergie supérieure à celle de la bande interdite, on injecte des paires électron-trou dans le système. La thermalisation se fait alors en plusieurs étapes [201][214][16]. Dans un premier temps, les porteurs injectés se thermalisent entre eux (< 1 ps). S'ensuit un processus de relaxation en énergie produisant des phonons incohérents et LO (< 10 ps). Puis, les électrons relaxent vers une bande au sein de la bande interdite, correspondant aux As^{2+} en antisite de Ga, un défaut présent lors des croissances de composés à base de GaAs à basse température comme c'est le cas pour $(\text{Ga,Mn})(\text{As,P})$ [108]. Cette bande va piéger les électrons sur des échelles de temps de l'ordre de la centaine de ps à la ns. Enfin les électrons se recombinent avec les trous de la bande de valence de manière radiative ou non radiative (avec émission de phonons).

Notre système magnétique est alors constitué de 3 sous-systèmes que l'on peut décrire dans un modèle à 3 températures [48] : un système de porteurs constitué des trous et des électrons, un système d'atomes magnétiques fortement couplé aux trous, et un système de phonons. Après interaction avec la lumière, la température du système de porteurs peut monter jusqu'à plusieurs milliers de Kelvin [121] avant thermalisation avec les autres parties du système magnétique.

L'estimation de la température effective d'un échantillon est une question récurrente lorsque l'on utilise des excitations optiques dont les temps caractéristiques correspondent aux temps de diffusion de la chaleur. L'élévation de température peut être séparée en une partie transitoire et une partie stationnaire.

L'élévation de température transitoire peut être observée grâce à la mesure de la température à un instant t par l'intermédiaire de la désaimantation du système [55], ou encore en mesurant la variation d'indice en regardant le signal de réflectivité différentielle [29]. La mesure de la désaimantation peut se faire en regardant des courbes dynamiques aux temps courts [48], où la variation du module de l'aimantation provoque une variation rapide de la rotation Kerr. La désaimantation peut aussi être visible sur des cycles d'hystérésis dynamiques [66][26] c'est à dire, en prenant des cycles d'hystérésis à différents retards pompe sonde.

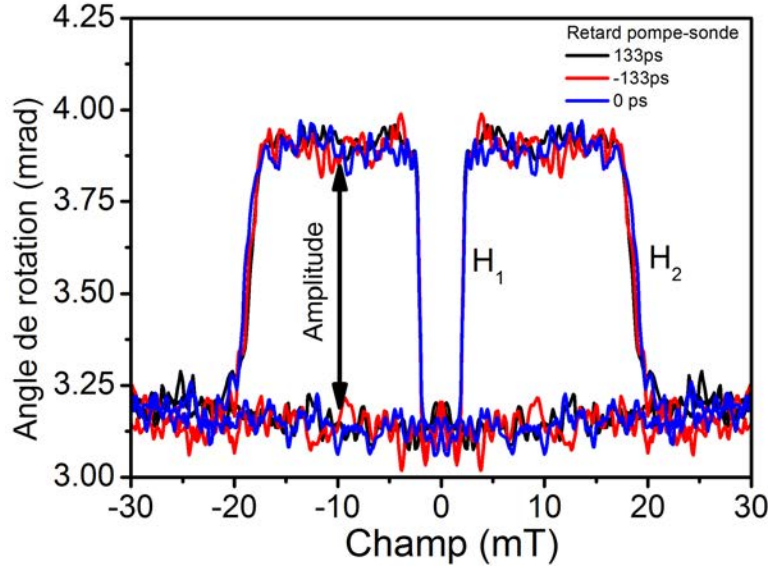


Figure 5.1: Cycles d'hystérésis statiques (détectés à la fréquence de modulation de la sonde) en fonction du retard pompe sonde pour trois retards pompe-sonde.

Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; $T=11.5$ K ; $F_{sonde}=0.6 \mu J cm^{-2}$; $F_{pompe}=1.5 \mu J cm^{-2}$

Dans le cas des cycles d'hystérésis dynamiques, une diminution de l'amplitude ainsi que des champs coercitifs a été mesurée sur des échantillons à aimantation hors plan [66] ou dans le plan [220]. Néanmoins dans le cas d'expériences dynamiques, seule l'utilisation de l'amplitude est pertinente [146] car les techniques pompe-sonde mesurent par définition des processus réversibles. Le basculement de l'aimantation d'un axe à un autre étant un phénomène irréversible lorsque l'on applique une impulsion pompe, l'évolution des champs coercitifs ne peut pas représenter l'évolution en température du système. Pour que les champs de basculement mesurés aient un sens, il est nécessaire d'appliquer un champ réinitialisant le système avant l'arrivée de la prochaine impulsion pompe [106]. A cela s'ajoute des effets purement dynamiques dépendant de l'excitation compliquant encore plus l'analyse de tels cycles (voir partie **III** chapitre 3 pour l'effet de l'excitation optique sous champ).

Pour des fréquences d'impulsions laser élevées comme c'est le cas ici, l'application et la synchronisation d'un tel champ avec des impulsions laser peut s'avérer une tâche difficile. Une façon de contourner le problème consiste à nous servir des cycles d'hystérésis statiques, où le retard de la pompe par rapport à la sonde ne compte pas (Fig. 5.1), ce qui nous permet de mesurer la température stationnaire de nos échantillons. A l'instar de ce qui se fait en dynamique, on mesure la variation des différents paramètres caractérisant les cycles d'hystérésis en fonction de la température et de la puissance pompe, à savoir : l'amplitude, H_1 et H_2 . Puisque l'on regarde des effets statiques, l'évolution de H_1 et H_2 redevient pertinente.

5.1 Détermination de la température effective

Afin de déterminer l'élévation de température stationnaire due à la fluence du faisceau pompe on compare les cycles d'hystérésis Voigt obtenus en fonction de la température et en fonction de la fluence du faisceau pompe.

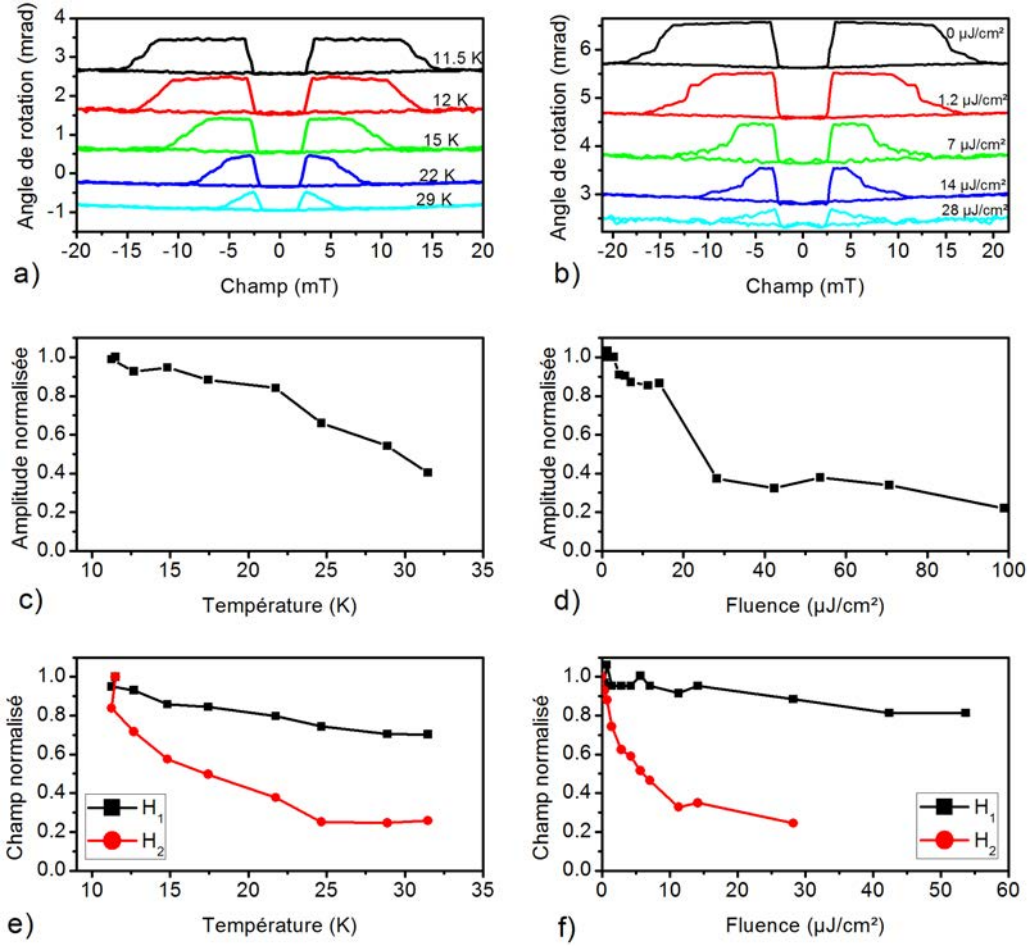


Figure 5.2: **a** : cycles Voigt en fonction de la température. **b** : cycles Voigt en fonction de la fluence de la pompe. **c** : amplitude des cycles en fonction de la température normalisée à la valeur à basse température. **d** : amplitude des cycles en fonction de la fluence de la pompe normalisée à sa valeur sans pompe. **e** : champs de basculement en fonction de la température, normalisés à leur valeur à basse température. **f** : champs de basculement en fonction de la fluence, normalisés à leur valeur sans la pompe.

$Mn_7P_{4.3}$; $T=11.5\text{ K}$; $F_{sonde}=0.22\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$; polarisation sonde : $\parallel[1-10]$; $H\parallel[1-10]$; $\lambda=700\text{ nm}$

Dans un premier temps, on fait varier la température de notre système avec une fluence du faisceau sonde faible et sans pompe afin de ne pas perturber le système magnétique. Ensuite, on reste à basse température tout en rajoutant le faisceau pompe dont on fera varier la fluence.

5.1.1 Effets de la température

L'expérience en fonction de la température avec uniquement la sonde est réalisée à polarisation sonde fixe à $F_{sonde}=0.22\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$ (Fig. 5.2a). L'augmentation de la température entraîne une diminution de l'amplitude des cycles d'hystérésis (Fig. 5.2c) ainsi que de H_1 et H_2 . H_2 se révèle beaucoup plus sensible aux variations de température que H_1 qui lui ne présente qu'une faible variation avec la température (Fig. 5.2e).

L'évolution de l'amplitude des cycles s'explique d'une part par la dépendance du coefficient P_{Voigt} proportionnel à M_s^2 , et d'autre part par l'évolution de l'angle d'équilibre de l'aimantation

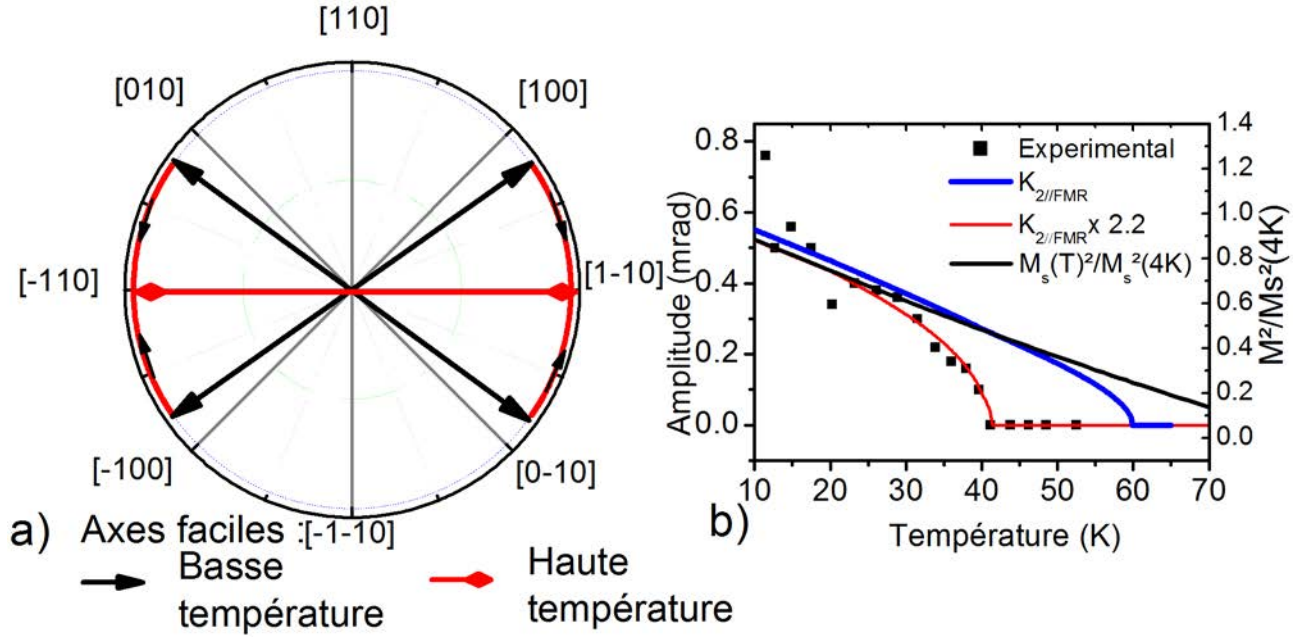


Figure 5.3: **a**: Evolution des axes faciles en fonction de la température en champ nul. **b**: Amplitude des cycles Voigt en fonction de la température. Les courbes simulées ont été calculées en tenant compte de la $M_s^2(T)$ pour la variation de P_{Voigt} et des angles d'équilibre en fonction de la température.

Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; $F_{sonde} = 0.22 \mu J cm^{-2}$; $P_{Voigt}(11.5 K) = 0.28 mrad$; $H_{||[1-10]}$; $\lambda = 700 nm$

en fonction de la température. Les constantes d'anisotropies étant connues, on peut calculer l'évolution de l'angle d'équilibre en fonction de la température en minimisant l'énergie d'anisotropie (Fig. 5.3a). L'aimantation étant dans le plan, tant que $|K_{2||}/K_{4||}| < 1$ on a $\sin(2\phi_{eq}) = -K_{2||}/K_{4||}$ à champ nul; au delà l'échantillon devient uniaxe suivant [1-10]. En utilisant l'Eq. 4.9 on est ainsi capable de reproduire les variations des amplitudes des cycles Voigt en fonction de la température en connaissant la valeur de P_{Voigt} à basse température (Fig. 5.3b).

La sensibilité de H_1 par rapport à H_2 s'explique par l'évolution des constantes d'anisotropie avec la température. L'augmentation en température s'accompagne d'une diminution de l'anisotropie cubique en faveur d'une anisotropie uniaxiale suivant [1-10] (Fig. 5.3a). En conséquence, la barrière en énergie que l'aimantation passe à H_2 s'abaissera plus vite en comparaison de celle correspondant à H_1 . Ainsi, la probabilité de transition à H_2 sera plus forte pour des H_2 plus faibles lorsque l'on augmente la température. En revanche, la barrière en énergie restant importante pour H_1 , ce dernier aura alors des variations bien moindres en fonction de la température.

La température pour laquelle l'amplitude du cycle Voigt s'annule correspond à l'alignement de la position d'équilibre de l'aimantation suivant [1-10]. En prenant directement les constantes trouvées par FMR cette température serait de 60 K, 20 K de plus qu'expérimentalement. Afin de mieux correspondre à nos observations, la valeur de $K_{2||}(T)$ a été multipliée par 2.2. A 10 K, cela correspond à une valeur de $516 J/cm^3$, 3 fois plus faible que $K_{4||}$ à cette température. On montrera par la suite que pour cet échantillon $K_{2||}$ n'a que très peu d'incidence sur les fréquences des ondes de spin (voir partie III, chapitre 2). Sachant que les constantes ont été déduites par FMR, une multiplication par 2.2 continue de donner un $K_{2||}$ faible par rapport aux autres constantes.

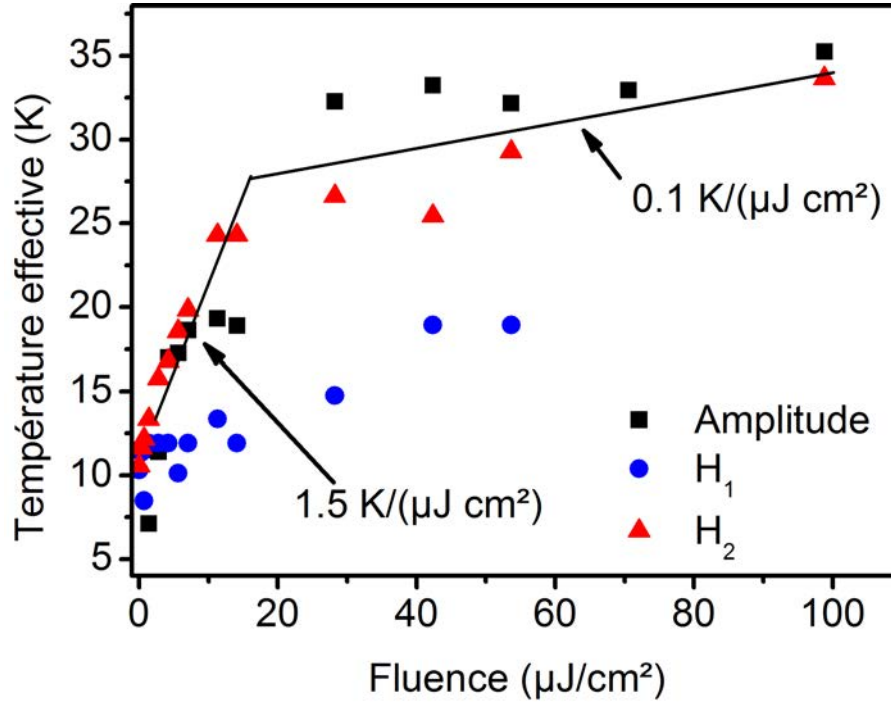


Figure 5.4: Température effective stationnaire de $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ en fonction de la fluence de la pompe.

Echantillon $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; $\lambda = 700 \text{ nm}$; $F_{\text{sonde}} = 0.22 \mu\text{J cm}^{-2}$; Température de consigne : 11.5 K

En conséquence, l'amplitude ainsi que H_2 et H_1 vont ici jouer le rôle de thermomètre sur notre échantillon.

5.1.2 Correspondance fluence-température

Dans cette partie, nous restons à une température de consigne du cryostat basse ($T=11.5 \text{ K}$), à fluence et polarisation sonde constantes. On augmente la fluence de la pompe, avec la pompe et la sonde superposées (Fig. 5.2b). On rappelle que puisque nous regardons des effets statiques, le retard de la pompe par rapport à la sonde ne compte pas (Fig. 5.1). En faisant varier la puissance, on observe une diminution de l'amplitude des cycles (Fig. 5.2d) ainsi que de H_1 et H_2 (Fig. 5.2f). Encore une fois, les variations de H_1 sont faibles par rapport à H_2 . Notons que même si l'on considère des effets statiques, la pompe envoie toujours des impulsions toutes les 13.2 ns avec une modulation à 50 kHz .

Pour obtenir la température effective, nous mettons en regard les variations de H_1 , H_2 et de l'amplitude des cycles normalisés en fonction de la fluence avec celles en fonction de la température. On obtient alors une température effective de l'échantillon en fonction de la fluence de la pompe (Fig. 5.4). Deux séries de courbes se dégagent de cette analyse, la première regroupant les variations d'amplitudes et de H_2 , la deuxième correspondant à H_1 .

Les températures effectives déduites des variations de H_2 et des amplitudes présentent deux régimes. Un premier régime à basse fluence ($\approx 10 \mu\text{J cm}^{-2}$) où la température augmente linéairement avec une pente de $1.5 \text{ K}/\mu\text{J cm}^{-2}$. Un autre régime à plus forte fluence où la température augmente de façon moindre avec une pente de $0.1 \text{ K}/\mu\text{J cm}^{-2}$. Notons que les résultats sur les températures effectives obtenues soit en regardant les amplitudes, soit H_2 sont très similaires. Les différences sont principalement dues à des difficultés pour mesurer une amplitude à très

forte fluence, là où les mesures sur H_2 sont plus précises. Pour cette raison, nous considérerons par la suite principalement les variations de H_2 .

Les températures effectives déduites des variations de H_1 sont beaucoup plus faibles comparées aux des deux autres paramètres. Celles-ci présentent une variation linéaire de $0.13 \text{ K}/\mu\text{J cm}^{-2}$. Nous verrons dans la section suivante que H_1 dépend de la température du système à longue distance.

Les effets de température étant non négligeables par rapport à la T_c de l'échantillon (85 K), une façon de les éviter serait d'exciter nos échantillons avec une énergie plus proche de la bande interdite à l'instar de [214] afin de diminuer l'absorption. Afin d'avoir une valeur quantitative de cet effet sur nos échantillons, nous avons réalisé le même genre d'expérience que présentée précédemment à $\lambda=800 \text{ nm}$ (Fig. 5.4). L'étude n'a été réalisée que sur la partie linéaire ($<18 \mu\text{J cm}^{-2}$) où une élévation de température plus faible de 3 K a été trouvée avec $F_{\text{pompe}}=18 \mu\text{J cm}^{-2}$. En conséquence, pour limiter les effets thermiques il faudrait encore plus se rapprocher de la bande interdite. Du fait de la forte dépendance des coefficients magnéto-optiques avec la longueur d'onde [183], l'intérêt pratique de cette approche s'en retrouve fortement limité surtout si cela entraîne la disparition des effets magnéto-optiques. En pratique nous resterons principalement à $\lambda=700 \text{ nm}$ dans l'optique d'être proche du pic d'effet Voigt (voir partie II Fig. 3.4).

Les élévations en température déduites ici seront comparées à celles que l'on peut voir dans la littérature dans la partie relevant de la dynamique de l'aimantation, les fréquences de précession ayant été systématiquement utilisées afin de caractériser les effets de température (partie III, Fig. 8.15 et Fig. 8.17). Quantitativement néanmoins pour les effets statiques, les ordres de grandeurs des élévations en températures induites par la pompe sont comparables entre les expériences c'est à dire de l'ordre de la dizaine de Kelvin. De plus, les élévations par des excitations optiques sont comparables à celles observées dans la littérature en considérant l'effet Joule provoqué par le passage d'un courant dans une piste micromagnétique [35].

5.2 Effets thermiques non localisés

Les effets thermiques non locaux sont mesurés en général par des expériences de thermo-réflexance où la détection d'un gradient thermique est réalisé par le biais des différences d'indice induites par des déformations thermo-élastiques dues à un faisceau laser [19][145]. Ces techniques permettent de mesurer les paramètres thermiques d'échantillons, en particulier pour des matériaux en couches minces où des paramètres comme la conductivité ou la diffusivité thermique peuvent être très différents de leurs valeurs pour des matériaux massifs [97]. Lorsque l'on considère des couches sur un substrat, les profils de température que l'on peut mesurer dépendent des propriétés thermiques des deux couches [56]. On peut ainsi démontrer que dans le cas d'une couche bonne conductrice de chaleur sur une couche mauvaise conductrice, la chaleur aura tendance à s'étaler à la surface. Dans le cas d'une couche mauvaise conductrice sur une bonne conductrice, la chaleur aura tendance à diffuser vers le substrat.

Dans les expériences statiques, la détection d'une rotation de la polarisation est indépendante de la superposition pompe-sonde, a contrario des expériences dynamiques. Notre approche nous permet d'explorer les effets non locaux stationnaires induits par la pompe sur l'échantillon à l'instar de ce qui se fait en thermo-réflexance. Avec le modèle approprié, on sera ainsi en mesure d'obtenir les paramètres thermiques de nos échantillons.

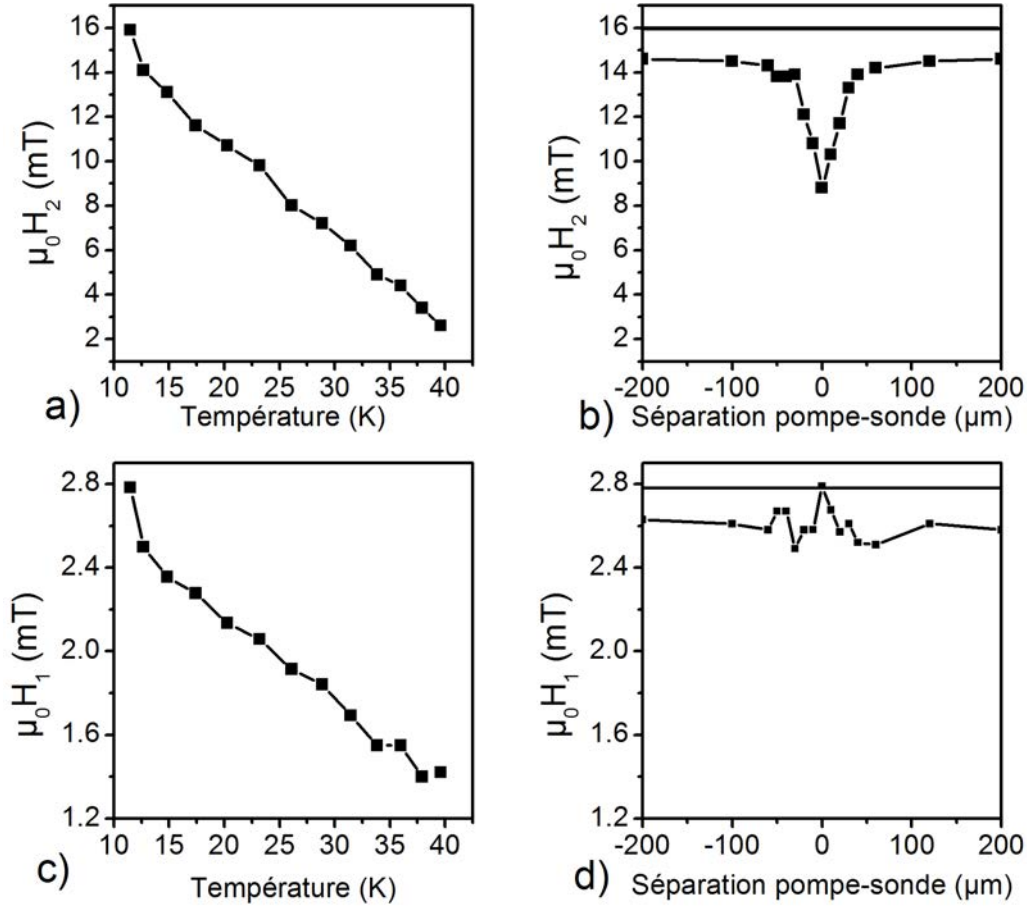


Figure 5.5: **a**: variation du champ de retournement H_2 en fonction de la température. **b**: variation du champ de retournement H_2 en fonction de l'écartement de la pompe et de la sonde. La ligne noire représente la valeur de H_2 sans la pompe. 0 représente la position où pompe et sonde sont alignées. $T=11.5$ K. **c**: variation de H_1 en fonction de la température. **d**: variation de H_1 en fonction de l'écartement.

Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; (**b et d**) $F_{pompe}=18.5 \mu J cm^{-2}$; $H||[1-10]$; $\lambda =700 nm$

On utilise la même procédure expérimentale que dans la section précédente. Dans un premier temps, on réalise une expérience où l'on considère la sonde seule, à basse fluence, en faisant varier la température du système. Puis, on rajoute le faisceau pompe à $F_{pompe}=18.5 \mu J cm^{-2}$, ayant un rayon d'environ $17 \mu m$, à basse température ($T=11.5$ K), que l'on va écarter du faisceau sonde. La fluence de la pompe a été choisie de sorte à avoir une élévation en température non négligeable (environ 12 K), sans être trop forte de sorte à pouvoir analyser simplement les cycles d'hystérésis.

Le résultat de la variation de H_2 est présenté sur la Fig. 5.5. Sur la Fig. 5.5b, on peut observer que la réduction de H_2 est maximale lorsque la pompe et la sonde sont alignées. Cet effet décroît avec une forme gaussienne sur environ $50 \mu m$. Notons que l'effet reste significatif ($\Delta H_2 \approx 2$ mT) même à longue distance (jusqu'à $700 \mu m$, non montré sur la courbe). La Fig. 5.5a représente la variation de H_2 en fonction de la température là où l'expérience en fonction de la position a été réalisée.

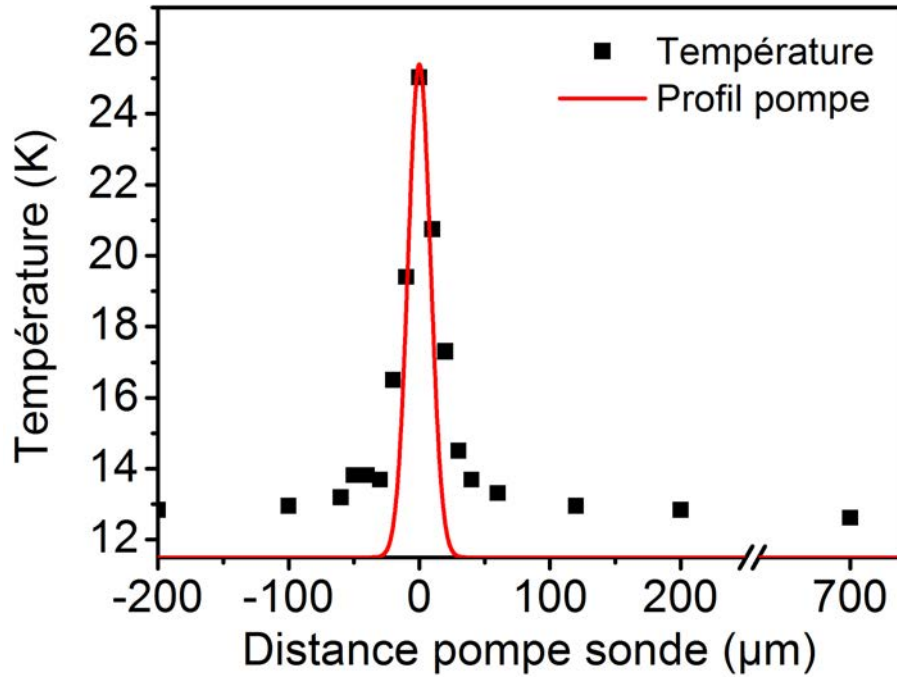


Figure 5.6: Température en fonction de l'écartement de la pompe et de la sonde. Les carrés représentent les points expérimentaux.

Les variations du champ H_1 sont représentées en fonction de la température sur la Fig. 5.5c, et en fonction de l'écartement sur la Fig. 5.5d. H_1 ne présente aucune variation en fonction de l'écartement de la pompe et de la sonde. Cela signifie que H_1 dépend de processus de nucléation situés à longue distance par rapport à la pompe (sur un défaut par exemple), tandis que H_2 dépend de processus localisés sous la pompe. En considérant une valeur moyenne des champs H_1 , la température correspondante pouvant être associée à une température loin de la pompe, serait de 12.3 K.

Le résultat de la correspondance entre l'expérience à température variable et la distance pompe sonde variable est présenté sur la Fig. 5.6. L'élévation de température est à peu près gaussienne centrée sur la position où pompe et sonde sont superposées, avec un $\Delta T = 12$ K. A longue portée (>100 μm), la température est d'environ 12.8 K, une valeur proche de la température déduite avec H_1 . En conséquence, un cycle d'hystérésis permet de déterminer 2 températures, une locale grâce à H_2 et une à longue distance grâce à H_1 .

Les variations rapides du profil en température se font sur des distances de l'ordre de la taille du rayon de la pompe. Cela signifie que la chaleur reste en majeure partie localisée à l'emplacement de la pompe. Dans la suite nous allons chercher à modéliser ce profil.

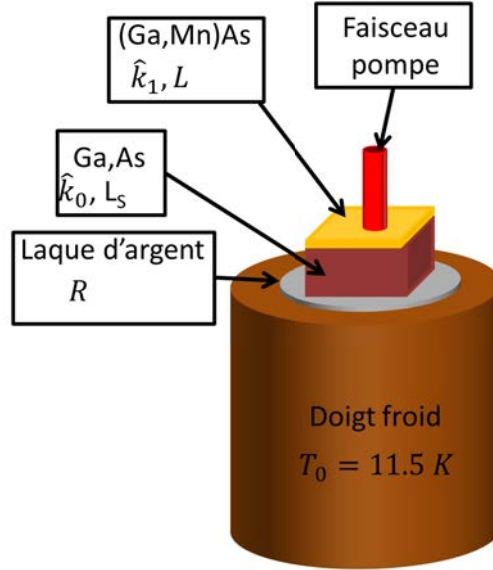


Figure 5.7: Représentation schématique de la modélisation des effets thermiques. Le système réel est composé d'une couche de (Ga,Mn)As, éclairé par un faisceau laser de diamètre fini, avec un substrat de GaAs (les deux couches ne sont pas à l'échelle), collé avec de la laque d'argent sur le doigt froid servant de thermostat.

5.3 Elévation stationnaire de température

Modélisation de l'élévation stationnaire

L'élévation stationnaire en température peut être modélisée¹ en utilisant l'équation de la chaleur [56][143]. Le but ici est de comprendre le profil en température que nous avons mesuré, ainsi que l'amplitude de l'élévation. Du fait de la symétrie de notre problème, on utilise par la suite les coordonnées cylindriques. L'équation de la chaleur en prenant une température de référence nulle :

$$D_t \Delta^2 T(r, z, t) - \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial t} = 0 \quad (5.1)$$

$D_t = \frac{\hat{k}}{\rho C_p}$ où D_t représente la diffusivité du matériau (m^2s^{-1}), $\hat{k}$ la conductivité thermique, ρ la masse volumique (par simplicité, on prend celle du GaAs avec $\rho=5320 \text{ kg/m}^3$) et C_p la chaleur spécifique du matériau. On suppose que $T(r, z, t) = \hat{T}(r, z)\tau(t)$. L'hypothèse quant à l'utilisation de cette équation est que toute l'énergie déposée par le faisceau laser est convertie en chaleur et donc en température.

On s'intéresse aux effets stationnaires en température. On a alors en coordonnées cylindriques l'expression :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \hat{T}(r, z) = 0 \quad (5.2)$$

¹Modélisation par J-Y Duquesne (INSP)

On considère une couche de (Ga,Mn)(As,P) d'épaisseur L et de conductivité thermiques $\hat{k}_1$ sur un substrat d'épaisseur L_S et de conductivité thermique $\hat{k}_0$ avec le substrat en contact thermique avec un thermostat permettant la régulation en température (Fig. 5.7). On considère que le contact thermostat substrat a une petite résistance thermique ce qui diminue l'efficacité de la thermalisation. Pour résoudre l'Eq. 5.2 on travaille dans l'espace de Hankel en réalisant une transformée de Hankel définie par $\Theta(\varrho, z) = \int_0^\infty \hat{T}(r, z) J_0(r\varrho) r dr$ (cela revient à faire une transformée de Fourier à 2D). On obtient alors comme équation à résoudre :

$$-\varrho^2 \Theta(\varrho, z) + \frac{\partial^2 \Theta(\varrho, z)}{\partial^2 z} = 0 \quad (5.3)$$

Dans chacune des couches, la solution de cette équation est de la forme :

$$\Theta_i(\varrho, z) = A_i e^{\varrho z} + B_i e^{-\varrho z} \quad (5.4)$$

avec $i = 1$ étant (Ga,Mn)(As,P) , et $i = 0$ le substrat. Pour résoudre le système d'équations on considère les conditions aux limites suivantes :

1. Toute l'énergie déposée par le faisceau laser est convertie en chaleur à la surface en $z = 0$. En écrivant l'égalité du flux $-\hat{k}_1 \frac{\partial \Theta_1}{\partial z} = \Phi(\varrho)$, on obtient : $\hat{k}_1 \varrho (A_1 - B_1) = \Phi(\varrho)$, Φ étant la transformée de Hankel du flux du faisceau laser.
2. Continuité de la température à l'interface couche/substrat : $\Theta_1(\varrho, d) = \Theta_2(\varrho, d)$
3. Continuité du flux à l'interface couche/substrat : $-\hat{k}_1 \frac{\partial \Theta_1}{\partial z} \Big|_{z=L} = -\hat{k}_0 \frac{\partial \Theta_0}{\partial z} \Big|_{z=L}$
4. Discontinuité de la température à l'interface substrat/thermostat due à une résistance thermique représentant une mauvaise thermalisation avec le thermostat. On a alors : $\Theta_0(\varrho, L_S + L) = -R \hat{k}_0 \frac{\partial \Theta_0}{\partial z} \Big|_{z=L_S+L}$

Le système d'équation différentielle à résoudre est alors :

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & \hat{k}_1 \varrho & -\hat{k}_1 \varrho \\ 1 & e^{2\varrho L} & -1 & -e^{2\varrho L} \\ \hat{k}_0 \varrho & -\hat{k}_0 \varrho e^{2\varrho L} & -\hat{k}_1 \varrho & \hat{k}_1 \varrho e^{2\varrho L} \\ 1 - R \hat{k}_0 \varrho & (1 + R \hat{k}_0 \varrho) e^{2\varrho(L_S+L)} & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_0 \\ B_0 \\ A_1 \\ B_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \Phi(\varrho) \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (5.5)$$

La température sera donnée par une transformée de Hankel inverse. On obtient alors pour la température en surface dans le cas d'un faisceau gaussien d'une puissance (en W) P :

$$T(r) = \frac{P}{4\pi} \int_0^\infty e^{-\frac{w^2 \varrho^2}{8}} \frac{\hat{k}_1 \cosh(L\varrho) [\varrho \hat{k}_0 R \cosh(\varrho L_S) + \sinh(\varrho L_S)] + \hat{k}_0 \sinh(L\varrho) [\varrho \hat{k}_0 R \sinh(\varrho L_S) + \cosh(\varrho L_S)]}{\hat{k}_1 \{ \hat{k}_1 \sinh(L\varrho) [\varrho \hat{k}_0 R \cosh(\varrho L_S) + \sinh(\varrho L_S)] + \hat{k}_0 \cosh(L\varrho) [\varrho \hat{k}_0 R \sinh(\varrho L_S) + \cosh(\varrho L_S)] \}} J_0(r\varrho) d\varrho \quad (5.6)$$

Le profil des températures dépendra alors des conductivités thermiques des couches, de la résistance thermique ainsi que du profil du faisceau pompe avec w le rayon du faisceau à $1/e^2$. Les conductivités thermiques piloteront la hausse de température au centre du faisceau pompe, et le rapport des conductivités l'étalement du faisceau. Notre résolution spatiale étant celle du faisceau sonde, le profil ne sera que grossièrement décrit ce qui fait que nous sommes que très peu sensibles au rapport $\hat{k}_0/\hat{k}_1$. La résistance thermique permet de considérer qu'à longue distance, la température n'est jamais celle observée sans la pompe (Fig. 5.8a).

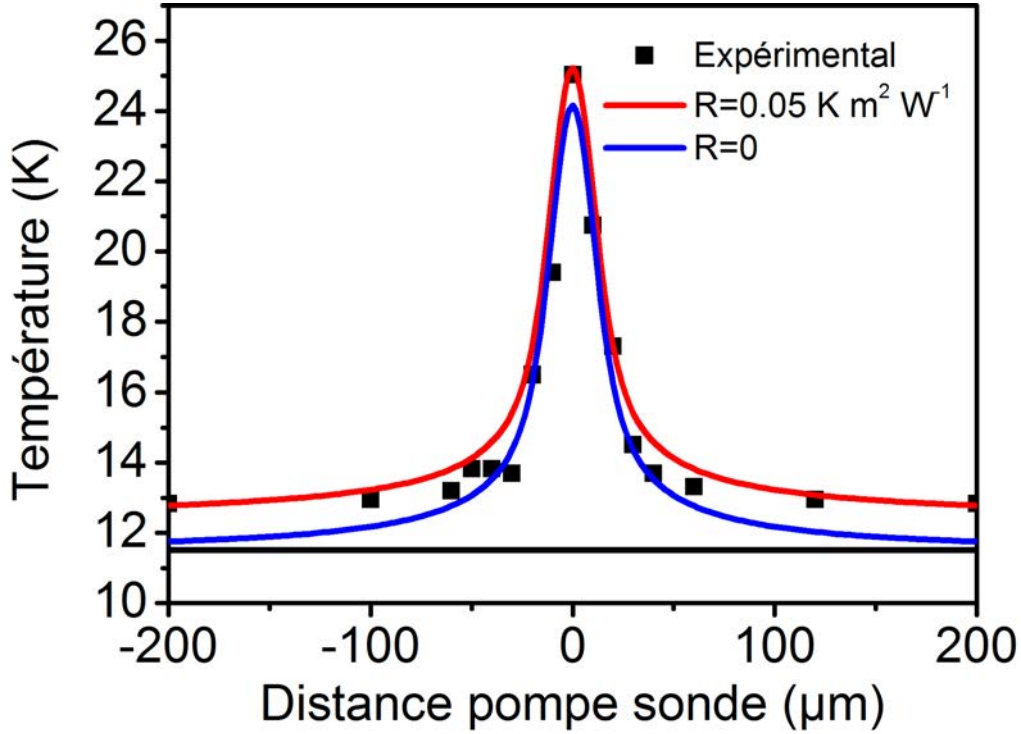


Figure 5.8: Résultat de la modélisation par l'Eq. 5.6 avec et sans résistance thermique.

Paramètres utilisés : $\hat{k}_0 = \hat{k}_1 = 8.7 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $L_S = 300 \text{ μm}$, $L = 50 \text{ nm}$, $P = 9.54 \text{ mW}$, $R = 0.05 \text{ K m}^2 \text{ W}^{-1}$ (courbe rouge) et $w = 17 \text{ μm}$

Discussion conductivité thermique et résistance thermique

Le résultat de la modélisation est porté sur la Fig. 5.8. Pour une puissance de 9.54 mW et un faisceau de largeur $w = 17 \text{ μm}$, le profil de l'élévation en température peut être reproduit avec $k_0 = 8.7 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ et une résistance thermique $R = 0.05 \text{ K m}^2 \text{ W}^{-1}$ ou une conductance thermique $R^{-1} = 20 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ (nous utiliserons cette dernière dans la discussion).

Dans le GaAs ou le GaAsP, la conductivité thermique pour des température de 10 K est très variable suivant le dopage, sur une plage de $10 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ à $5 \cdot 10^3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ pour un GaAs de haute qualité [20] (Fig. 5.9a), rendant ce dernier meilleur conducteur que du Cu pour cette température ($2 \cdot 10^3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ [74]). A basse température, les phonons étant dans un régime balistique, la conductivité thermique n'est limitée que par des effets de diffusion réduisant le libre parcours moyen des phonons, et des processus de Umklapp. En conséquence, plus les échantillons sont dopés p ou lorsque l'on augmente les effets d'alliage, moins la conductivité sera grande. Pour du GaAs dopé p avec une concentration de porteur de $1.2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, la conductivité thermique est de $50 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$. En comparaison, la valeur que l'on obtient $8.7 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ probablement à cause d'un effet de diffusion des porteurs dans le GaAs (Fig. 5.9a).

La résistance thermique est plus difficile à comparer à d'autres études, celle-ci variant en fonction des divers matériaux composant le problème (Fig. 5.9b). Physiquement, celle-ci tire son origine de la diffusion de phonons à l'interface entre deux milieux, provoquant des pertes de chaleur et créant une discontinuité thermique. Si on considère plutôt la présence d'une telle résistance entre deux matériaux "collés" artificiellement, cette résistance continue d'exister au sein d'un même échantillon même si très faible (exemple : $R = 10^{-8} \text{ m}^2 \text{ K W}^{-1}$ [27] pour des

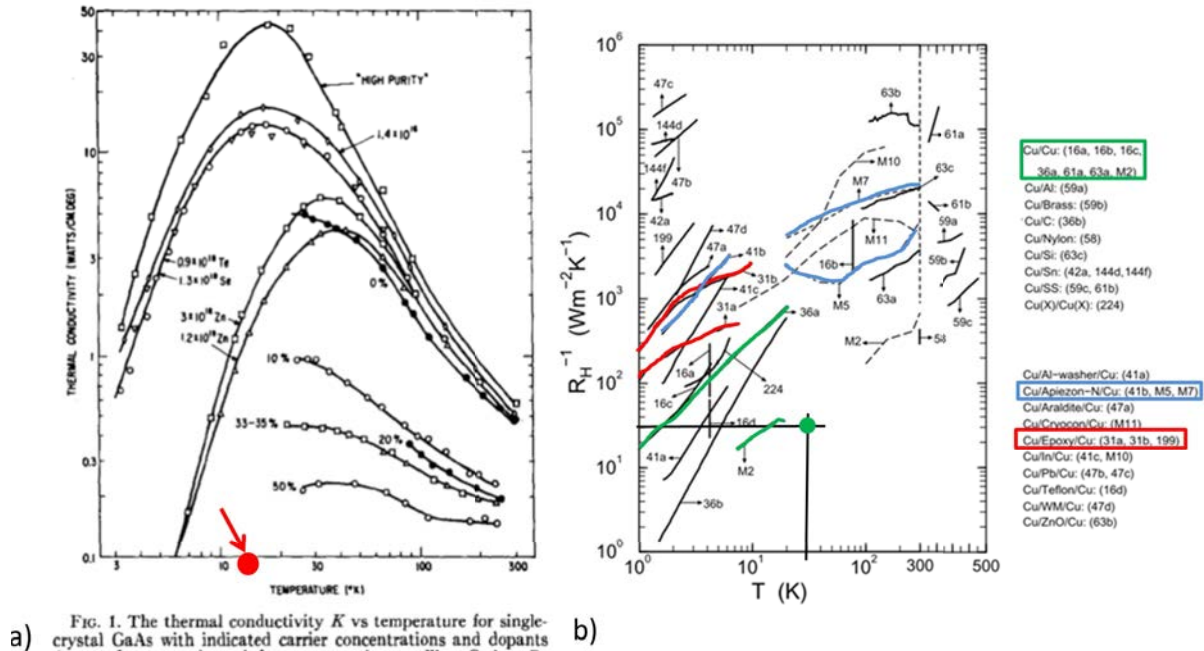


Figure 5.9: **a** : (Ref Blakemore *et al.* [20]) Conductivité thermique en fonction de la température pour du GaAs et du GaAsP. Le point rouge correspond à nos mesures. **b** : (Ref Gmelin *et al.* [61]) conductance thermique d'interface pour plusieurs systèmes de Cu/X/Cu à basse température. Le point vert correspond à notre mesure.

hétérostructures constituées de métaux comme de l'Al entre des couches de SiO₂). Le problème de résistance thermique est récurrent dans le domaine de l'électronique et la cryogénie et de nombreuses études s'intéressent à sa valeur dans le but d'améliorer l'efficacité thermique de colles ou de graisse par exemple (exemple avec des nanoparticules de carbone en solution [102]).

Nous n'avons pas trouvé de données dans la littérature faisant mention de l'évaluation de la résistance thermique pour un système Cu/laque d'Argent/GaAs. Toutefois dans Gmelin *et al.* [61] on peut trouver des systèmes se rapprochant comme : Cu/Epoxy/Cu (résine généralement bonne conductrice thermique), Cu/Apiezon-N/Cu (Apiezon : graisse servant couramment en cryogénie basée sur le Cu)(Fig. 5.9b) ou encore Inox/Polytech/Inox (Polytech : résine constituée d'Ag). Les conductances thermiques de ces autres systèmes sont plus fortes par rapport à la nôtre d'au moins 1 ordre de grandeur ce qui signifie que notre thermalisation n'est pas optimale. En fait, notre conductance thermique est plutôt caractéristique d'un système sans matériau de jonction avec le Cu. Ce point n'est toutefois pas étonnant, les échantillons restent généralement plusieurs semaines collés avec la même laque d'argent au sommet du doigt froid et des altérations de ces propriétés peuvent intervenir après un certain nombre de cycles en température. De plus, la qualité de la laque ² a un rôle important.

Notons toutefois que l'utilisation des propriétés magnétiques pour évaluer la résistance thermique à l'interface substrat/bain thermique est une approche originale que l'on ne retrouve pas dans la littérature.

²Certaines laques se sont avérées isolantes électriquement car trop ancienne !

Conclusion partie effet magnéto-optiques et technique expérimentale

Cette première partie a été dédiée aux effets magnéto-optiques, aux techniques expérimentales ainsi qu'aux effets thermiques stationnaires.

Dans le premier chapitre, nous avons présenté les effets magnéto-optiques considérés dans la suite du manuscrit à savoir l'effet Kerr polaire et l'effet Voigt. Par la suite, les signaux dynamiques contiendront ces deux effets [184][123].

Après présentation du dispositif expérimental, nous avons choisi d'illustrer l'utilisation des effets magnéto-optiques pour modéliser le mécanisme de retournement sous champ de $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$, et pour caractériser les effets thermiques stationnaires induits par la pompe.

Les mécanismes de retournement de l'aimantation sont bien compris dans la littérature. En revanche, une caractérisation des effets thermiques est beaucoup plus rare et nous avons proposé une méthode permettant de caractériser les effets thermiques stationnaires induits par une excitation laser dans notre système. Pour ce faire, nous avons utilisé les propriétés de l'effet Voigt, ce qui n'avait encore jamais été utilisé, afin de caractériser l'amplitude de l'élévation mais aussi son profil. Par des expériences en fonction de l'écartement pompe-sonde, et celles en fonction de la fluence, comparées aux expériences en fonction de la température, nous avons démontré qu'un cycle Voigt permettait de déduire une température localisée sous la pompe, et une à grande distance.

Grâce aux expériences en fonction de l'écartement, nous avons mis en évidence le profil thermique dû à la pompe ce qui nous a permis de remonter à la conductivité thermique de notre matériau. La conductivité thermique mesurée est de l'ordre de $10 \text{ W m}^{-1}\text{K}^{-1}$ plus celle du substrat de GaAs que de la couche de $(\text{Ga,Mn})\text{As}$. En marge de ces études nous avons mesuré une résistance de contact de la laque d'argent pour un système de type Cu/Laque d'argent/GaAs très forte.

La caractérisation des effets thermiques est essentielle pour la bonne compréhension et modélisation des phénomènes que nous étudierons dans les prochaines parties, les propriétés de $(\text{Ga,Mn})\text{As}$ étant très dépendante de la température stationnaire du système.

Partie III

Dynamique d'aimantation

Chapitre 6

Etat de l'art et phénoménologie de la dynamique d'aimantation

Dans cette première partie consacrée à la dynamique de l'aimantation sur (Ga,Mn)As sous excitation optique, nous allons nous intéresser aux différents phénomènes observés dans la littérature ainsi que par nous mêmes.

Les premières expériences démontrant un effet de la lumière sur l'état magnétique de (Ga,Mn)As ont été inspirées de celles conduites dans les semi-conducteurs magnétiques II-VI [95] où l'on peut agir sur le spin des manganèses grâce au spin des porteurs photo-crées en lumière polarisée circulairement. Dans (Ga,Mn)As, celles-ci ont été menées au Japon dans le groupe de H. Munekata [128][127] dans lequel les premières croissances de couches de (Ga,Mn)As ont été réalisées. En mesurant la résistance de Hall d'une piste de (Ga,Mn)As (Fig. 6.1 a), Oiwa *et al.* ont démontré que l'application d'une lumière continue polarisée circulairement était capable de renverser l'aimantation dans le plan de la couche, démontrant ainsi que la lumière pouvait avoir un effet sur l'aimantation. Ces expériences n'ont toutefois jamais été reproduites.

Le couplage de la lumière avec les propriétés magnétiques de (Ga,Mn)As a ensuite été étudié par plusieurs groupes en utilisant des techniques pompe-sonde. L'accès à la dynamique de l'aimantation et des porteurs après l'arrivée d'une impulsion pompe, à l'instar de ce qui se faisait dans les métaux [196], permet ainsi de remonter aux processus fondamentaux à l'origine du couplage de la lumière avec l'aimantation dans (Ga,Mn)As.

Parmi les groupes impliqués dans ces études, on retrouve celui de H. Munekata [129] au Japon, plusieurs groupes autour de J. Furdyna en Amérique du Nord [139][199][214] et en Corée [68] et un groupe à Prague autour de T. Jungwirth [147]. En France, seul un groupe à Strasbourg s'est intéressé à la dynamique d'aimantation par des excitations optiques dans (Ga,Mn)As [14]. La dynamique d'aimantation dans (Ga,Mn)(As,P) a été étudié soit en excitant les manganèses par des excitations acoustiques [160][22], soit plus récemment par des excitations optiques par le groupe de Prague [183] et désormais nous même [169]. Malgré le nombre de papiers expérimentaux, peu de groupes se sont intéressés à la théorie des excitations optiques dans (Ga,Mn)As [79][206][80], contrairement à ce qui a pu être fait pour les excitations acoustiques [103][160][22][187] ou encore dans les métaux [73].

Jusqu'en 2005, les auteurs des premières séries d'expériences pompe-sonde s'interrogeaient d'abord sur la nature même de leurs observations. Par exemple, une question était de savoir si le signal observé provenait bien des Mn, avec des tests en dessous et au dessus de la tem-

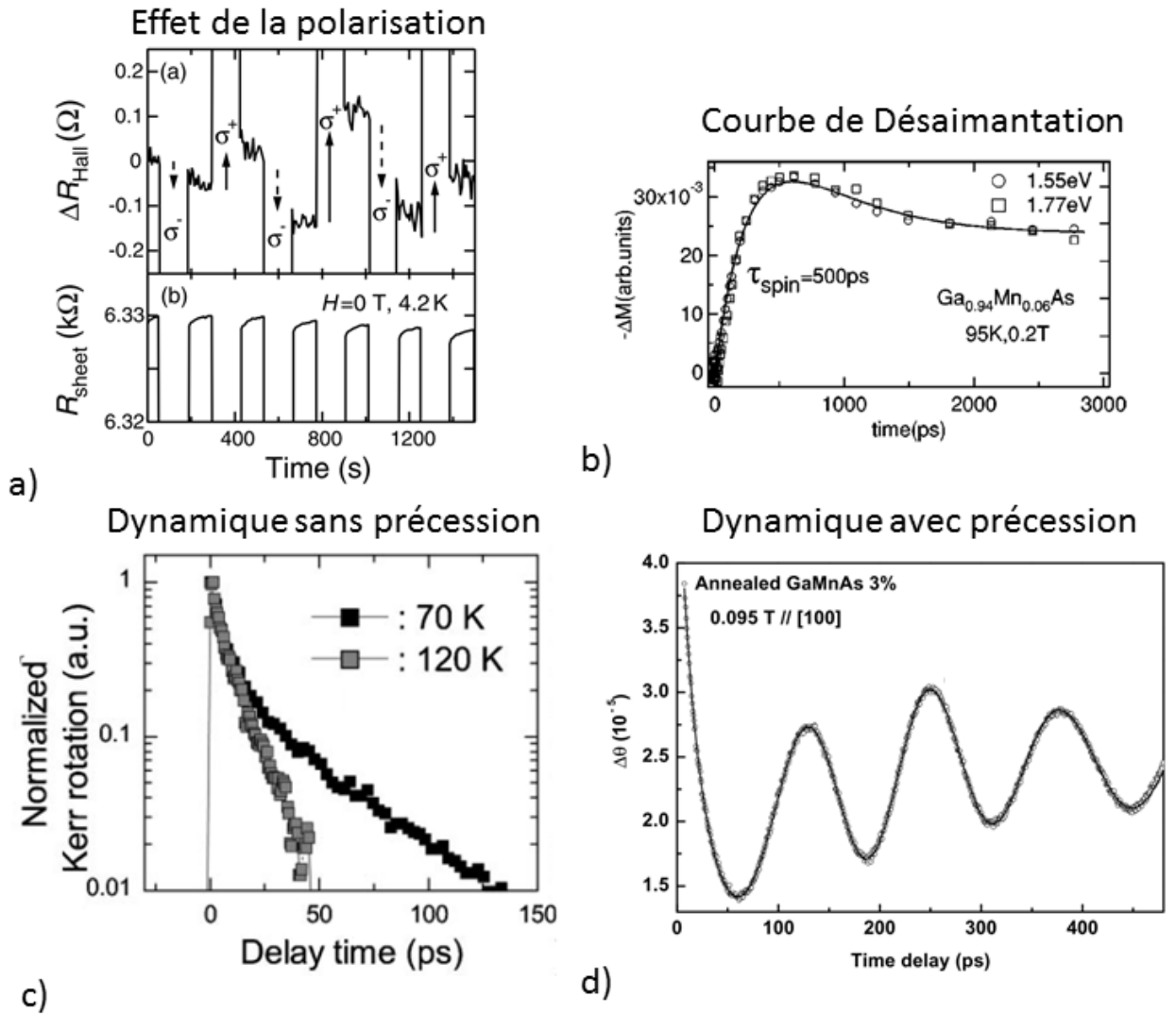


Figure 6.1: **a** : (Ref Oiwa *et al.* [127]) Premier résultat montrant l'influence d'une lumière continue polarisée sur l'état magnétique dans (Ga,Mn)As . **b** : (Ref Kojima *et al.* [92]) Première mesure de la désaimantation dans (Ga,Mn)As , attribuée à une faible capacité calorifique du Mn ($C_p = 18 \cdot 10^{-6} \text{ J K}^{-1} \text{ g}^{-1}$). **c** : (Ref Mitsumori *et al.* [118]) Dynamique de l'aimantation au dessus et en dessous de T_c aux temps courts. **d** : (Ref Wang *et al.* [200]) Dynamique de l'aimantation avec visualisation du régime précessionnel.

pérature de Curie afin de distinguer les signaux dépendants et indépendants de l'aimantation [118] (Fig. 6.1 c). Voyait-on la désaimantation du système magnétique [92] (Fig. 6.1 b) comme ce qui avait été observé quelques années plus tôt par Beaurepaire *et al.*[48]? (malgré la controverse à l'époque quant à l'interprétation d'un tel signal [93]). L'observation de la précession de l'aimantation dans les premiers articles n'est pas systématique, ce qui a motivé un intérêt pour les signaux de réflectivité différentielle [118](Fig. 6.1c) afin d'observer la dynamique de relaxation des porteurs injectés.

L'observation de la précession de l'aimantation à partir de 2005 par Oiwa *et al.* [129] et Wang *et al.* [200] ainsi que la découverte d'un effet Voigt géant par Kimel *et al.* [87] ont permis de mieux comprendre les signaux magnéto-optiques observés en pompe sonde ouvrant la voie à des interrogations sur les mécanismes d'excitation, les processus de relaxation ou encore la possibilité d'un renversement ultra-rapide de l'aimantation. Les avancées majeures sur la dynamique dans (Ga,Mn)As ont été réalisées par l'équipe de Prague au début de cette thèse en 2012.

Plusieurs leviers ont été utilisés pour l'étude de la dynamique de l'aimantation dans la littérature ainsi que par nous mêmes. Dans cette partie, nous passerons en revue ces leviers ainsi que leurs effets sur la dynamique. Les principaux paramètres au centre de notre intérêt seront les fréquences de précession de l'aimantation, leurs amplitudes ainsi que le temps de relaxation (τ) à travers un coefficient d'amortissement $\alpha = 1/\omega\tau$.

6.1 Effets de polarisation des faisceaux.

Le premier levier auquel nous allons nous intéresser est celui de la polarisation des faisceaux pompe et sonde, dans le but d'explorer l'interaction lumière-matière ayant lieu au sein de (Ga,Mn)As .

6.1.1 Effet de la polarisation de la pompe

Les expériences d'Oiwa *et al.* [127] étaient parmi les premières montrant qu'un renversement tout optique et réversible de l'aimantation grâce à différentes polarisations pompe était possible. L'intérêt était double : premièrement un tel renversement n'avait jamais été réalisé auparavant¹; deuxièmement on envisageait encore à l'époque que (Ga,Mn)As pourrait être ferromagnétique à température ambiante (voir Sandratskii *et al.* [153] par exemple) ce qui aurait ouvert la voie à des applications.

Motivés par les résultats de Oiwa *et al.* [127], Fernand-Rossier *et al.* [54] ont proposé l'introduction d'un terme décrivant un couple de transfert de spin optique dans LLG (OSTT), par analogie avec les équations de Slonczewski développées pour la propagation de parois de domaine par un courant polarisé en spin [172][192]. Ce terme utilise les règles de sélection des transitions optiques, produisant un champ spin-orbite agissant sur les Mn différemment pour une polarisation $\sigma_{\pm}$. L'analogie avec les équations de propagation de parois de domaine permet également de prédire un contrôle tout optique amenant à la réduction de l'amortissement α [124].

L'enthousiasme pour ces effets est néanmoins vite retombé lorsque les premières expériences ont montré que la précession de l'aimantation était indépendante de la polarisation des porteurs [92][199][138][169][135] à l'instar de ce qui fut observé dans le nickel [196]. En 2012, l'équipe de Prague a néanmoins pu montrer un effet de porteurs non polarisé en spin, en plus des effets thermiques, lorsque l'on injecte une fraction non négligeable de porteurs par rapport à la densité initiale, entraînant une déviation abrupte de l'aimantation sur des temps très courts (< 2 ps). Comme l'effet de la densité de porteurs sur l'anisotropie magnétique résulte des termes spin-orbite de l'hamiltonien, ils ont dénommé cet effet couple spin-orbite optique (Optical Spin-Orbit Torque, OSOT)[182].

¹Les premiers exemples datent de 2007 dans les grenats [174]

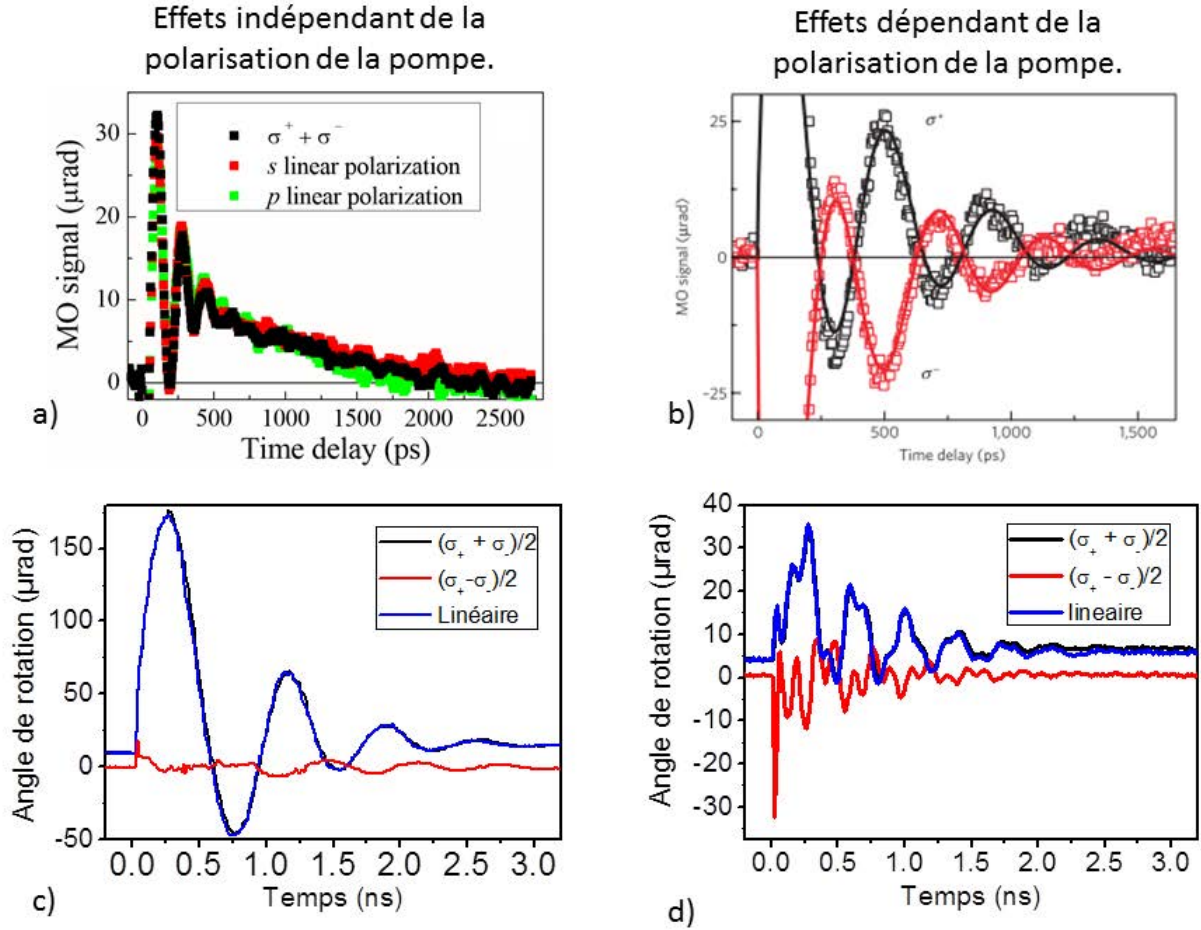


Figure 6.2: **a** Ref [182] a) Signaux dynamiques avec des polarisations excitatrices différentes. **b** : Ref [125], courbe montrant un effet de l'excitation dépendant de la polarisation de la pompe, mise en évidence de l'OSTT. **c,d** : Dynamique de l'aimantation montrant les effets dépendants de la polarisation ($\sigma_+ - \sigma_-$) et indépendants de la polarisation ($\sigma_+ + \sigma_-$) comparées à celle obtenue avec une polarisation linéaire. Sur **c**, les effets indépendants de la polarisation sont dominants alors que sur **d** les deux effets sont pratiquement comparables.

c Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; $F_{pompe}=105 \mu J cm^{-2}$; $F_{sonde}=0.6 \mu J cm^{-2}$; polarisation sonde : $\parallel[110]$, $\lambda = 700 nm$; **d** Echantillon $Mn_{10}P_0$; $F_{pompe}=90 \mu J cm^{-2}$; $F_{sonde}=0.6 \mu J cm^{-2}$; polarisation sonde : $\parallel[110]$, $\lambda = 700 nm$

Dans la littérature, les effets de la polarisation de la pompe ont été observés par l'équipe de H. Munekata [118] et celle de J. Furdyna [139] (Fig. 6.2 a), mais l'étude détaillée de ces effets ainsi que la démonstration d'un OSTT n'ont été effectuées par l'équipe de T. Jungwirth qu'en 2012 [125] (Fig. 6.2 b). Grâce au collage d'un échantillon sur des transducteurs piézo-électriques, les auteurs ont été en mesure d'induire des contraintes compensant les champs d'anisotropie. La seule façon d'exciter la dynamique est donc par une variation de densité de porteurs et/ou de la polarisation de spin des porteurs. Les effets d'OSTT apparaissent ensuite à partir d'une fluence seuil d'environ $70 \mu J cm^{-2}$.

Dans le cadre de cette thèse la plupart des effets observés sont indépendants de la polari-

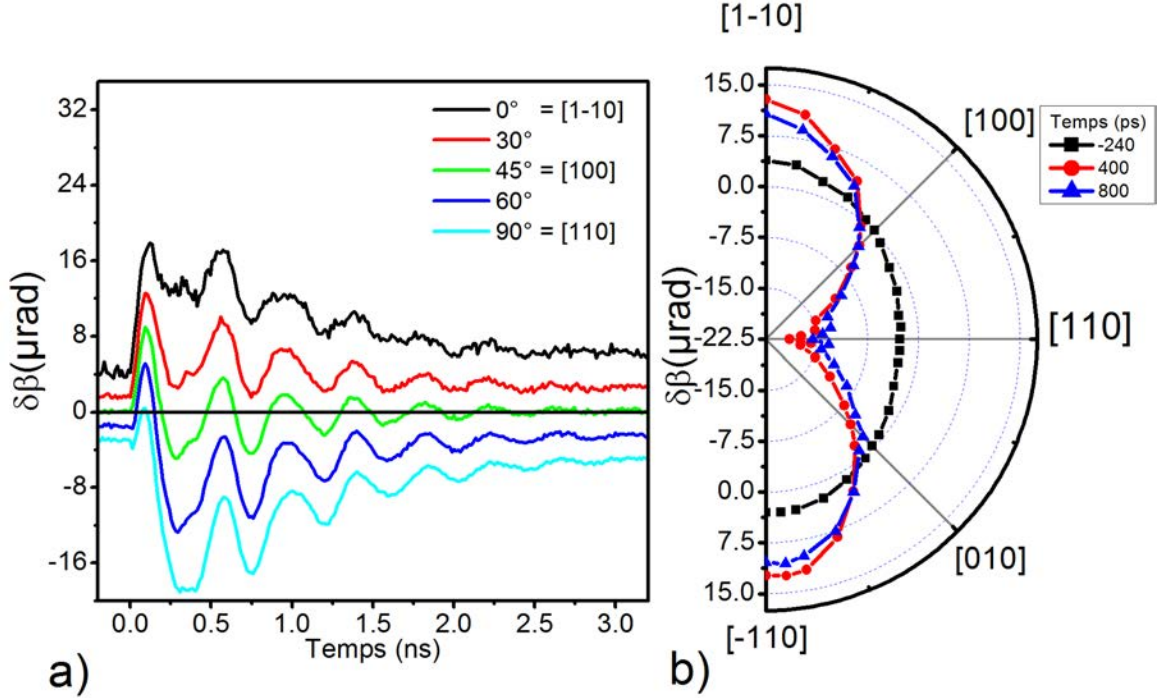


Figure 6.3: Signaux dynamiques obtenus en fonction de la polarisation de la sonde. **a**: courbes dynamiques brutes. **b** amplitudes de rotation à différents temps en fonction de la polarisation sur **a**.

Echantillon $\text{Mn}_8\text{P}_{4.3}$; $T=11.5\text{ K}$; $F_{\text{pompe}}=1.1\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$ et $F_{\text{sonde}}=0.4\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$; Polarisation pompe : $\parallel[110]$

sation de la pompe (un exemple sur Fig. 6.2 c) et ce jusqu'à la fluence maximale atteinte de $F_{\text{pompe}}=150\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$. Les effets dépendants de la polarisation ont néanmoins pu être observés (Fig. 6.2 d) uniquement dans deux échantillons sans phosphore et à partir d'une faible fluence de pompe ($F_{\text{pompe}}=10\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$). Les conditions quant à l'observation d'effets dépendants de la polarisation ne sont pas claires dans la littérature.

La rareté des effets de polarisation nous a amené à la question suivante :

Quelles sont les conditions pour l'observation d'effets dépendants de la polarisation de la pompe?

6.1.2 Effet de la polarisation de la sonde

L'observation d'un effet Voigt² géant dans $(\text{Ga,Mn})\text{As}$ par Kimel *et al.* [87] a eu un profond impact sur l'étude des signaux dynamiques. Avant la compréhension de la présence de l'effet Voigt, les oscillations n'étaient attribuées qu'à l'effet Kerr polaire soit la variation de la composante hors plan de l'aimantation ($\delta\theta(t)$) [199]. L'introduction de l'effet Voigt rajoute la possibilité d'observer la composante dans le plan de l'aimantation ($\delta\phi(t)$) mais rajoute aussi de la complexité dans l'interprétation du signal car l'effet Voigt dépend de la polarisation de la sonde.

Peu d'études se sont réellement intéressées à cette dépendance. La première étude étant celle de Hashimoto *et al.* [70] où les auteurs ont pu mettre en évidence des formes de courbes

²Aussi appelé biréfringence ou dichroïsme magnétique linéaire, ou encore effet Cotton-Mouton.

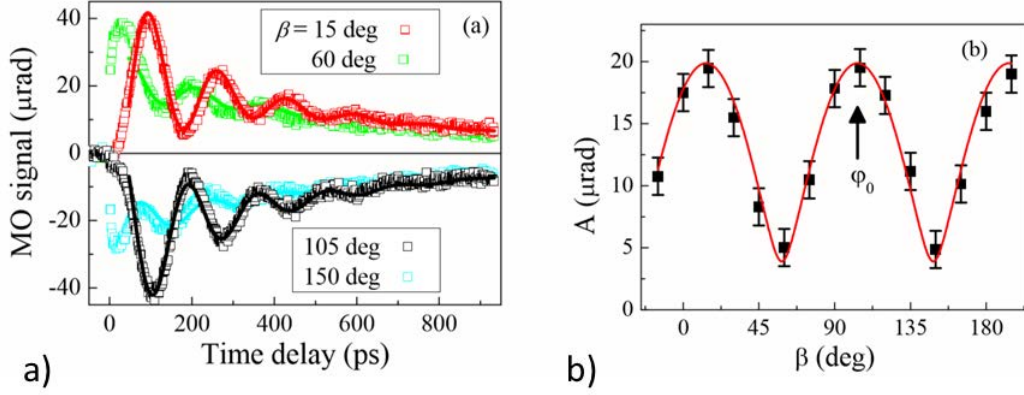


Figure 6.4: Ref [125] (supplemental material) : dynamique en fonction de la polarisation de la sonde sur (Ga,Mn)As . ϕ_0 représente l'angle d'équilibre de l'aimantation, β l'angle de la polarisation de la sonde.

différentes suivant la polarisation de la sonde. Au tout début de cette thèse, une importante série d'études réalisée par Tesarova *et al.* [184] a pu montrer dans (Ga,Mn)As qu'il était possible de reconstruire la dynamique de l'aimantation en additionnant et soustrayant des courbes obtenues à différentes polarisations sonde. En utilisant le fait que l'effet Voigt a une dépendance angulaire avec la polarisation et non l'effet Kerr, les auteurs ont expliqué leurs dépendances en polarisation (Fig. 6.4b) ce qui leur a permis de séparer $\delta\theta(t)$ de $\delta\phi(t)$. Cette reconstruction a permis aux auteurs de mettre en évidence différents régimes d'excitations dans (Ga,Mn)As .

Dans l'optique de reconstruire la dynamique de l'aimantation de la même façon que [184], nous avons réalisé de nombreuses expériences en fonction de la polarisation de la sonde. Un aperçu du résultat de la dépendance en polarisation est donné sur la Fig. 6.3.

Le signal de la Fig. 6.3b a été obtenu sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ et présente une symétrie d'ordre 2. Nous verrons par la suite si cette dépendance est comparable ou non avec les résultats obtenus par Tesarova *et al.*.

De plus, un fond de forme exponentielle peut être observé pour certaines polarisations, avec un temps de montée d'approximativement 250 ps, et un temps de déclin d'environ 1 ns.

Comme on pourrait s'y attendre, la polarisation de la sonde ne semble pas avoir d'incidence aussi bien sur les fréquences que sur l'amortissement des oscillations.

Ces différents points nous amènent aux questions suivantes :

1. Quelle est la trajectoire de l'aimantation?
2. Quelle est l'origine physique de ce fond exponentiel?

6.2 Effet de la température

Les propriétés magnétiques étant fortement dépendantes de la température dans (Ga,Mn)As , cette dernière représente un levier naturel afin de tester la réponse de l'aimantation suite à une

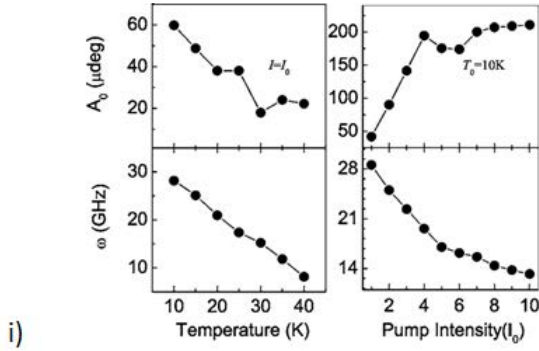


FIG. 2. Amplitude A_0 and angular frequency ω as a function of temperature T_0 at constant pump intensity $I = I_0$, and as a function of pump intensity (in units of I_0) at $T_0 = 10\text{ K}$ ($I_0 = 0.065\text{ nJ/pulse}$).

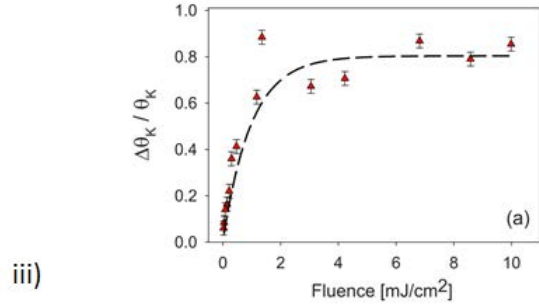


FIG. 9. (Color online) (a) The magnitude of $\Delta\theta_K / \theta_K$ at a fixed time delay of 150 ps is plotted vs pump pulse fluence. A fit of the data to a saturation function is also shown (dashed curve).

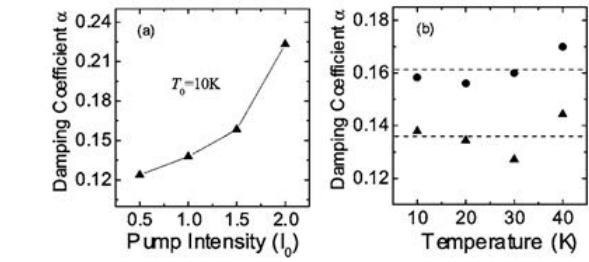


FIG. 3. (a) Gilbert damping coefficient α as a function of pump intensity in units of I_0 at $T_0 = 10\text{ K}$ ($I_0 = 0.065\text{ nJ/pulse}$). (b) Gilbert damping coefficient α as a function of temperature (T_0) at two pump intensities $I = I_0$ (triangles) and $I = 1.5I_0$ (circles).

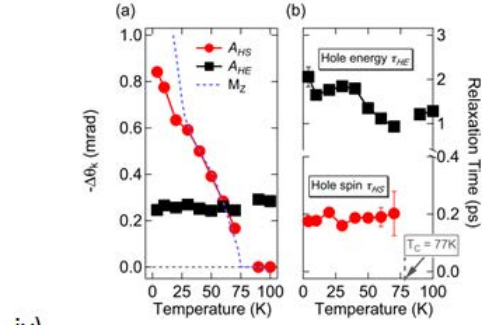


FIG. 4. (Color online) (a) Transient amplitude A_{HS} (red) extracted from Eq. (1) for the hole spin-relaxation process, and its scaling with the static magnetization along [001] (blue dashed line) for temperatures above $T_R \sim 30\text{ K}$ (i.e., where the easy axis reorientation occurs); the amplitude of the hole energy relaxation, A_{HE} (black), remains mostly constant with temperature. (b) Relaxation times as a function of temperature for the τ_{HS} (red) and τ_{HE} (black) components.

Figure 6.5: **i** : (Ref Qi *et al.* [139]) amplitude et fréquences des oscillations en fonction de la température et de la fluence de la pompe sur du (Ga,Mn)As . **ii** : (Ref Qi *et al.* [139]) dépendance de α en fonction de la puissance de pompe et de la température. **iii** : (Ref Zahn *et al.* [214]), a : amplitude de la rotation Kerr en fonction de la fluence de la pompe. **iv** : (Ref Patz *et al.* [135]), a) amplitude et temps de relaxation (b) de l'exponentielle décrivant les porteurs polarisés en spin (A_{HS}) et ceux indépendants du spin (A_{HE}).

excitation optique.

Quelques études se sont intéressées à l'influence de ce paramètre sur la dynamique de l'aimantation, surtout à des fins de comparaison avec les effets de la fluence de la pompe. Sur les temps supérieurs à 10 ps quelques auteurs ont pu constater que l'amplitude des oscillations ainsi que les fréquences diminuaient avec la température de façon monotone tandis que l'amortissement augmentait (Fig. 6.5 i,ii)[139][147][219][182].

Plus récemment, l'étude de Patz *et al.* [135] (Fig. 6.5 iv) s'est intéressée à la dynamique sur les temps courts et comment celle-ci évoluait en fonction de la température. Les auteurs ont ainsi pu observer le temps de relaxation de spin des trous et leurs temps de relaxation en énergie jusqu'à la température de Curie où la contribution des trous polarisés en spin disparaît.

La dynamique des Mn étant au centre de notre intérêt, nous avons surtout exploré les temps longs. Un exemple de nos résultats est illustré sur la Fig. 6.6 où l'on a fait varier la température de notre système, pour une faible excitation pompe ($F_{pompe} = 1.5\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$). On observe clairement une diminution de l'amplitude et des fréquences des oscillations en fonction de la

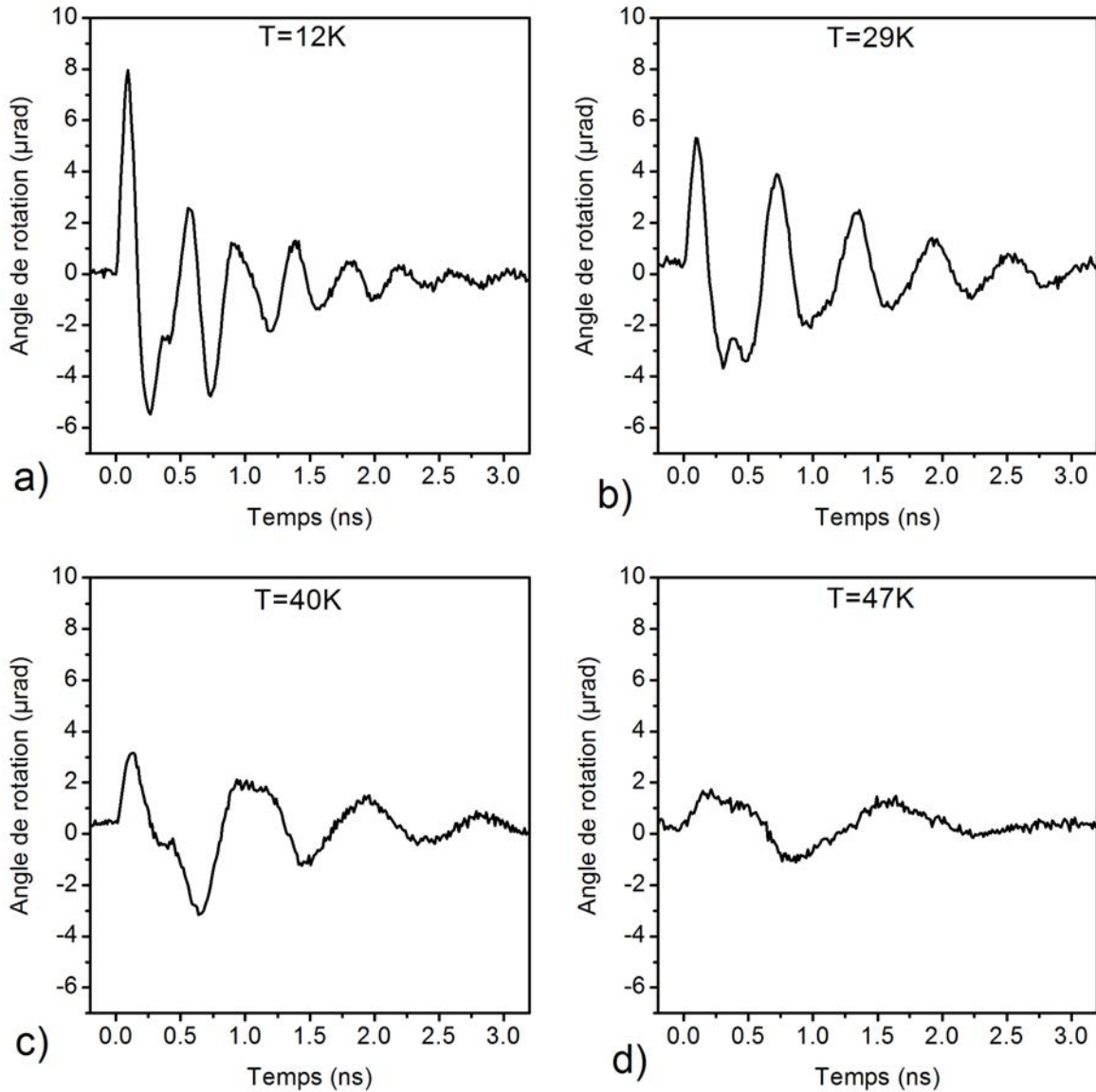


Figure 6.6: Courbes dynamiques en fonction de la température de l'échantillon sur $\text{Mn}_8\text{P}_{4.3}$. **a** : $T=12\text{ K}$; **b** : $T=29\text{ K}$; **c** : $T=40\text{ K}$; **d** : $T=49\text{ K}$.

Echantillon $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; $F_{\text{pompe}}=2\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$; $F_{\text{sonde}}=0.7\text{ }\mu\text{J cm}^{-2}$; polarisation sonde : $\parallel[100]$; polarisation pompe : $\parallel[110]$

température. Ces résultats rejoignent ceux déjà observés dans la littérature.

Tous nos échantillons ayant été caractérisés en amont par FMR, nous connaissons la dépendance des coefficients d'anisotropie magnétique en fonction de la température. Nous allons ainsi pouvoir comparer les résultats obtenus par FMR et par technique pompe sonde. Cette comparaison a déjà été réalisée dans les métaux où il a ainsi pu être prouvé que les techniques pompe-sonde sont des équivalents FMR optiques. Dans $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ cette correspondance a été établie en fonction du champ magnétique [129] mais pas en fonction de la température. Dans le cas des études de l'équipe de T. Jungwirth, les constantes d'anisotropie magnétique sont déduites directement par technique pompe-sonde mais n'ont pas été comparées à celles trouvées par FMR.

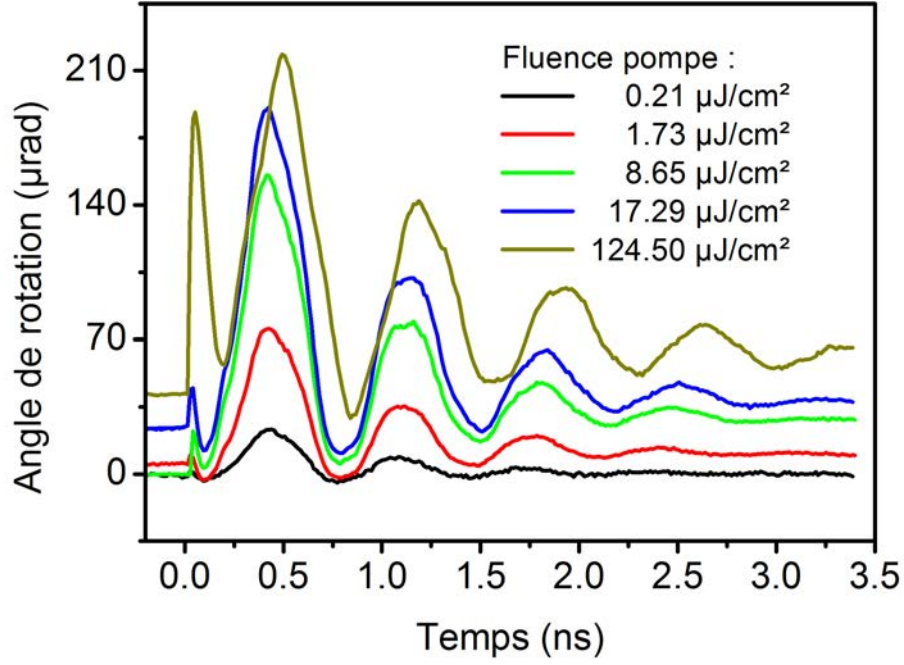


Figure 6.7: Signaux dynamiques en fonction de la fluence de la pompe pour l'échantillon $Mn_7P_{2.6}$. Le décalage des courbes entre elles est naturel.

Echantillon : $Mn_7P_{2.6}$; $T=11.5$ K ; $F_{sonde}=0.6 \mu J cm^{-2}$; polarisation sonde : $\parallel[100]$; polarisation pompe : linéaire $\parallel[110]$

Toutes ces observations et remarques nous amènent aux questions suivantes :

1. Nos résultats sont-ils en accord avec les expériences FMR en fonction de la température?
2. Pourquoi l'amplitude des oscillations diminue-t-elle avec la température?

6.3 Effet de la fluence de la pompe

Lorsque l'énergie du faisceau est supérieure à celle de la bande interdite, une impulsion pompe crée des paires électrons-trous qui, par interaction électron-phonon, conduisent à une élévation de température. Celle-ci est la somme des élévations de température stationnaire ΔT_0 et dynamique $\Delta T(t)$. Dans la partie II chapitre 5, nous avons déjà étudié l'augmentation de la température stationnaire de notre système sous l'action de la pompe.

Cette première étude va nous servir de base afin d'étudier la dynamique pompe-sonde en fonction de la fluence de la pompe. Ce type d'étude est courante dans la littérature dans le but d'étudier plusieurs régimes d'excitation. Le but ultime est de comprendre comment créer une excitation suffisamment forte permettant un retournement purement précessionnel de l'aimantation comme les prédictions faites pour des excitations par onde acoustique [187].

La première étude en fonction de la fluence de la pompe a été menée par Qi *et al.* [139] (Fig. 6.5 i,ii) et montre que les amplitudes des oscillations augmentent, et les fréquences des oscillations diminuaient avec la fluence de la pompe jusqu'à atteindre un plateau pour des puissances de l'ordre de 20 mW. Les mêmes types d'observations ont été faites par Rozkotova *et al.*

[147], Zahn *et al.* [214] (Fig. 6.5 iii) puis par Nemec *et al.* [182]. Les amortissements α mesurés dans la littérature en fonction de la fluence de la sonde présentent tous une augmentation non linéaire en fonction de la fluence de la pompe.

Dans le cadre de ces études, l'équipe de T. Jungwirth a montré qu'au delà d'une fluence pompe de $70 \mu\text{J cm}^{-2}$ on entrainait dans un régime d'OSOT : les effets thermiques deviennent négligeables et l'effet de variation de densité de porteurs devient efficace ce qui permet d'atteindre des amplitudes de précession très fortes (>10 deg, [182]).

Dans la continuité de ces travaux, nous avons réalisé le même type d'expériences sur (Ga,Mn)(As,P) dont nous présentons ici quelques courbes (Fig. 6.7). Les fluences typiques que nous utilisons vont jusqu'à la centaine de $\mu\text{J cm}^{-2}$ ce qui est comparable avec les études mentionnées précédemment à l'exception de celle de Zahn *et al.* [214] où les fluences sont de l'ordre du mJ cm^{-2} .

Comme dans la littérature, nous avons observé que l'augmentation de la fluence entraîne une augmentation de l'amplitude et de l'amortissement des oscillations, ainsi qu'une diminution de la fréquence de précession. On peut noter une évolution remarquable de la forme des courbes, particulièrement marquée aux temps courts (<100 ps), avec un pic très net qui augmente avec la fluence. Autre effet remarquable, l'augmentation de l'amplitude d'un signal de base, indépendant du temps, bien visible lorsque l'on s'intéresse aux temps négatifs avant que la pompe n'interagisse avec l'échantillon. Ce type de comportement non évoqué dans la littérature a été systématiquement observé dans nos échantillons.

Ces observations nous ont amenés aux questions suivantes :

1. Quel est le mécanisme d'excitation de la dynamique de l'aimantation?
2. Quelle est la température de notre système? L'augmentation stationnaire en température correspond elle à celle déjà mesurée? Est-on sensible à la température transitoire?
3. Pourquoi l'amortissement varie-t-il en fonction de la fluence de la pompe?

6.4 Effet du champ magnétique

Le champ magnétique est le dernier paramètre sur lequel nous avons joué afin d'observer la dynamique de l'aimantation. Après les expériences en fonction de la fluence de la pompe, ce dernier type d'expérience est le plus répandu dans la littérature sur (Ga,Mn)As [129],[182],[125][199][181] mais aussi plus généralement dans les métaux [87][217][178][151] de par la richesse des informations pouvant en être extraites.

La première étude montrant l'influence du champ magnétique est celle d'Oiwa *et al.* [129] où les auteurs ont mesuré pour la première fois la précession, et donc une fréquence (Fig. 6.8a). En comparant leurs mesures fréquentielles en fonction du champ avec les fréquences prédites par les constantes d'anisotropies obtenues en FMR³, Oiwa *et al.* ont démontré que la précession était due aux Mn. Cette observation a ensuite été reproduite par l'équipe de T.Jungwirth [182] ainsi que par Wang *et al.* [199]. L'évolution non monotone et non linéaire de ω en fonction du champ peut être comprise aisément dans un formalisme se basant sur LLG, où la fréquence de

³Avec $g=2$

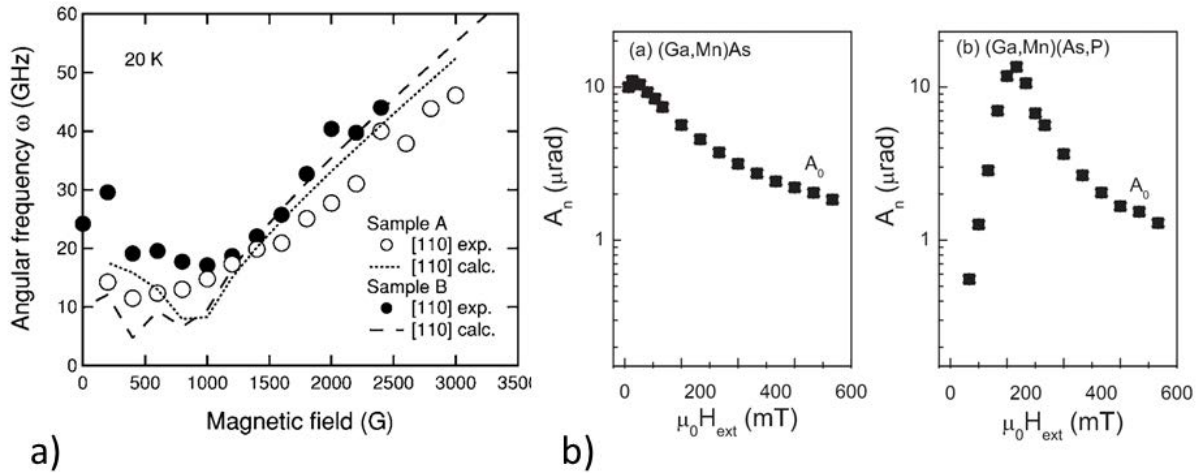


Figure 6.8: **a** (Ref Oiwa *et al.* [129]) : fréquence de précession en fonction du champ magnétique. **b** (Ref Tesarova *et al.* [181]) Dépendance des amplitudes des oscillations en fonction du champ magnétique dans (Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P) .

précession est proportionnelle à un champ effectif.

Dans Oiwa *et al.* [129], les auteurs ont observé une dépendance de l'amplitude des oscillations en fonction du champ magnétique, mesure qui a été confirmée par la suite par le groupe de Prague aussi bien sur (Ga,Mn)As [123] que sur (Ga,Mn)(As,P) [181] (Fig. 6.8 B). Ces observations ne sont pas spécifiques à (Ga,Mn)As et peuvent aussi être retrouvées dans les métaux [217][151].

Comme vu dans les précédentes parties sur les effets de la température et de la fluence de la pompe, les observations dans la littérature font état d'un amortissement variable en fonction du champ magnétique. Par exemple, dans [123], α commence par augmenter de 0.02 à 0.06 avant de décroître vers une valeur de 0.02 à fort champ. Ces effets sont désormais bien connus dans les métaux [107] mais moins dans (Ga,Mn)As où les acteurs dans le domaine proviennent de la communauté des semi-conducteurs plus habituée à considérer les temps de relaxation plutôt que l'amortissement.

Ces différentes expériences et résultats nous ont servi de base afin d'étudier le comportement de la dynamique de l'aimantation en fonction du champ et comprendre les excitations optiques. Un exemple est donné sur la Fig. 6.9. On peut observer que l'amplitude des oscillations augmente presque d'un facteur 10 entre zéro et 47.1 mT. Au delà, à 96.5 mT l'amplitude des oscillations diminue fortement avec un changement de signe. Les oscillations finissent ensuite par ne plus être visibles pour des champs forts (>142.1 mT). Autre particularité, à champ nul, deux fréquences de précessions peuvent être visible alors que le signal à 47.1 mT ne montre la présence qu'une seule fréquence.

Au delà des fréquences de précession et de l'amortissement (moins évident à voir dans ce cas), cette expérience confirme les observations trouvées dans les précédentes études quant à la dépendance de l'excitation en fonction du champ magnétique et amène plusieurs questions :

1. Comment le champ modifie-t-il la dynamique de l'aimantation?
2. Comment le champ influe-t-il sur le mécanisme d'excitation des ondes de spin?

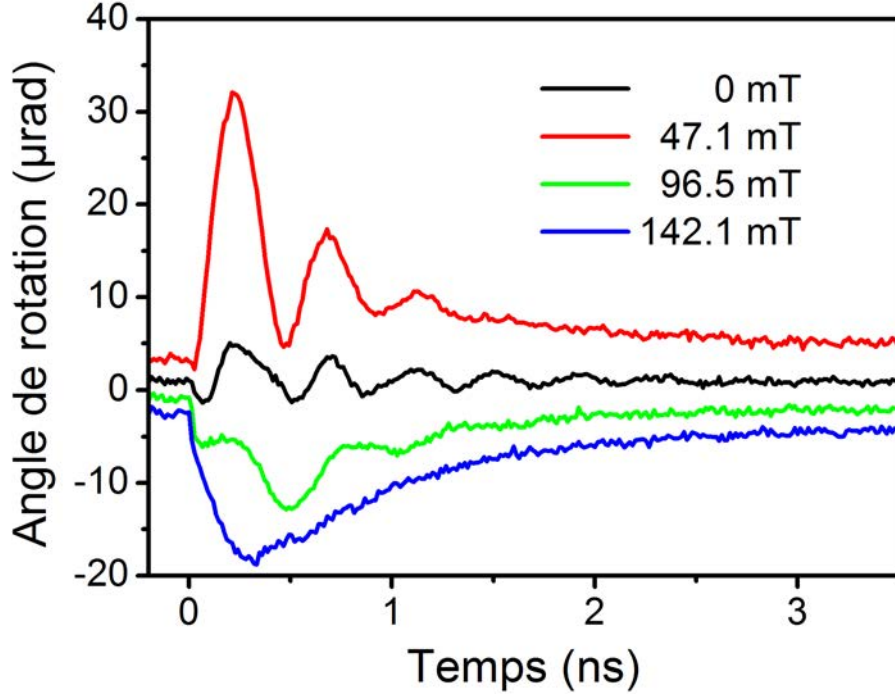


Figure 6.9: Dynamique de l'aimantation dans $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ avec l'application d'un champ magnétique suivant [110].

Echantillon $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; $T=11.5$ K ; $F_{\text{pompe}}=1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$; $F_{\text{sonde}}=0.6 \mu\text{J cm}^{-2}$; polarisation sonde : $\parallel[100]$, polarisation pompe : $\parallel[110]$

6.5 Effet de la longueur d'onde

Dans la littérature, la dynamique de l'aimantation n'a été que très peu étudiée en fonction de la longueur d'onde, la plupart des études restant à 800 nm, proche de la bande interdite de $(\text{Ga,Mn})\text{As}$. La longueur d'onde a plusieurs effets sur les mécanismes d'excitation et de détection.

Lorsque l'énergie des photons est proche de celle de la largeur de la bande interdite, les effets d'absorption sont réduits ce qui a pour conséquence de limiter les effets d'augmentation de température. Ainsi, les chances d'observer des effets de la modification de la densité de porteurs sont plus grandes. Néanmoins, comme nous l'avons démontré dans la partie précédente, à 800 nm les effets en température restent non négligeables même pour des longueurs d'ondes aussi élevées. A contrario, l'utilisation de longueur d'onde plus faible permet de maximiser l'injection de porteurs polarisés ou non en spin dans le système. Ainsi, l'utilisation d'une polarisation $\sigma_{\pm}$ pourrait être plus efficace. L'inconvénient est que les effets en température sont plus forts.

Les effets magnéto-optiques ayant une dépendance en longueur d'onde, le choix d'une longueur d'onde permet de favoriser un effet plutôt qu'un autre. Tesarova *et al.* ont étudié en profondeur la dépendance de l'effet Voigt en fonction de la longueur d'onde [183] motivant leur choix de travailler à $\lambda=750$ nm où l'effet Voigt est maximal pour leurs échantillons.

Le choix de la longueur d'onde est souvent purement technique. La plupart des études

utilisent des laser Ti:Sa où la courbe d'amplification du laser est maximale à 800 nm ce qui permet d'envoyer une plus grande fluence sur un échantillon.

Dans notre cas, nous avons travaillé avec plusieurs longueurs d'onde mais principalement à 700 nm c'est à dire aussi proche que possible du pic d'effet Kerr comme montré précédemment dans la Fig. 3.2. Cette longueur d'onde nous permet également de maximiser l'absorption des photons étant donnée les longueurs d'ondes disponibles.

Chapitre 7

Comparaison FMR-pompe sonde

Durant cette thèse, nous avons pu constater qu'exciter l'aimantation par le biais d'une impulsion optique était plus ou moins facile suivant les échantillons. Par exemple, sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ ou $\text{Mn}_{10}\text{P}_{5.1}$, échantillons à aimantation planaire, les signaux dynamiques se sont révélés relativement aisés à obtenir. A contrario, d'autres comme $\text{Mn}_{6.64}\text{P}_{6.64}$ ayant une anisotropie plus faible comparée à $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$, ou encore des échantillons à aimantation hors-plan se sont révélés nettement moins dociles. Dans la Fig. 7.1 nous présentons quelques dynamiques caractéristiques obtenues sans champ magnétique. On peut remarquer suivant les échantillons des amplitudes d'excitation ainsi que des fréquences différentes. A première vue, plus l'anisotropie est faible, plus il est facile d'exciter mais nous montrerons par la suite que dans les faits, le mécanisme n'est pas aussi simple.

Nous avons décomposé les études sur la dynamique en deux chapitres. Dans ce premier chapitre, on s'intéressera à des aspects fondamentaux de la dynamique d'aimantation comme les fréquences de précession et l'amortissement ou encore sur le degré de précision des coefficients d'anisotropie magnéto-cristalline (K_i) que l'on peut déduire lors d'expérience FMR. Ces discussions sont des préalables afin de mieux appréhender l'excitation de la dynamique ce que nous aborderons dans le chapitre 2 de cette partie.

Dans un premier temps, nous commencerons par discuter l'équation fondamentale à utiliser pour décrire l'évolution du système magnétique après une impulsion optique. Puis, nous présenterons quelques bases théoriques afin de définir les quantités utilisées ainsi que leurs notations. Nous passerons ensuite aux résultats expérimentaux et comparerons ces derniers aux prédictions données par les K_i mesurés en FMR.

7.1 Modélisation de la dynamique de l'aimantation

L'impact d'une impulsion laser sur l'échantillon entraîne une variation impulsionnelle des constantes d'anisotropies (K_i). Cette variation peut avoir plusieurs origines : variations de température, de densité de porteurs polarisés (OSTT) ou non polarisés en spin (OSOT). De manière générale, la variation de température sera toujours présente et donc le module de l'aimantation M_s est censé varier au cours du temps. En toute rigueur, l'étude de la dynamique de l'aimantation nécessiterait d'utiliser l'équation de Landau-Lifshitz-Bloch dérivée par Garanin *et al.* [59] à partir de l'équation de Fokker-Planck et qui permet de prendre en compte les variations du module de l'aimantation.

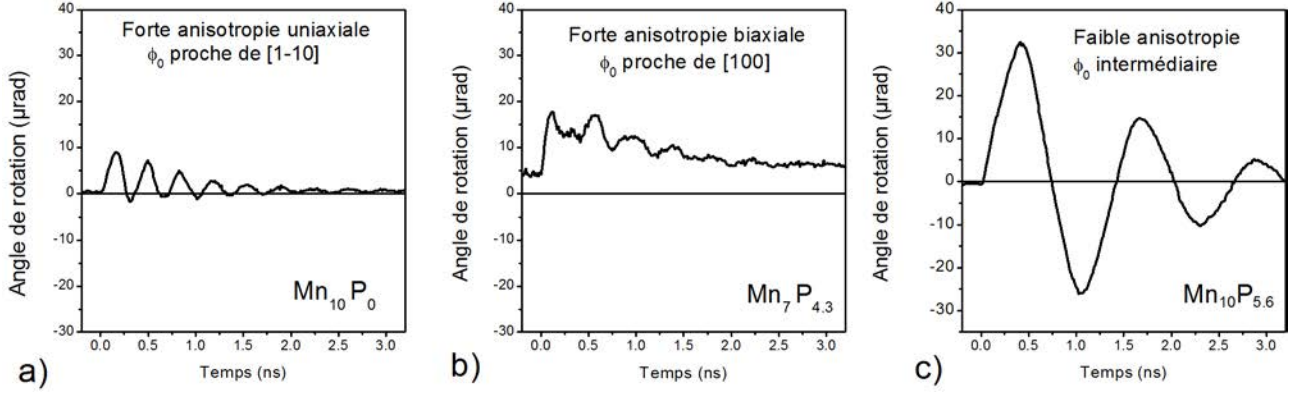


Figure 7.1: Comparaison des signaux magnéto-optiques obtenus en champ nul pour 3 échantillons de (Ga,Mn)(As,P) pour $F_{pompe}=1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$.

7.1.1 Variation du module de l'aimantation : LLG ou LL-Bloch?

Avec le développement du retournement optique assisté par des processus thermiques, la dynamique de l'aimantation commence à être étudiée en prenant en compte une variation du module de l'aimantation, voir le passage par une phase paramagnétique due à une variation impulsionnelle de température [10]. Ces effets ne peuvent pas être pris en compte par LLG qui suppose aucune variation du module de l'aimantation, mais par LLB. Suivant les notations de Garanin *et al.* [30], la dynamique de l'aimantation par LLB est donnée par :

$$\frac{d\vec{m}}{dt} = -\gamma(\vec{m} \times \vec{B}_{eff}) + \gamma\alpha_{\parallel} \frac{(\vec{m} \cdot \vec{B}_{eff})\vec{m}}{m^2} - \gamma\alpha_{\perp} \frac{[\vec{m} \times (\vec{m} \times \vec{B}_{eff})]}{m^2} \quad (7.1)$$

avec $\vec{m}(t) = \vec{M}(t)/M_s(T)$. m suit une fonction de Langevin $L_a[\frac{1}{k_B T}(mJ_{ex} + \mu_B \mu_0 H)]$ définie par $L_a(x) = \coth(x) - 1/x$. L'amortissement est décrit par deux termes : un terme transverse $\alpha_{\perp} = \alpha_{LL}(1 - T/3T_C)$ se rapprochant de l'amortissement de Landau (α_{LL}) décrivant la relaxation de l'aimantation vers son équilibre, et un terme longitudinal, absent dans LL, $\alpha_{\parallel} = \alpha_{LL}2T/3T_C$ décrivant la variation du module de l'aimantation. Le champ effectif $\vec{B}_{eff} = \mu_0 \vec{H}_{eff}$ est défini pour $T < T_c$ par :

$$\vec{B}_{eff} = -\frac{\delta F}{\delta \vec{m}} = \mu_0 \vec{H} + \mu_0 \vec{H}_a + \frac{M}{\chi_{\parallel}}(1 - m^2)\vec{m} \quad (7.2)$$

avec $\chi_{\parallel} = \frac{\partial \vec{m}}{\partial B_{eff}}$, la susceptibilité magnétique longitudinale. La susceptibilité transverse $\chi_{\perp}$ est comprise dans $\vec{H}_a$ par l'intermédiaire des K_i [59].

Dans le cas où $T \ll T_c$, on montre que la susceptibilité longitudinale devient une quantité petite. La condition d'équilibre de l'aimantation définie par $\vec{B}_{eff} = 0$ donne alors directement $M \approx M_s(T) \Rightarrow m = 1$. Physiquement ce résultat a été expliqué par Xu *et al.* [210] en considérant que si $\vec{m}$ varie hors de sa valeur d'équilibre, le champ effectif longitudinal, et en particulier le champ d'échange suivant $\vec{m}$ devient très important entraînant une relaxation rapide de l'ordre de $1/\hbar J_{ex}$ sur des échelles de temps inférieures à la ps. En conséquence, le champ effectif ne dépend plus de la susceptibilité magnétique. De plus, dans le cas où l'on reste à des températures inférieures à $T_c/2$, $\alpha_{\parallel} = 0$ et $\gamma\alpha_{\perp} = \alpha_{LL}$: on retrouve alors l'équation de

Landau-Lifshitz qui suppose que le module de l'aimantation reste constant.

Notons qu'il existe également une variante de LLB récemment dérivée par Xu *et al.* [209] se voulant plus simple d'utilisation que LLB mais ne s'appuyant pas sur les mêmes hypothèses de départ. Une des conséquences est que l'aimantation dans LLB varie comme une fonction de Langevin tandis que l'équation dérivée par Xu *et al.* comme une fonction de Brillouin. La discussion de la différence entre ces deux équations dépasse largement le cadre de cette thèse et nous renvoyons le lecteur à l'article de Xu *et al.* [210] pour plus d'informations.

Dans notre cas, les études que nous allons présenter ont été réalisées à basse température et pour des fluences de pompe faible ($F_{pompe}=1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$). Dans ces gammes de fluences, des manifestations de la variation du module de l'aimantation peuvent être observées dans nos signaux par le biais d'un fond exponentiel. Néanmoins, celui-ci a été évalué à 1.5 %, une valeur suffisamment faible pour négliger la variation du module de l'aimantation¹. Ainsi, pour des questions physiques, l'utilisation de LLG nous a paru suffisante pour décrire les phénomènes observés au cours de cette thèse. En coordonnées cartésiennes, l'équation LLG est définie à partir de LL [155] par :

$$\frac{d\vec{m}}{dt} = -\gamma(1 + \alpha_G^2)(\vec{m} \times \vec{H}_{eff}) + \alpha_G \vec{m} \times \frac{d\vec{m}}{dt} \quad (7.3)$$

avec $\alpha_G = \alpha_{LL}/\gamma$. Par la suite, puisque , $\alpha_G \ll 1$, on fera l'approximation répandue dans la littérature $\gamma(1 + \alpha_G^2) \approx \gamma$.

7.1.2 Equation fondamentale de la précession

Pour des questions pratiques, nous utiliserons par la suite l'équation LLG en coordonnées sphériques avec une source excitatrice imposant une variation impulsionnelle des constantes d'anisotropie. Dans l'approximation de la précession aux petits angles, l'équation LLG prend la forme suivante :

$$\begin{cases} \dot{\phi} = \frac{\gamma}{M_s \sin \theta_0} \left(F_{\theta\theta} \delta\theta + F_{\theta\phi} \delta\phi + \sum_i F_{\theta K_i} K_i \frac{\delta K_i}{K_i} \right) + \frac{\alpha_G}{\sin \theta_0} \dot{\theta} \\ \dot{\theta} = -\frac{\gamma}{M_s \sin \theta_0} \left(F_{\phi\theta} \delta\theta + F_{\phi\phi} \delta\phi + \sum_i F_{\phi K_i} K_i \frac{\delta K_i}{K_i} \right) - \alpha_G \sin \theta_0 \dot{\phi} \end{cases} \quad (7.4)$$

avec $F_{jk} = \frac{\partial^2(F_a+F_H)}{\partial_j \partial_k}$ à la position d'équilibre de l'aimantation θ_0 et ϕ_0 . Les termes dépendant des $F_{\phi, \theta K_i}$ représentent les termes sources correspondant à une variation des constantes d'anisotropie et sont égaux à :

$$\begin{aligned} F_{\theta K_{2\perp}} &= \sin 2\theta_0 & F_{\phi K_{2\perp}} &= 0 \\ F_{\theta K_{4\perp}} &= \sin 2\theta_0 \cos^2 \theta_0 & F_{\phi K_{4\perp}} &= 0 \\ F_{\theta K_{2\parallel}} &= \frac{\sin 2\theta_0}{2} [-1 + \sin 2\phi_0] & F_{\phi K_{2\parallel}} &= \cos 2\phi_0 \sin^2 \theta_0 \\ F_{\theta K_{4\parallel}} &= \frac{-\cos \theta_0 \sin^3 \theta_0}{2} [3 + \cos 4\phi_0] & F_{\phi K_{4\parallel}} &= \frac{1}{2} \sin^4 \theta_0 \sin 4\phi_0 \end{aligned} \quad (7.5)$$

L'efficacité de l'excitation dépendra de la valeur des coefficients dans l'Eq. 7.6. On peut d'ores et déjà souligner l'importance de la position d'équilibre de l'aimantation pour les excitations optiques par une variation des constantes d'anisotropie ce qui sera discuté dans une partie

¹La correction dans B_{eff} n'étant qu'à l'ordre 2

ultérieure (voir chapitre 8.1 de cette partie). Les formules décrites par l'Eq. 7.4 et l'Eq. 7.6 sont les points de départ pour l'analyse de la dynamique de l'aimantation.

7.2 Théorie : fréquence de précession et amortissement

Dans un premier temps nous allons décrire les processus physiques ayant lieu après l'impact de la pompe ce qui correspond à la solution homogène de l'Eq. 7.4 afin de définir des conventions de notation. Ces processus sont l'amortissement de l'aimantation avec un temps caractéristique $\tau_i = \frac{1}{\chi_i}$, et la précession de l'aimantation à une fréquence $f_i = \omega_i/2\pi$, l'index i correspondant au numéro de l'onde de spin considérée. Ici la notion d'onde de spin n'est pas nécessaire pour comprendre la dynamique et nous y reviendrons dans le chapitre associé (voir partie **IV** chapitre 9).

7.2.1 Fréquence et amortissement

Dans notre cas, l'aimantation étant dans le plan de l'échantillon ($\theta_0 = \frac{\pi}{2}$), on a alors $F_{\theta\phi}=0 \forall \phi_0$. On résout l'Eq. 7.4 en considérant des solutions harmoniques de la forme $\delta\theta(t) = \hat{\delta}\theta e^{i\Omega t}$ et $\delta\phi(t) = \hat{\delta}\phi e^{i\Omega t}$, avec $\Omega = \omega + i\frac{1}{\tau}$. On obtient alors le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} i\Omega\hat{\delta}\theta + \left[\frac{\gamma}{M_s}F_{\phi\phi} + i\Omega\alpha_G\right]\hat{\delta}\phi = 0 \\ -\left[\frac{\gamma}{M_s}F_{\theta\theta} + i\Omega\alpha_G\right]\hat{\delta}\theta + i\Omega\hat{\delta}\phi = 0 \end{cases} \quad (7.6)$$

En calculant la partie réelle et imaginaire du déterminant de l'Eq. 7.6, on a :

$$\boxed{\omega = \frac{1}{\sqrt{1 + \alpha_G^2}} \sqrt{\omega_0^2 - \frac{\alpha_G^2 \gamma^2 (F_{\theta\theta} + F_{\phi\phi})^2}{4M_s^2(1 + \alpha_G^2)}}} \quad \boxed{\chi_G = \frac{1}{\tau_G} = \frac{\alpha_G \gamma}{2M_s(1 + \alpha_G^2)} (F_{\theta\theta} + F_{\phi\phi})} \quad (7.7)$$

avec $\omega_0 = \frac{\gamma}{M_s} \sqrt{F_{\theta\theta} F_{\phi\phi}}$. La fréquence de précession est principalement déterminée par l'énergie libre du système magnétique, α_G étant une quantité petite. Par la suite, on approximera $\omega \approx \omega_0$, la correction en α_G^2 étant négligeable [187]. Toutefois, l'expression de τ_G dans l'Eq. 7.7 va avoir un impact sur l'interprétation des expériences en pompe sonde.

De manière générale, χ_G va dépendre des K_i , d'un champ magnétique appliqué ainsi que d'un ϕ_0 , la position d'équilibre de l'aimantation. Pour un champ magnétique suffisamment fort par rapport aux champs d'anisotropies, $F_{\theta\theta}$ et $F_{\phi,\phi}$ vont devenir égaux à $\mu_0 H_{ext}$, lui-même égal à $\sqrt{F_{\theta\theta} F_{\phi\phi}}$. On a alors $\chi_G = \alpha_G \omega_0$.

7.2.2 Discussion sur l'amortissement FMR et pompe sonde

L'origine microscopique de l'amortissement en magnétisme est un transfert d'énergie vers le bain de phonons et d'électrons des degrés de libertés du système magnétique à travers le couplage spin-orbite $\mathbf{L.S}$, $\mathbf{L}$ étant le moment orbital et $\mathbf{S}$ le spin de l'atome magnétique. Par exemple, des systèmes magnétique composés de Gd^{3+} ou Fe^{3+} (composés ayant $L=0$) auront un amortissement faible, tandis que des systèmes composés d'atomes avec de forts L tel que le Dy^{3+} , le Sm^{3+} ou encore l' Ho^{3+} présenteront de forts amortissements. Une illustration de ce phénomène peut être retrouvé dans les travaux de Reidy *et al.* [144] où les auteurs se sont

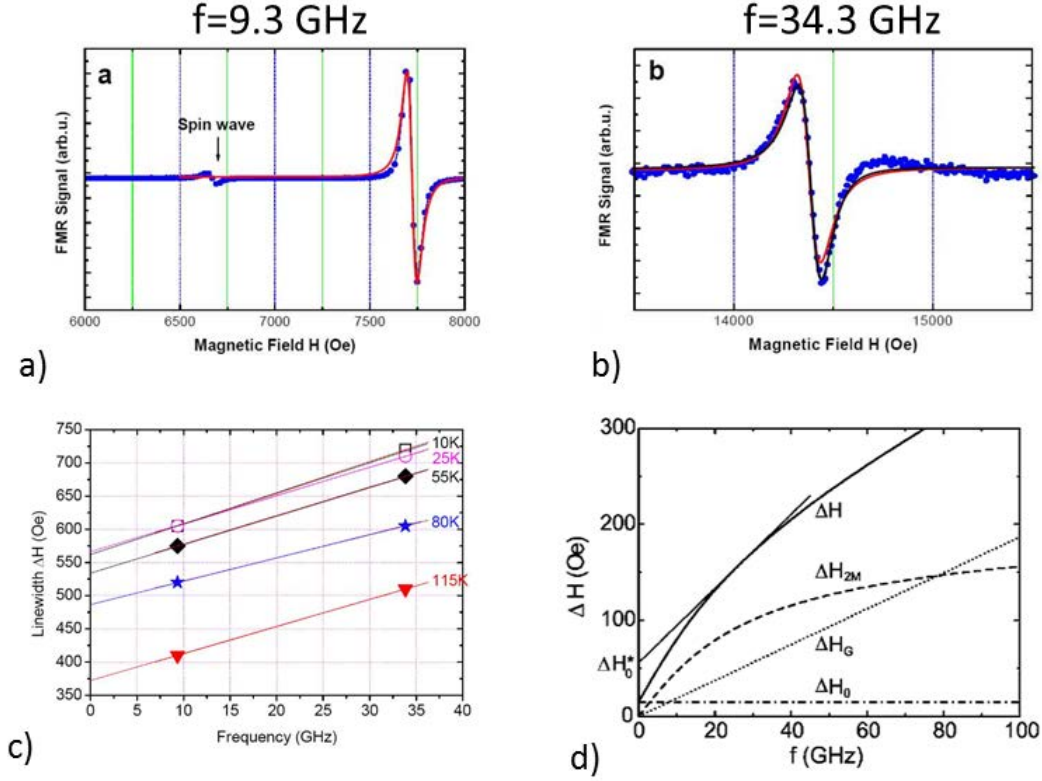


Figure 7.2: Ref Khazen *et al.* [86] : Spectre FMR pris à 9.3 GHz (a) et à 34.3 GHz à $T=20$ K (b) avec leur modélisation en prenant un élargissement Lorentzien. c : Elargissement en fonction de la fréquence de cavité pour plusieurs températures avec un ajustement linéaire. d : Ref Lenz *et al.* [100] représentation schématique de différentes contributions à l'élargissement. ΔH_G représente la partie liée à Gilbert, ΔH_{2M} la contribution à deux magnons, ΔH_0 la contribution inhomogène intrinsèque et ΔH la somme de toutes ces contributions.

intéressés à l'amortissement suivant le dopage en terre rare.

Dans (Ga,Mn)As le mécanisme est quelque peu différent à cause de $L_{Mn} = 0$. Celui-ci a été expliqué par Tserkovniak *et al.* [194] comme originaire de l'interaction d'échange entre les porteurs délocalisés, ayant un moment orbital non nul, et les Mn et dépend du temps de relaxation transverse des porteurs (τ_{sf}) par rapport à sa fréquence de précession (ω_p), l'aimantation quant à elle varie lentement par rapport à ces autres temps caractéristiques. Dans (Ga,Mn)As, $\tau_{sf} \gg \omega_{trou}$, le spin des Mn transférée aux porteurs aura le temps de précesser avant d'être communiqué à un autre Mn, freinant ainsi la dynamique². Avec leur modèle, avec $\tau_{sf}=100$ fs, Tserkovnyak *et al.* obtiennent $\alpha_G = 0.01$, une quantité comparable aux expériences.

Expérimentalement, cette quantité peut être mesurée dans le domaine temporel (pompe-sonde), fréquentiel (FMR, BLS) via l'élargissement en champ du mode uniforme, ou encore par la propagation de parois de domaines en utilisant le champ de Walker ou dans le régime précessionnel [192].

En FMR, l'amortissement se mesure via l'élargissement des champs de résonance. De façon

²Dans l'autre cas limite, l'amortissement sera lui aussi augmenté car la surface de Fermi n'aura pas le temps de s'adapter aux variations rapides de la polarisation en spin des porteurs

usuelle, celui-ci est défini comme la somme de plusieurs contributions ayant des comportements en fonction de la fréquence de cavité (ω , qui se trouve être aussi la fréquence de précession de l'onde de spin). La première contribution est un élargissement homogène qui va être proportionnel à ω et α_G (Fig. 7.2d). Les autres contributions seront des élargissements inhomogènes pouvant être indépendant ou dépendant de ω . Une contribution inhomogène dépendante de ω est généralement associée à une contribution à deux magnons ($f'(\omega)$) c'est à dire l'interaction d'un mode de spin uniforme avec un mode de plus haut vecteur d'onde ([8] par exemple). Cette contribution se distingue de l'homogène par un comportement non linéaire [100](Fig. 7.2d). L'élargissement peut alors se mettre sous la forme suivante :

$$\Delta H = \Delta H_0 + \frac{2}{\gamma\sqrt{3}}\alpha_G\omega + f'(\omega) \quad (7.8)$$

En négligeant la contribution à deux magnons, α_G peut alors être déduit des courbes $\Delta H(\omega)$ par un simple ajustement linéaire. En FMR, l'extraction de α_G passe alors par l'utilisation d'un nombre suffisant de fréquences de cavité. L'utilisation d'une large gamme en fréquences (par exemple Ben Hamida *et al.* [13]) permet alors de modéliser de façon plus fine les différentes contributions à l'amortissement.

De manière analogue, nous considérons également plusieurs contributions à l'amortissement temporel. On définit χ_{eff} par :

$$\chi_{\text{eff}} = \chi_0 + \chi_G + \chi'(\omega) \quad (7.9)$$

Les expérimentateurs en pompe-sonde préfèrent par commodité travailler sur des quantités adimensionnées. On définit alors un amortissement effectif de la forme suivante :

$$\frac{\chi_{\text{eff}}}{\omega} = \alpha_{\text{eff}} = \frac{\chi_0}{\omega} + \frac{\chi_G}{\omega} + \frac{\chi'}{\omega} \quad (7.10)$$

et dans la limite où $\mu_0 H$ est grand devant les champs d'anisotropie, on obtient :

$$\boxed{\alpha_{\text{eff}} = \alpha_G} \quad (7.11)$$

En pompe-sonde, la manière adéquate pour extraire α_G consiste alors à monter à suffisamment fort champ jusqu'à observer un α_{eff} constant comme réalisé par Nemec *et al.* [123].

Amortissement FMR et pompe-sonde dans la littérature

Dans notre cas, les analyses FMR faites sur nos échantillons ont été réalisées par Cubukcu *et al.* [32] avec deux fréquences à 9.3 GHz et 34.3 GHz (Fig. 7.2a,b). L'amortissement homogène α_G a ensuite été extrait en utilisant une interpolation linéaire dont on donne un exemple sur la Fig. 7.2c [86][32] ce qui présuppose de négliger une contribution à deux magnons. La pente est directement proportionnelle à l'amortissement intrinsèque.

Dans (Ga,Mn)As, en FMR, Cubukcu *et al.* ont trouvé des $\alpha_G = \mathbf{0.003}$. Ces valeurs sont très faibles par rapport à d'autres groupes comme celui de Woltersdorf *et al.* [208] avec $\alpha_G = \mathbf{0.03}$ ou encore de Ben Hamida *et al.* [13] avec $\alpha_G = \mathbf{0.02}$ soit un ordre de grandeur au dessus. Les résultats de Woltersdorf *et al.* et Ben Hamida *et al.* se distinguent de ceux de Cubukcu *et al.*

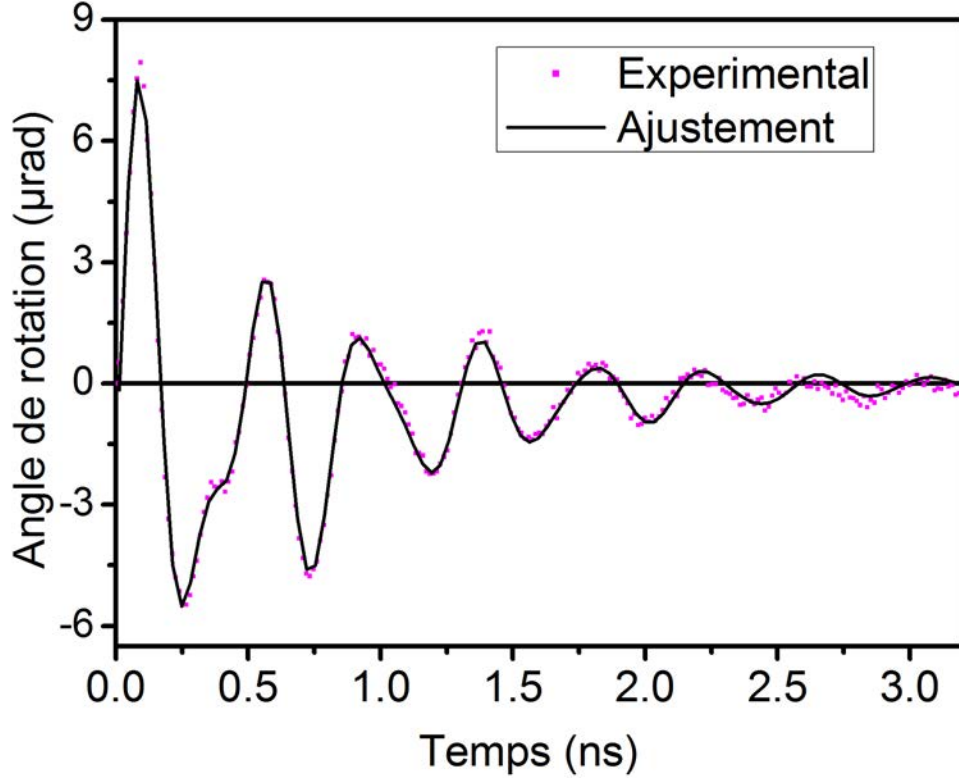


Figure 7.3: Signal obtenu sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ superposé à l'ajustement donné par l'Eq. 7.12.

$T=12\text{ K}$; polarisation pompe et sonde $\parallel [100]$

par l'utilisation de plus de deux fréquences de cavité, mais sur une gamme restreinte (entre 3 et 10 GHz) par rapport à Cubukcu *et al.*. Ces résultats, même si présentant des différences, restent plus faibles par rapport aux valeurs communément observés dans la littérature sur $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ en pompe sonde avec des valeurs de $\alpha_{\text{eff}} = 0.1$ pour Qi *et al.* [138]. Seul Nemec *et al.* [123] ont obtenu l'amortissement homogène à fort champ avec $\alpha_G = 0.02$, une valeur comparable à celles de Ben Hamida *et al.*

7.3 Expérience : comparaison FMR et pompe-sonde

Dans cette partie nous allons étudier expérimentalement les variations de ω et de α_{eff} et comparer les résultats obtenus avec les calculs utilisant les données de FMR. Chacun de ces paramètres va dépendre de ϕ_0 c'est à dire des K_i évalués en FMR. En théorie, ϕ_0 est entièrement déterminé par une minimisation de l'énergie libre du système en utilisant les coefficients K_i préalablement mesurés par FMR. L'hypothèse sous-jacente de cette minimisation est que nous pouvons négliger l'entropie du système³ c'est à dire que la condition d'équilibre du système est décrite par $\partial F_a / \partial \vec{m} = 0$ à température fixée. Il n'existe alors qu'une seule position d'équilibre, ϕ_0 déterminée entièrement par l'énergie d'anisotropie dont on rappelle la formule : $\sin 2\phi_0 = -\frac{K_{2\parallel}}{K_{4\parallel}}$. Lorsque la température augmente, la nucléation de domaines magnétiques se faisant plus facilement, l'entropie ne peut plus être négligée et donc des déviations pourraient être observées. En FMR, ce point est peu probable car les champs appliqués sont suffisamment importants pour aligner l'aimantation suivant le champ.

³Ce qui revient à considérer une température nulle par le troisième principe de la thermodynamique

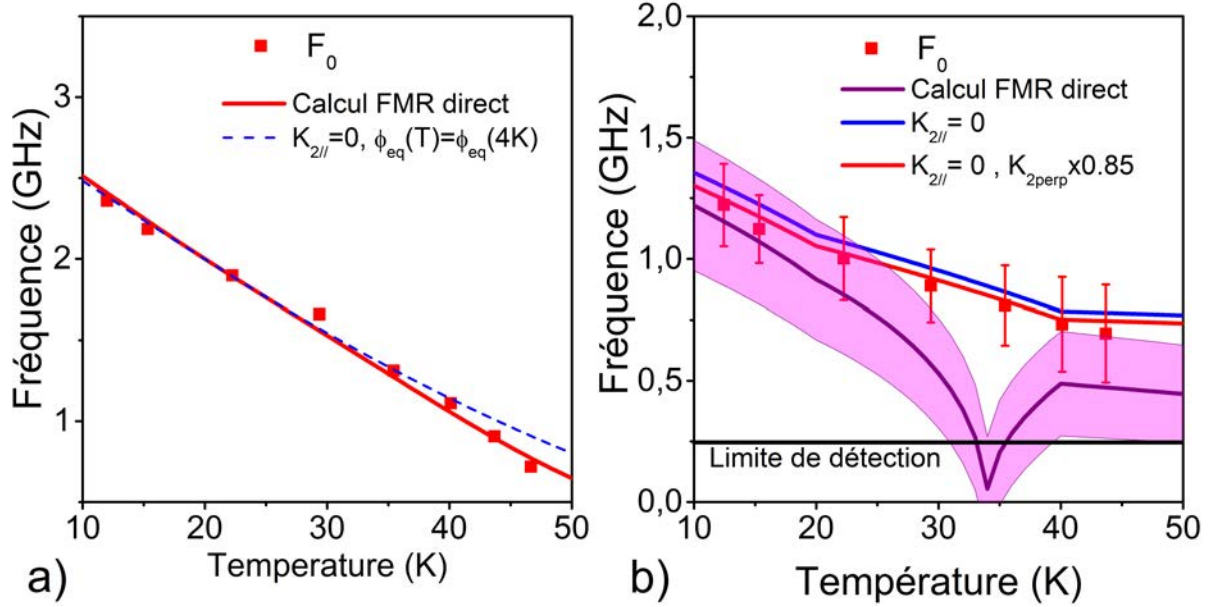


Figure 7.4: Evolution des fréquences en fonction de la température et comparaison avec les valeurs attendues en utilisant les constantes trouvées en FMR. Les barres d'erreurs ainsi que la zone rose correspondent à $1/\tau_{\text{eff}}$.

a : $Mn_7P_{4.3}$ (barres d'erreur dans l'épaisseur des points) ; **b** : $Mn_7P_{3.6}$

Nous avons réalisé une série d'expériences en fonction de la température et du champ magnétique à faible fluence pompe et sonde ($F_{\text{pompe}} = 1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$ et $F_{\text{sonde}} = 0.7 \mu\text{J cm}^{-2}$) sur plusieurs échantillons et nous avons étudié les processus de relaxation. Dans un premier temps nous nous intéresserons aux fréquences puis à l'amortissement. Enfin nous discuterons de la validité de la correspondance FMR pompe-sonde et en tirerons les conséquences pour la suite.

7.3.1 Ajustement des courbes

Afin d'extraire les paramètres caractéristiques de signaux expérimentaux, nous ajustons nos signaux par une fonction empirique de la forme :

$$p(t) = \sum_i A_i \sin(\omega_i t + \phi_i) \exp(-\alpha_{\text{eff},i} \omega_i t) + \frac{C^*}{C_{\text{max}}} \left[\exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{down}}}\right) - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{up}}}\right) \right] \quad (7.12)$$

avec l'indice de sommation allant jusqu'au nombre de fréquences présentes dans les signaux (typiquement 2). Pour une oscillation i , A_i représente l'amplitude de l'oscillation, ω_i sa fréquence, ϕ_i sa phase et $\alpha_{\text{eff},i}$ l'amortissement effectif ($\alpha_{\text{eff},i} = \frac{1}{\tau_i \omega_i}$). C^* représente l'amplitude du signal exponentiel d'amplitude maximale C_{max} .

La qualité d'un ajustement est présentée dans la Fig. 7.3 où l'on peut observer deux fréquences et aucune exponentielle ($C^* = 0$). Dans le cadre des présentes discussions, seul le mode ayant la fréquence la plus basse sera au centre de notre intérêt. Les modes supérieurs seront discutés dans le chapitre relatif aux ondes de spin (voir partie IV chapitre 9).

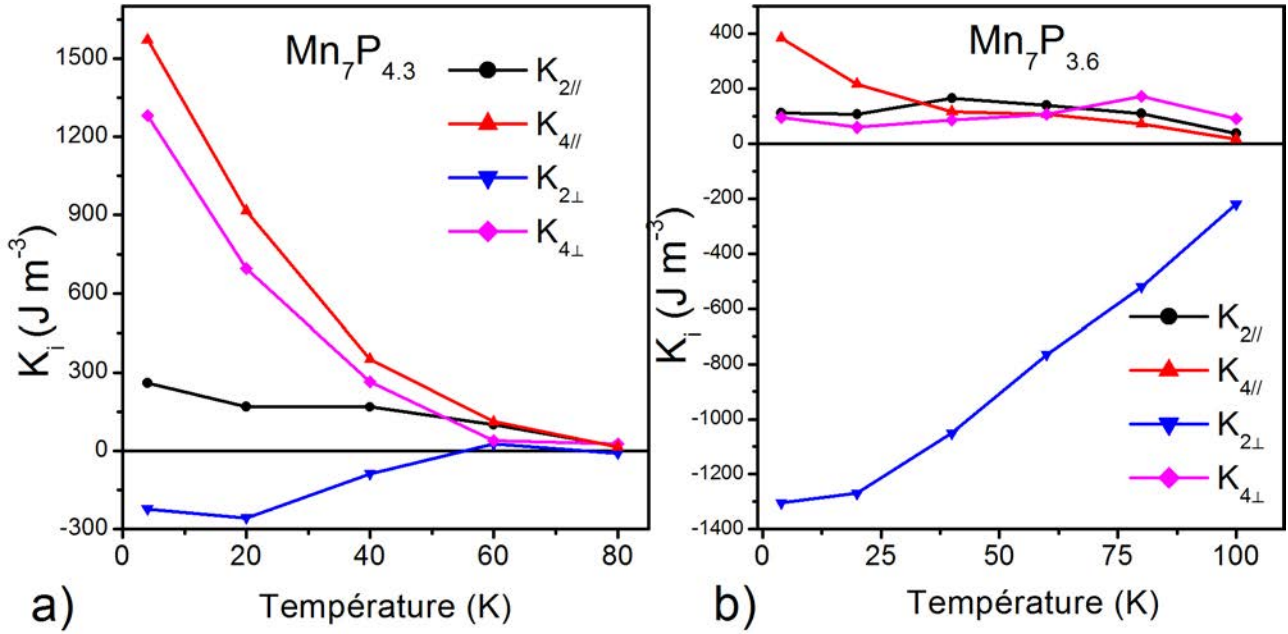


Figure 7.5: Evolution des constantes d'anisotropies pour $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ (a) et $\text{Mn}_7\text{P}_{3.6}$ (b) à toutes les températures (source Cubukcu *et al.* [32]).

7.3.2 Fréquences et correspondance FMR/pompe-sonde

Connaissant la variation des constantes d'anisotropie en fonction de la température, on peut calculer les fréquences de précession attendues, en utilisant l'Eq. 7.7 à toutes les températures. Deux résultats pour ce type d'expérience sont portés sur la Fig. 7.4 pour les échantillons $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ (Fig. 7.4a) et $\text{Mn}_7\text{P}_{3.6}$ (Fig. 7.4b) avec la modélisation de l'évolution de la fréquence du mode fondamental dans les deux cas.

Les fréquences expérimentales ont des évolutions similaires avec une tendance à décroître en fonction de la température. Qualitativement cet effet se comprend en considérant la diminution des champs d'anisotropie ($K_i(T)/M_s(T)$) avec la température, entraînant alors une diminution de la fréquence de précession.

Quantitativement, une bonne correspondance FMR/pompe sonde n'est pas observée sur tous les échantillons. Si dans le cas de $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$, l'accord entre les prédictions FMR et nos mesures est quasi parfait ce n'est plus le cas sur $\text{Mn}_7\text{P}_{3.6}$. Ces différences peuvent se comprendre en explicitant la forme de ω_0 . On considère le produit $F_{\theta\theta}F_{\phi\phi}$ pour deux directions cristallographiques caractéristiques à champ nul :

$$\begin{aligned} F_{\theta\theta}F_{\phi\phi} &= (-2K_{2\perp} + 2K_{4\parallel} + K_{2\parallel} + \mu_0 M_s^2)2K_{4\parallel} & \text{si } \phi_0 \parallel [010] (|K_{4\parallel}| > |K_{2\parallel}|) \\ F_{\theta\theta}F_{\phi\phi} &= (-2K_{2\perp} + K_{4\parallel} + 2K_{2\parallel} + \mu_0 M_s^2)(2K_{2\parallel} - 2K_{4\parallel}) & \text{si } \phi_0 \parallel [1\bar{1}0] (|K_{4\parallel}| < |K_{2\parallel}|) \end{aligned} \quad (7.13)$$

Lorsque ϕ_0 s'aligne avec $[1-10]$, on a $K_{2\parallel} \geq K_{4\parallel}$. Sinon, $K_{4\parallel} > K_{2\parallel}$.

$\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$: une correspondance parfaite FMR/pompe-sonde

L'anisotropie de $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ est biaxiale pour des températures en deçà de 60 K, point où $K_{2\parallel} = K_{4\parallel}$. Sur la gamme de température étudiée (10-50 K), $K_{4\parallel}$ domine toutes les autres constantes

d'anisotropie (Fig. 7.5a). Il se trouve que la valeur de $K_{2\parallel}$ n'a que très peu d'influence sur la fréquence, même sur la gamme de température étudiée et la courbe expérimentale peut même être reproduite de manière satisfaisante dans un cas extrême en posant $K_{2\parallel}=0$ à toute température ou $\phi_0(T) = \phi_0(4\text{ K})$, c'est à dire, sans variation de l'angle d'équilibre de l'aimantation. Les fréquences ne dépendant alors que très peu des fluctuations des K_i , celles-ci resteront bien déterminées en prenant des constantes moyennées sur tout le matériau, tant que la constante dominante est bien déterminée.

En conséquence, sur la gamme de température observée on aura un accord quasi parfait entre les fréquences calculées par (7.7), et nos observations en pompe-sonde. Cette correspondance pourrait nous amener à penser que ϕ_0 est bien déterminé en utilisant les données FMR.

Mn₇P_{3.6} : désaccord pompe sonde/FMR. Position de ϕ_0 ?

A contrario sur Mn₇P_{3.6}, la correspondance FMR/pompe-sonde n'est pas bonne (Fig. 7.4b). Dans ce cas, c'est $K_{2\perp}$ qui domine toutes les autres constantes d'anisotropie. Notons que l'anisotropie planaire ($K_{2\parallel}$ et $K_{4\parallel}$) est 3 fois plus faible par rapport à Mn₇P_{4.3} à basse température. A basse température, $K_{4\parallel} > K_{2\parallel}$ est dominant mais cette fois-ci, suivant la FMR, lorsque l'on augmente la température l'aimantation devrait s'aligner suivant [1-10] vers 35 K ($K_{2\parallel} = K_{4\parallel}$). En conséquence, nous devrions observer une fréquence nulle (voir l'Eq. 7.13), mais aussi comme nous le verrons par la suite, plus aucune excitation pour des températures plus élevées (voir chapitre 8), ce qui n'est pas observé. La valeur de $K_{2\parallel}$ aura donc ici une importance capitale. L'absence de point singulier sur nos courbes de fréquences en fonction de la température peut être comprise de plusieurs manières.

La première explication est d'ordre purement expérimental. Notre fenêtre temporelle maximale étant 3.5 ns, la fréquence minimale que l'on pourra détecter sera de 0.28 GHz (trait noir sur la Fig. 7.4b). Cette fréquence de coupure que nous calculons est bien en deçà de nos observations, on peut en déduire que ce facteur n'est pas limitant.

Regardons maintenant l'amortissement $1/\tau$. $1/\tau$ représente entre autres une dispersion en fréquences autour de la fréquence centrale. Cette dispersion est représentée sur la Fig. 7.4b sous la forme de barre d'erreur pour les points expérimentaux, et de région rose pour les points théoriques. Cette dispersion n'est pas particulièrement plus importante au voisinage de 35 K comme on pourrait s'y attendre si le spectre de fréquence comportait une part de basses fréquences.

La dernière hypothèse remet en question la position de ϕ_0 . Partant de l'hypothèse que la position d'équilibre reste bien définie en fonction de la température par minimisation d'énergie (Fig. 7.6) ce qui suppose un seul état d'équilibre. Considérant que les mesures des K_i par FMR sont données sans barre d'erreur, il n'est pas impossible qu'un autre jeu de K_i puisse être tiré des spectres expérimentaux. Nous penchons alors vers une mauvaise détermination de $K_{2\parallel}$ et $K_{4\parallel}$ lorsqu'elles sont très faibles devant $K_{2\perp}$.

La valeur de ϕ_0 étant gouvernée par le rapport $K_{4\parallel}/K_{2\parallel}$, nos résultats signifient soit que $K_{2\parallel}$ est plus faible, soit $K_{4\parallel}$ est plus fort. Etant donné que les fréquences semblent être du bon ordre de grandeur, une augmentation de $K_{4\parallel}$ entraînerait une augmentation de la fréquence. Une diminution de $K_{2\parallel}$ semble alors plus pertinente vis à vis de nos résultats. Notons que dans le cas de Mn₇P_{3.6}, cette constante est extrêmement faible et possède un comportement curieux

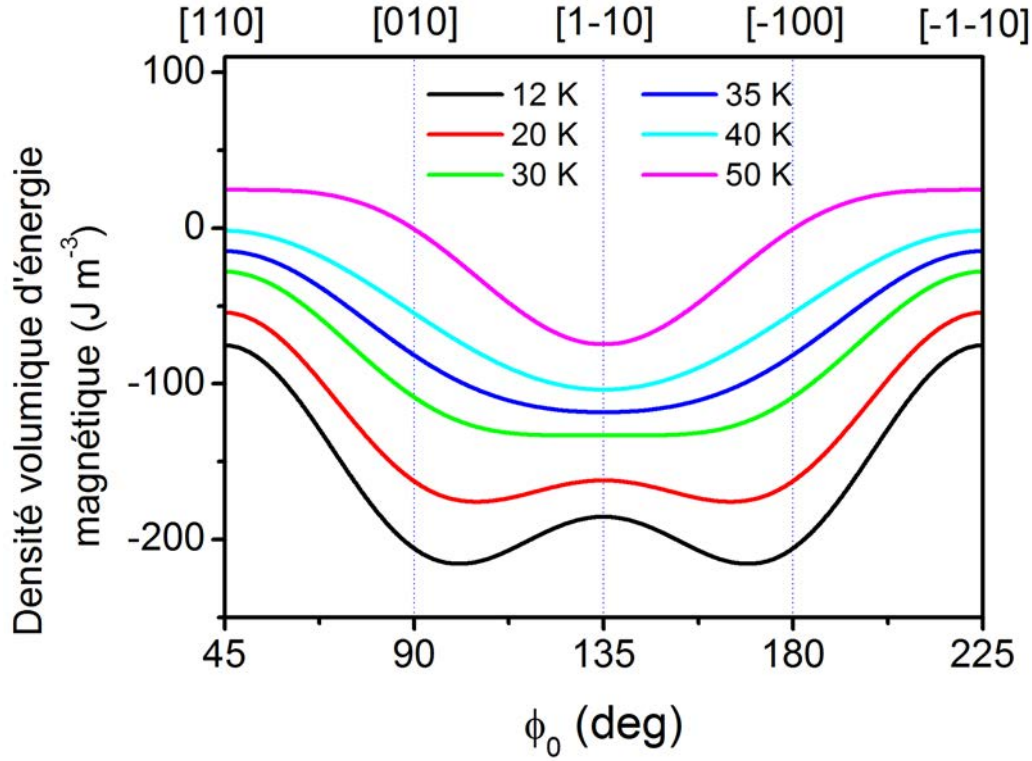


Figure 7.6: Evolution de la densité volumique de l'énergie magnétique dans le plan en fonction de la température pour $\text{Mn}_7\text{P}_{3.6}$.

avec une première augmentation en fonction de la température.

Pour rendre compte du passage suivant $[1-10]$ à plus haute température, une réduction de $K_{2\parallel}$ de 50 % est suffisante. Néanmoins la constante est tellement faible que poser $K_{2\parallel} = 0$ et donc aucune réorientation de ϕ_0 avec $\phi_0(T) = \phi_0(12 \text{ K})$ donne des résultats tout à fait satisfaisants sur la fréquence. Un dernier affinement pourrait être trouvé en réduisant $K_{2\perp}$ de 15% (Fig. 7.4b).

L'échantillon $\text{Mn}_7\text{P}_{3.6}$ montre donc les limites dans la détermination des constantes d'anisotropies par FMR lorsque celles-ci deviennent trop faibles. La méthode pompe-sonde fournit une réponse, au moins sur la position d'équilibre de l'aimantation déterminée par le rapport $K_{2\parallel}/K_{4\parallel}$.

... et dans la littérature

Dans la littérature sur $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$, les K_i évalués par FMR sont utilisés pour expliquer les données pompe-sonde. Citons en particulier les travaux menés par Oiwa *et al.* [129], Wang *et al.* [199] et Qi *et al.* [139]. La correspondance FMR pompe-sonde en appliquant un champ a été démontrée par Oiwa *et al.* lorsqu'ils ont pour la première fois obtenu des signaux dynamiques, puis par Wang *et al.* pour démontrer l'existence de plusieurs modes d'ondes de spin et les identifier. Mais aucune de ces études jusqu'alors ne s'était intéressée comme nous à la validité de ces coefficients sur une gamme de température aussi large.

Nemec *et al.* [184] évaluent directement les constantes d'anisotropie en utilisant les données pompe-sonde pour trois orientations du champ afin d'obtenir les K_i de leurs échantillons, ce qui donne une procédure se rapprochant de la FMR mais optique. Si cette approche présente

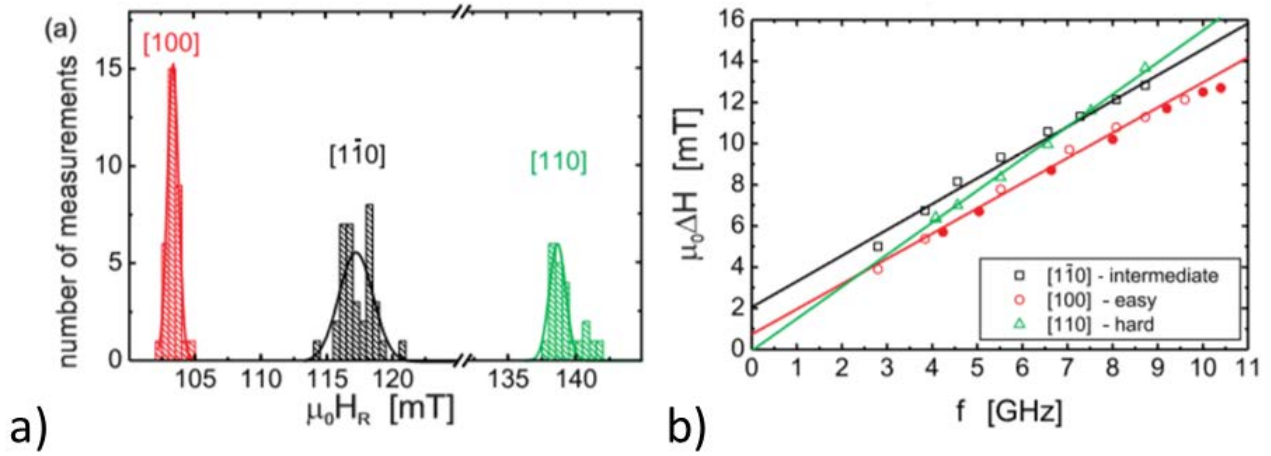


Figure 7.7: Source [208] : **a** : dispersion des champs de résonance sur un échantillon de (Ga,Mn)As grâce à un TRMOKE couplé à de la FMR à $T=10$ K et $f=6$ GHz. Les lignes en trait plein sont des ajustements gaussiens. La largeur des distributions est de 1.0 mT $\mu_0 H \parallel [100]$, 3.2 mT $\mu_0 H \parallel [1-10]$ et 1.6 mT $\mu_0 H \parallel [110]$. Chaque distribution est constituée de 80 mesures faites à différents points d'un échantillon de (Ga,Mn)As . **b** Elargissement en fonction de la fréquence de cavité à une position fixée.

l'avantage de sonder localement les propriétés magnétiques, la description de l'anisotropie est incomplète car il manque $K_{4\perp}$ n'intervenant pas dans l'expression de la fréquence. L'avantage est alors que les auteurs connaissent les K_i en un point de l'échantillon.

On peut trouver une approche originale par Woltersdorf *et al.* [208] où les auteurs ont réalisé le TRMOKE couplé à de la FMR sur (Ga,Mn)As en synchronisant le champ rf avec un laser Ti:Sa. Ainsi les auteurs sont capables d'adresser les propriétés locales et globales d'un échantillon dans les mêmes conditions expérimentales. Woltersdorf *et al.* ont ainsi pu démontrer que suivant la direction du champ appliqué, une dispersion des champs de résonances était visible en déplaçant le laser sur l'échantillon, la valeur moyenne étant celle déterminée par FMR Fig. 7.7.

Pour expliquer les dispersions des champs de résonance les auteurs considèrent qu'elles proviennent de fluctuations de $K_{2\parallel}$. Cette approche a été justifiée dans leur cas par la faible sensibilité de leurs résultats à ce paramètre, un peu comme nous dans le cas de $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$. De plus l'origine de $K_{2\parallel}$ pouvant provenir soit de fautes d'empilement lors de la croissance [94] soit de formation aléatoire de paires Mn-Mn [18] (les deux semblant reliés selon Kopecky *et al.* [94]), il est raisonnable que ce paramètre puisse varier localement sur l'échantillon. Ces résultats confirment alors notre approche consistant à réaliser des modifications de $K_{2\parallel}$, ce qui agit sur ϕ_0 .

7.3.3 Amortissement

L'amortissement α_{eff} est un paramètre des ajustements des signaux dynamiques. Au cours de cette thèse, nous avons étudié la variation de ce paramètre en fonction de la température, et du champ magnétique sur plusieurs échantillons de (Ga,Mn)(As,P). Chacune de ces variations donne des informations différentes. La variation en température permet d'obtenir des indications sur la valeur des constantes d'anisotropie, à l'instar des fréquences, tandis que les mesures en champ magnétique permettent d'atteindre la partie α_{eff} indépendante en fréquence, α_G .

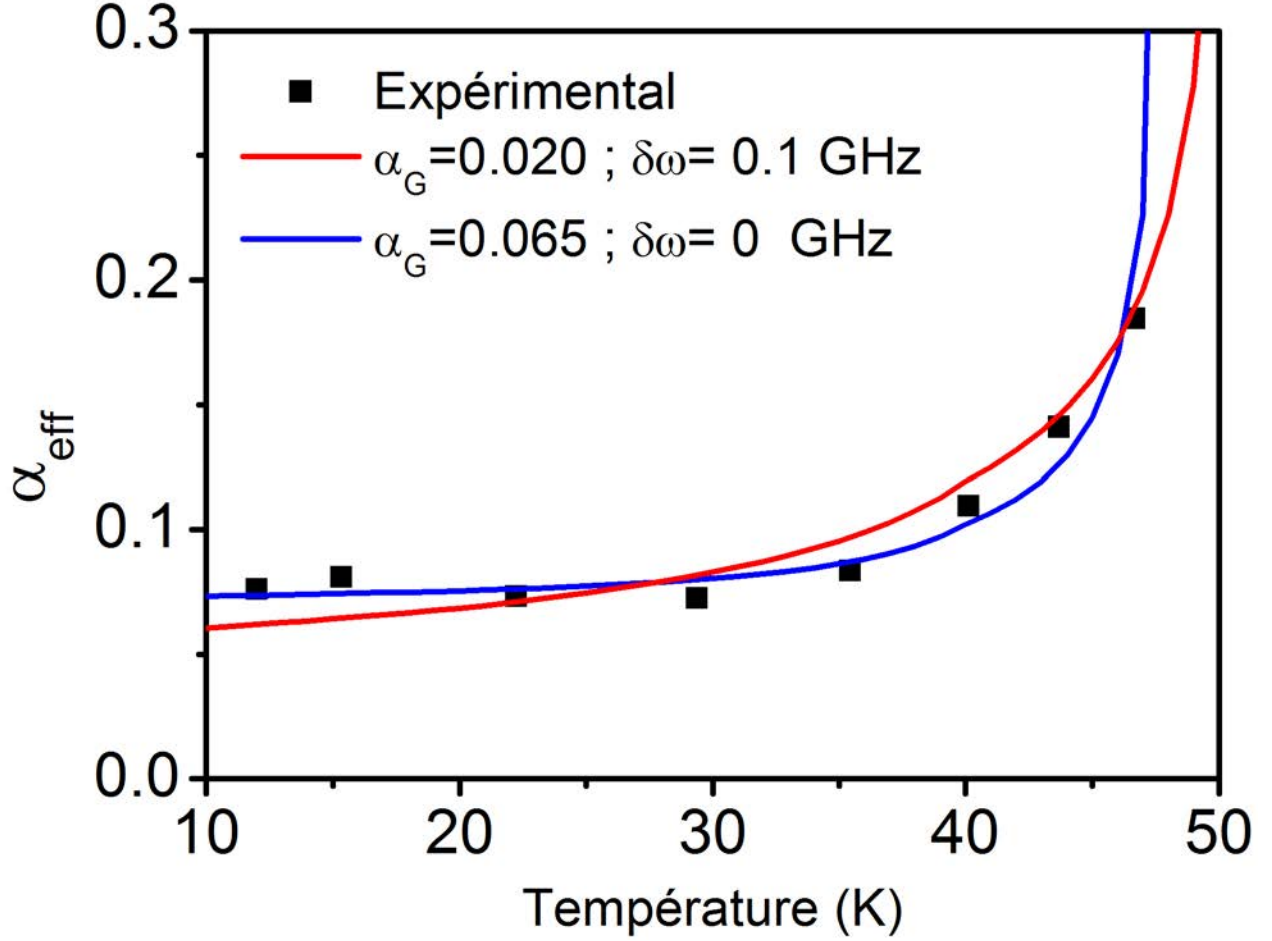


Figure 7.8: Evolution de l'amortissement effectif en fonction de la température.

Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; $F_{pompe}=1.5 \mu J cm^{-2}$; $F_{sonde}=0.7 \mu J cm^{-2}$

Par commodité, nous préférons par la suite présenter nos analyses sur α_{eff} plutôt que $1/\tau$. Nous présentons ici les résultats expérimentaux ainsi que leur modélisation sur la Fig. 7.8 pour $Mn_7P_{4.3}$ en fonction de la température, et sur la Fig. 7.9 pour $Mn_7P_{4.3}$ et Fig. 7.10 pour $Mn_{6.64}P_{6.64}$ en fonction du champ. Le but est d'extraire de ces variations α_G pour ces deux échantillons.

Effet de la température (Fig. 7.8)

Les mesures ont pu être effectuées jusqu'à 47 K, température au delà de laquelle le signal n'est plus détectable. En fonction de la température, α_{eff} augmente de façon monotone. Le temps d'amortissement est de l'ordre de la ns. Ces observations correspondent à ce que l'on peut trouver dans la littérature sur $(Ga,Mn)As$ et $(Ga,Mn)(As,P)$ [139][123][183].

Sur $Mn_7P_{4.3}$, dans la gamme de température étudiée en pompe-sonde, la largeur de la résonance a été modélisée par Cubucku *et al.* avec $\Delta H_{pp} = \Delta H_0 + \frac{2}{\gamma\sqrt{3}}\alpha_G\omega$. Les résultats montrent une faible augmentation de α_G (25 %, de 0.008 à 0.01), et une variation linéaire de ΔH_0 (30 %). Dans notre cas nous pouvons observer une augmentation de 250 % de α_{eff} . Cette augmentation ne peut s'expliquer que par une réorientation de ϕ_0 suivant [1-10] lors de l'augmentation

en température; la dépendance que nous observons est alors un pur effet d'anisotropie. Deux approches ont été utilisées pour modéliser nos données.

La première, celle donnant le meilleur accord, consiste à ne considérer aucune contribution inhomogène et à appliquer l'Eq. 7.7. On obtient ainsi une borne supérieure pour le paramètre d'amortissement $\alpha_G = 0.065$. La deuxième modélisation, se rapprochant très certainement plus de notre système physique, considère un α_G et χ_0/ω variant avec la température de la même manière que α_G et ΔH_0 en FMR. Les valeurs de α_G mesurées par Cubukcu *et al.* semblent suspectes car très faibles, on prend une valeur typique d'amortissement que l'on peut trouver dans la littérature $\alpha_G = 0.02$ (voir Nemec *et al.* [123] ou encore Ben Hamida *et al.* [13] par exemple), et $\chi_0 = 0.1$ GHz à $T=10$ K. A 10 K, $\chi_0/\omega \approx 0.4$, la part de la contribution inhomogène est deux fois plus grande que la contribution homogène.

Pour mieux rendre compte de la redescende de l'amortissement proche de 50 K, $K_{2\parallel}$ a été augmenté de 65 % ($K_{2\parallel} = 371 \text{ J m}^{-3}$) dans la première approche, et de 50 % ($K_{2\parallel} = 331 \text{ J m}^{-3}$) dans la deuxième approche. Ces modifications reviennent à aligner l'aimantation suivant [1-10] à 49 K dans la première approche, à 51 K dans la deuxième approche au lieu de 60 K. La prise en compte de la contribution inhomogène ne change donc pas trop l'interprétation des résultats en termes de $K_{2\parallel}$, seule la valeur de α_G change.

Effet du champ magnétique

De façon similaire à un effet de température, le champ magnétique a aussi une influence sur le paramètre d'amortissement. Si la variation pourra être décrite par un effet d'anisotropie magnétique grâce à l'Eq. 7.7, deux approches permettent d'analyser les variations de α_{eff} .

La première est identique à celle développée en fonction de la température et a été réalisée sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$. On va chercher à modéliser les variations de l'amortissement à l'aide de l'Eq. 7.7 et avec l'Eq. 7.10. On néglige dans un premier temps des effets comme la contribution à deux magnons. Cette approche quoique simpliste permet de se faire une idée des effets mis jeu dans le système magnétique. Les constantes d'anisotropie sont une fois de plus modifiées afin de rendre compte d'un pic vers 50 mT.

Lorsque le champ est aligné suivant [110], en posant $\delta\omega = 0$ on trouve une valeur $\alpha_G=0.065$, soit la même que celle trouvée en fonction de la température. Toutefois, en prenant en compte la contribution inhomogène, en prenant $\alpha_G=0.02$, la valeur de $\delta\omega$ est presque 5 fois plus forte que pour les expériences en fonction de la température. Comme celles-ci avaient été faites un an auparavant, nous supposons un vieillissement de l'échantillon sous l'effet des cycles thermiques conduisant à cette augmentation de la contribution inhomogène. De plus, nous avons dû ici faire appel à un $K_{4\parallel}$ deux fois plus faible que celui donné par la FMR, et un $K_{2\parallel}$ augmenté de 50 % ce qui revient à aligner ϕ_0 suivant [110] à 60 mT au lieu de 100 mT. Toutefois, il est possible que le maximum de α_{eff} soit à plus haut champ, ce que nous n'avons pas vérifié, la bobine magnétique utilisée étant limitée à 70 mT au moment des expériences.

Avec le champ suivant [1-10], la modélisation conduit soit à une valeur α_G plus grande, soit à une contribution inhomogène presque deux fois plus importante par rapport au champ suivant [110]. Notons que dans ce cas, le $K_{2\parallel}$ correspond à celui que nous avons pu déduire lors de l'étude en fonction de la température.

La deuxième approche permet d'obtenir la composante de α_{eff} , sans pouvoir réellement

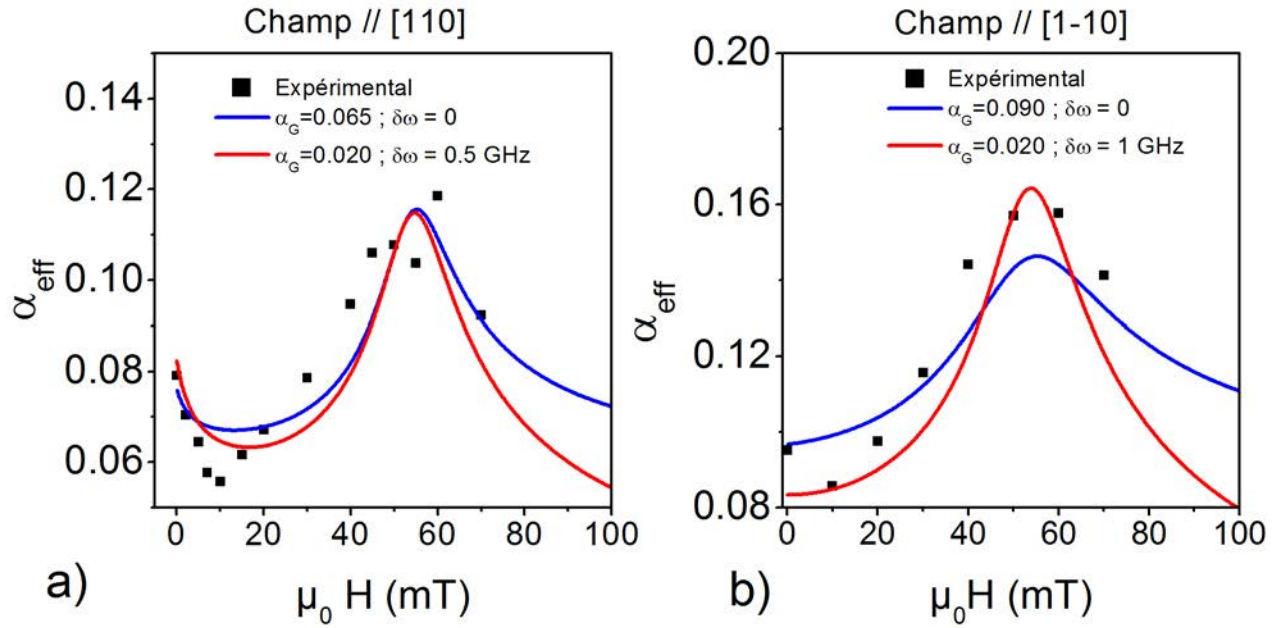


Figure 7.9: Evolution de l'amortissement effectif sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ pour deux directions du champ magnétique.

Echantillon : $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ **a** : $\mu_0 H // [110]$; **b** : $\mu_0 H // [1-10]$; $T=12$ K $F_{\text{pompe}}=1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$; $F_{\text{sonde}}=0.7 \mu\text{J cm}^{-2}$

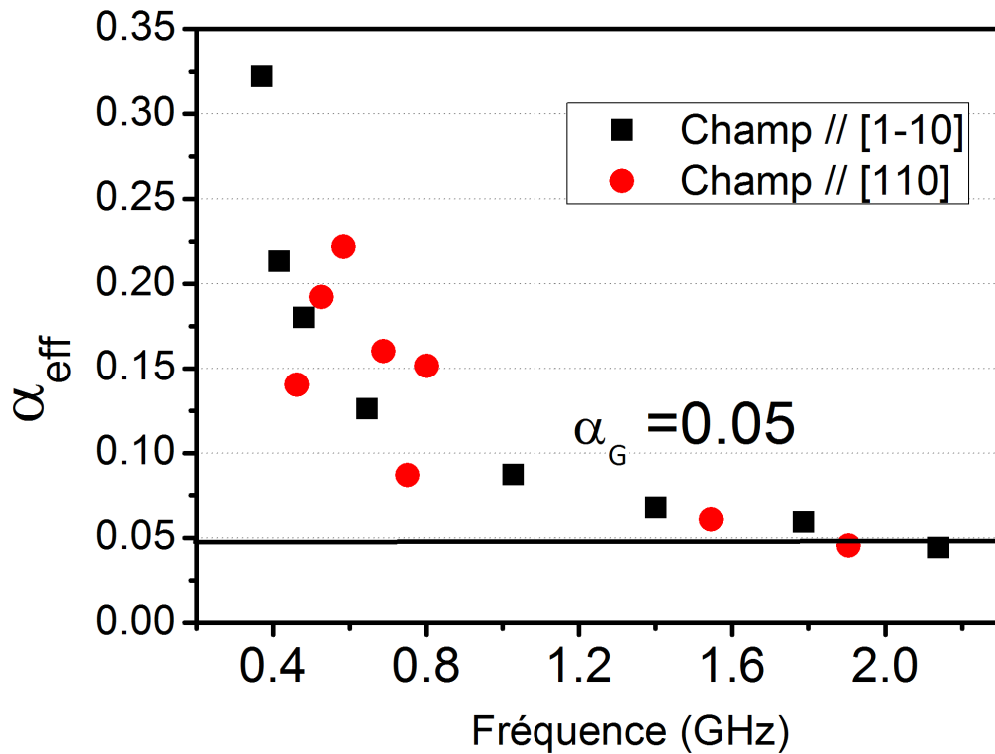


Figure 7.10: Evolution de l'amortissement effectif sur $\text{Mn}_{6.64}\text{P}_{6.64}$ en fonction de la fréquence, pour deux orientations de champ.

Echantillon $\text{Mn}_{6.64}\text{P}_{6.64}$; $T=12$ K ; $F_{\text{pompe}}=1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$; $F_{\text{sonde}}=0.7 \mu\text{J cm}^{-2}$

séparer la contribution indépendante de la fréquence. Plutôt que de porter le paramètre d'amortissement en fonction du champ, on le porte en fonction de la fréquence. Si la contribution inhomogène χ_0 est indépendante de la fréquence, α_{eff} tend vers α_G . Le désavantage de cette approche est qu'elle nécessite une gamme en fréquence suffisamment large pour pouvoir en observer sa partie indépendante.

Cette approche n'a pu être réalisée que sur $\text{Mn}_{6.64}\text{P}_{6.64}$, un échantillon possédant une anisotropie plus faible que $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$. On observe très clairement sur la Fig. 7.10 la décroissance de α_{eff} avec la fréquence. Faute de données à plus fort champ, il n'est pas certain que le régime où α_{eff} devient indépendant de la fréquence soit atteint. Cependant une borne supérieure de 0.05 pour α_G peut être déterminée (Fig. 7.10).

...et dans la littérature

En pompe sonde sur $(\text{Ga,Mn})(\text{As,P})$, la seule donnée existante dans la littérature sur laquelle nous pouvons nous appuyer est celle de Tesarova *et al.* [181] sur un échantillon Mn_6P_{10} où $\alpha_G = 0.02$ a été mesuré en appliquant jusqu'à 600 mT.

Dans la littérature sur $(\text{Ga,Mn})\text{As}$, les valeurs des α_{eff} mesurés sont dans les bons ordres de grandeurs en comparaison des travaux de Qi *et al.* [139][138] avec des valeurs comprises entre 0.03 pour des concentrations en Mn faibles, jusqu'à 0.08 pour de plus fortes valeurs.

Par rapport à la FMR, les valeurs de α_{eff} , même la partie indépendante de la fréquence, sont très importantes et nous avons démontré dans la section précédente que nous avons systématiquement une large contribution inhomogène à l'amortissement. De plus, une contribution inhomogène plus importante suivant [1-10], a déjà pu être mise en évidence par Woltersdorf *et al.* (Fig. 7.7a).

Cette observation est une confirmation des mesures réalisées par Cubukcu *et al.* (Fig. 7.11) en particulier sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$, avec un α_G plus important suivant [1-10]. L'avantage de Woltersdorf *et al.* par rapport à Cubukcu *et al.* réside dans l'utilisation de plus de deux fréquences de cavité ce qui permet de modéliser plus finement les variations des élargissements dépendants de la fréquence à l'instar des mesures réalisées par Ben Hamida *et al.* [13] ou encore Lenz *et al.* [100].

Les résultats de Woltersdorf *et al.* indiquent la présence d'une contribution à 2 magnons à l'amortissement. L'interaction d'un mode uniforme avec une autre onde de spin est connue depuis longtemps dans les métaux [134] et peut être retrouvée dans plusieurs travaux où par exemple la taille des impuretés magnétiques [161], aussi bien que la présence de dislocations [207], permet cette diffusion.

Il est intéressant de noter que la tendance à un élargissement inhomogène plus grand suivant [1-10] que suivant [110] se retrouve aussi bien en pompe-sonde qu'en FMR sans que nous puissions en déterminer la cause principale.

7.4 Conclusion sur la correspondance FMR/pompe sonde

Dans cette première partie, nous avons étudié l'évolution des fréquences de précession et de l'amortissement en fonction de la température et du champ magnétique. Nous avons comparé

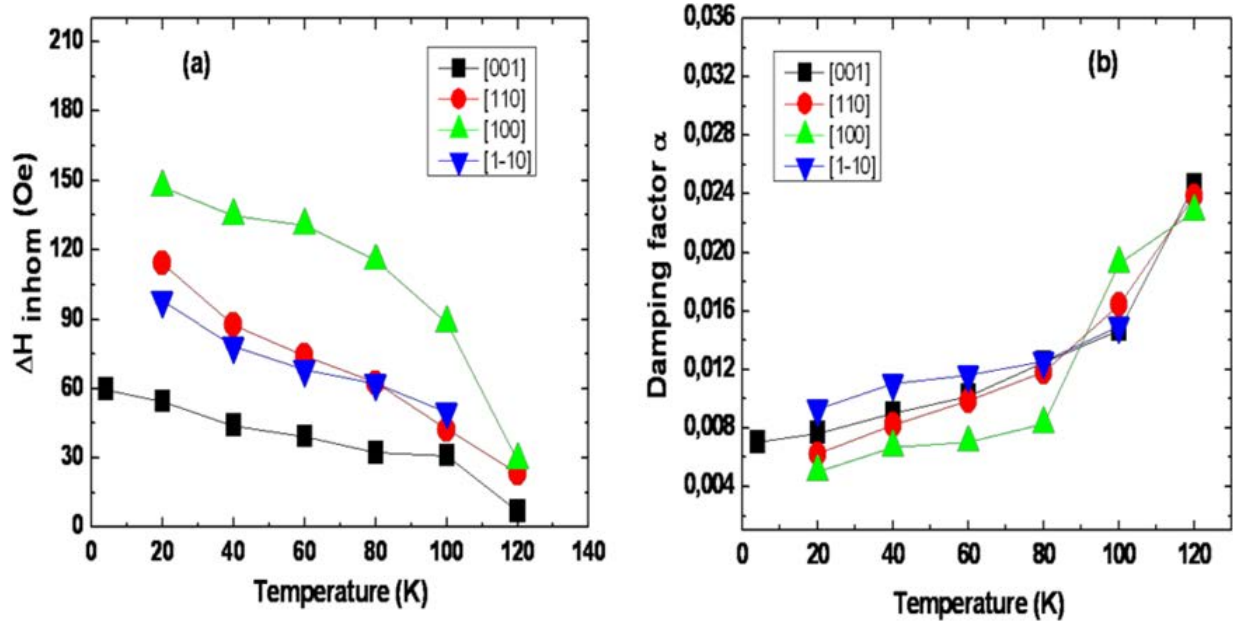


Figure 7.11: Source Cubukcu *et al.* [32] : **a** : données FMR montrant l'élargissement inhomogène (a) et l'amortissement α en fonction de la température pour plusieurs orientations du champ appliqué ; B||[001] (noir, carré), B||[110] (cercle, rouge) , B|| [100] (vert, triangle haut) et B||[1-10] (bleu, triangle bas) pour Mn₇P_{4.3}

les résultats expérimentaux avec les valeurs calculées en utilisant les constantes d'anisotropie déterminées par FMR. Nous obtenons un bon accord lorsque la contribution de $K_{2||}$ est faible. En revanche nous constatons un désaccord lorsque la contribution de $K_{2||}$ est importante par rapport à celle de $K_{4||}$. Deux conclusions sont possibles : $K_{2||}$ est mal déterminée par la FMR lorsque sa valeur est faible devant les autres constantes d'anisotropie, soit cette constante d'anisotropie présente de grandes fluctuations spatiales à l'échelle de quelques dizaines de micromètres.

L'amortissement quant à lui nécessite des expériences complémentaires à plus fort champ magnétique pour tous les échantillons que nous avons étudié, pour passer outre la forte contribution inhomogène probablement due à des effets d'alliages en phosphore (ce qui n'avait pu être fait à l'époque).

Chapitre 8

Excitation optique de la précession

Dans cette deuxième partie, nous allons nous intéresser de plus près à l'excitation optique. L'impact de la pompe sur l'échantillon va entraîner une élévation transitoire de la température ΔT et une injection de porteur Δp . 3 mécanismes d'excitation peuvent être envisagés dans (Ga,Mn)As (voir partie **III** chapitre 6).

1. Thermique : l'excitation d'origine thermique s'observe lorsque l'élévation en température provoqué par le faisceau laser est suffisante pour induire une variation de M_s et des K_i , cette dernière créant ainsi un champ excitateur. L'origine thermique des excitations a été la première identifiée dans le Ni par Van Kampen *et al.* [196] puis dans (Ga,Mn)As où l'absorption du faisceau laser permet de modifier l'anisotropie uniaxiale et ainsi de mettre en précession l'aimantation.
2. OSTT : l'Optical Spin Transfert Torque (OSTT) c'est à dire, l'action de la polarisation des porteurs injectés sur l'aimantation a été identifié par Nemec *et al.*[125] en 2012. Celui-ci tire son origine d'un temps de relaxation des électrons polarisés en spin optiquement injectés (de l'ordre de la dizaine de ps) grand devant le temps de précession des porteurs (de l'ordre de 100 fs). Ainsi, durant leur temps de relaxation, les électrons précesseront autour des Mn créant un couple sur l'aimantation de la forme $\frac{d\vec{M}_{Mn}}{dt} = \vec{M}_{Mn} \times \vec{s} = P_e \vec{M}_{Mn} \times (\vec{n} \times \vec{M}_{Mn})$ où P_e représente le taux d'injection des porteurs ayant une polarisation $\vec{n}$. Ce phénomène peut être vu physiquement du point de vue de la conservation du moment angulaire comme un transfert du moment angulaire des électrons à celui du Mn sans perte à travers le bain de phonons (Fig. 8.1a).

Dans le cas de faisceaux lasers en incidence normale, $\vec{n}$ est donné par le sens de rotation de la polarisation circulaire ($\sigma\pm$) et est orienté suivant z . L'OSTT n'est alors efficace qu'en présence d'une composante non nulle de l'aimantation dans le plan de la couche. Dans le cas où $M_{Mn} \parallel \vec{x}$, $\frac{d\vec{M}_{Mn}}{dt} \parallel \vec{z}$, l'aimantation partira donc hors du plan suivant $\pm z$ selon la polarisation des faisceaux laser (Fig. 8.1b). Ainsi, expérimentalement, l'OSTT peut être mis en évidence très simplement en faisant varier la polarisation des faisceaux optiques.

3. OSOT : l'action de porteurs injectés non polarisés en spin créant un couple sur l'aimantation a été identifié par Nemec *et al.* [182] en 2012. Comme l'OSTT, cet effet tire son origine de la précession des Mn autour du champ créé par les porteurs photo-injectés. La différence étant que la polarisation du faisceau laser ne compte pas et que le temps de relaxation des porteurs est plus court ($t < 1$ ps). Lors de l'injection des porteurs, la polarisation des porteurs dans la bande de valence change sur des temps de l'ordre de l'impulsion laser ce qui applique un couple sur les Mn (Fig. 8.1c). Pour des fluences de pompe suffisamment

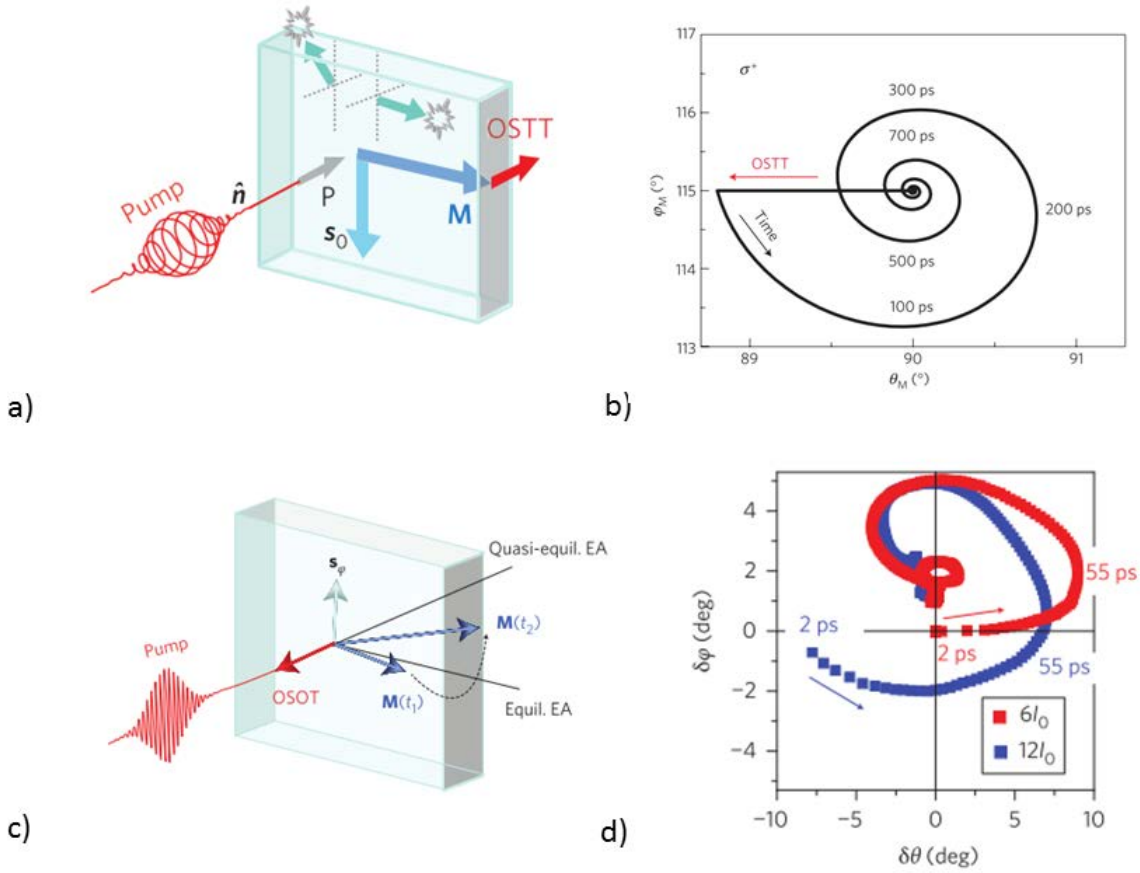


Figure 8.1: **a** : (Ref Nemec *et al.*[125]) schéma explicitant le mécanisme de l'OSTT. **b** : (Ref Nemec *et al.*[125]) schéma représentant la dynamique de l'aimantation due à l'OSTT pour une polarisation σ_+ . **c** : (Ref Nemec *et al.*[182]) schéma représentant le mécanisme de l'OSOT. **d** : (Ref Nemec *et al.*[182]) dynamique expérimentale de l'aimantation sur (Ga,Mn)As montrant la présence d'un OSOT.

grande, c'est à dire un $\Delta p/p$ non négligeable ($\approx 10\%$ dans [182]), et une aimantation dans le plan, cet effet crée un couple faisant partir l'aimantation hors-plan très rapidement ($t < 2$ ps) et avec un signe différent par rapport à une élévation thermique (Fig. 8.1d). La différence de signe s'explique en tenant compte qu'un échantillon à forte densité de porteur renforce l'anisotropie $K_{4\parallel}$ tandis qu'une variation en température ne fait que diminuer le rapport $K_{4\parallel}/K_{2\parallel}$. L'OSOT aura alors tendance à ne produire qu'une variation de $K_{4\parallel}$.

Au cours de nos expériences, le mécanisme d'OSTT n'a été clairement identifié comme étant à la base de l'excitation que dans deux échantillons avec une forte anisotropie uniaxiale suivant [1-10] et sans phosphore. Tous les autres échantillons ne présentant aucune différence pour des $\sigma_{\pm}$, l'excitation est donc soit d'origine thermique, soit due à l'OSOT. De façon effective, nous allons pouvoir modéliser notre excitation par une variation impulsionnelle des constantes d'anisotropie.

Dans cette partie nous présenterons dans un premier temps l'effet d'une excitation optique sur l'aimantation en nous intéressant aux différents champs excitateurs créés par une variation des K_i . Puis nous présenterons le résultat de nos expériences et montrerons comment différentes approches expérimentales de la dynamique permettent de mieux comprendre qualitativement et quantitativement l'effet de l'excitation sur l'aimantation.

8.1 Théorie : efficacité des couples excitateurs

Nous allons commencer par développer la théorie phénoménologique de l'effet des variations des constantes d'anisotropie. Pour ce faire, nous allons résoudre analytiquement l'Eq. 7.4. Le terme d'amortissement n'étant pas nécessaire pour la compréhension, nous le laisserons de côté. Dans le cas d'une aimantation dans le plan, en coordonnée sphérique, on rappelle l'Eq. 7.4 :

$$\begin{cases} \dot{\delta\phi} = \frac{\gamma}{M_s} \left(F_{\theta\theta} \delta\theta + \sum_i F_{\theta K_i} K_i \frac{\delta K_i}{K_i} \right) \\ \dot{\delta\theta} = -\frac{\gamma}{M_s} \left(F_{\phi\phi} \delta\phi + \sum_i F_{\phi K_i} K_i \frac{\delta K_i}{K_i} \right) \end{cases} \quad (8.1)$$

On rappelle ici les expressions des $F_{\phi, \theta K_i}$ que l'on classe en fonction de leurs valeurs lorsque l'aimantation est dans le plan ($\theta_0 = \frac{\pi}{2}$) :

Termes non nuls	Termes nuls
$F_{\phi K_{4\parallel}} = \frac{1}{2} \sin^4 \theta_0 \sin 4\phi_0$	$F_{\phi K_{2\perp}} = 0$
$F_{\phi K_{2\parallel}} = \cos 2\phi_0 \sin^2 \theta_0$	$F_{\phi K_{4\perp}} = 0$
	$F_{\theta K_{4\perp}} = \sin 2\theta_0 \cos^2 \theta_0$
	$F_{\theta K_{2\perp}} = \sin 2\theta_0$
	$F_{\theta K_{2\parallel}} = \frac{\sin 2\theta_0}{2} [-1 + \sin 2\phi_0]$
	$F_{\theta K_{4\parallel}} = \frac{-\cos \theta_0 \sin^3 \theta_0}{2} [3 + \cos 4\phi_0]$

(8.2)

Ces termes vont décrire les couples appliqués à l'aimantation lors d'une variation des constantes d'anisotropie quelque soit l'origine physique. Lorsque l'aimantation est perpendiculaire au plan, $\theta_0 = 0$, **tous les termes s'annulent** et il est alors impossible d'exciter l'aimantation avec une variation des K_i . Si l'aimantation est dans le plan, ($\theta_0 = \frac{\pi}{2}$), les seuls termes ne s'annulant pas sont $\frac{\delta K_{2\parallel}}{K_{2\parallel}} F_{\phi K_{2\parallel}}$ et $\frac{\delta K_{4\parallel}}{K_{4\parallel}} F_{\phi K_{4\parallel}}$. Autrement dit, *seule une variation de $K_{2\parallel}$ ou $K_{4\parallel}$ sera à même de lancer la précession*.

On comprend alors que pour des échantillon avec $\theta_0 = 0$, comme par exemple ceux de Zahn *et al.* [214], aucune précession ne peut être observée, rendant obligatoire l'application d'un champ tirant l'aimantation vers le plan. Nous avons vérifié expérimentalement ce point pour $\text{Mn}_{10.4}\text{P}_{8.8}$ (aimantation perpendiculaire au plan) en appliquant un champ dans le plan. La précession apparaît alors dans le signal dynamique. Au contraire pour $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ (aimantation dans le plan), la précession disparaît lorsque l'aimantation est tirée hors du plan par un champ perpendiculaire (voir plus loin Fig. 8.3).

8.1.1 Résolution analytique

Nous allons nous intéresser au cas des échantillons à aimantation planaire afin d'obtenir une solution analytique de $\delta\theta(t)$ et $\delta\phi(t)$. L'Eq. 8.1 se simplifie grandement et il ne reste plus que :

$$\begin{cases} \dot{\delta\phi} = \frac{\gamma}{M} F_{\theta\theta} \delta\theta \\ \dot{\delta\theta} = -\frac{\gamma}{M} F_{\phi\phi} \delta\phi + X(t) \end{cases} \quad (8.3)$$

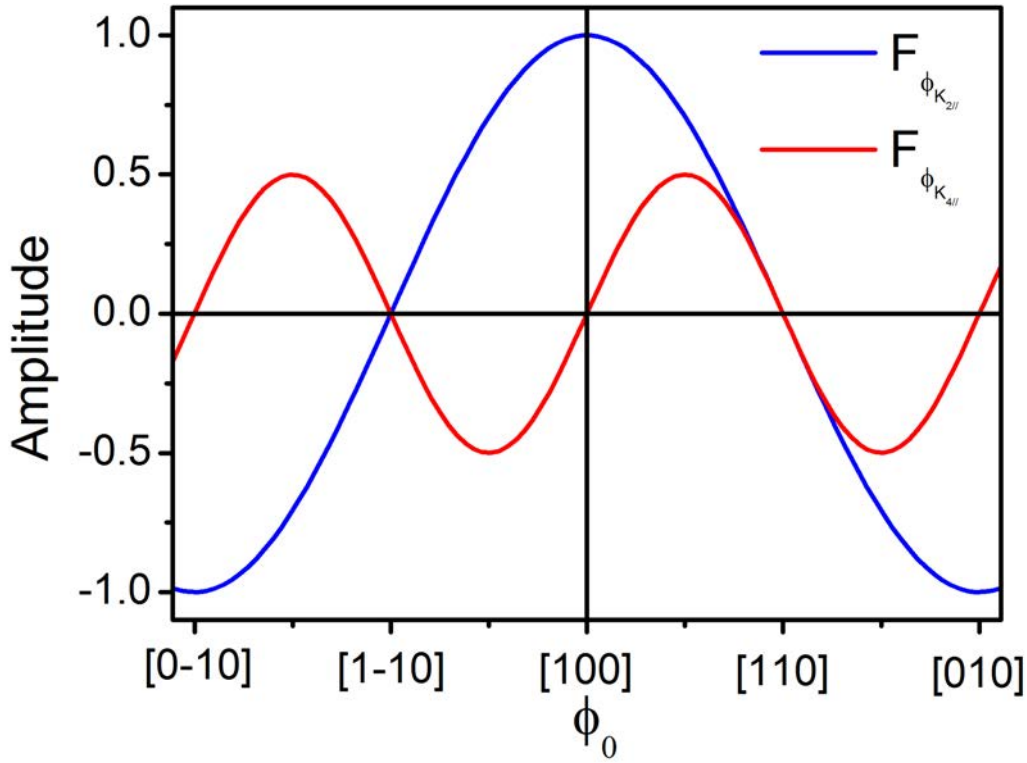


Figure 8.2: Dépendance angulaire des coefficients $F_{\phi, K_{2,4\parallel}}$ en fonction de la position d'équilibre de l'aimantation.

avec $X(t) = -\gamma f(t)X_0$ où $f(t)$ représente une fonction impulsionnelle excitatrice sans dimension. X_0 a la dimension d'un champ. Dans le cas général, celui-ci prend la forme suivante :

$$X_0 = \frac{\cos(2\phi_0)}{M_s} K_{2\parallel} \Delta_{2\parallel} + \frac{\sin 4\phi_0}{2M_s} K_{4\parallel} \Delta_{4\parallel} \quad (8.4)$$

avec $\Delta_{2,4\parallel} = \frac{\delta K_{2,4\parallel}}{K_{2,4\parallel}}$. Lorsque l'on considère des expériences sans champ magnétique, en utilisant la position d'équilibre donnée par $\sin 2\phi_0 = -K_{2\parallel}/K_{4\parallel}$ lorsque $K_{2\parallel} < K_{4\parallel}$, l'Eq. 8.4 peut se réécrire sous la forme suivante :

$$X_0 = \frac{\cos(2\phi_0)}{M_s} K_{2\parallel} (\Delta_{2\parallel} - \Delta_{4\parallel}) = \frac{\cos(2\phi_0)}{M_s} K_{2\parallel} \Delta K \quad (8.5)$$

avec $\Delta K = \Delta_{2\parallel} - \Delta_{4\parallel}$. Pour résoudre la dynamique, on considère l'équation homogène, sans $X(t)$. Les valeurs propres du système sont $\lambda_{\pm} = \pm i \frac{\gamma}{M_s} \sqrt{F_{\phi\phi} F_{\theta\theta}} = \pm i\omega_0$, de vecteurs propres $e_{\pm} = (\frac{\gamma}{M_s} F_{\theta\theta}, \pm i\omega_0)$, avec ω_0 la pulsation de l'aimantation définie dans la section 7.2. La solution réelle de l'équation homogène est alors de la forme :

$$\begin{cases} \delta\phi(t) = \frac{\gamma}{M} F_{\theta\theta} (A \cos \omega_0 t + B \sin \omega_0 t) \\ \delta\theta(t) = \omega_0 (-A \sin \omega_0 t + B \cos \omega_0 t) \end{cases} \quad (8.6)$$

On s'intéresse à la solution particulière dans le cas de l'excitation $X(t)$. Pour la calculer, on applique la méthode de la variation de la constante sur l'Eq. 8.6 en utilisant l'Eq. 8.3. Les

fonctions $\delta\theta(t)$ et $\delta\phi(t)$ solutions de l'équation sont alors des produits de convolution avec la fonction excitatrice :

$$\begin{cases} \delta\theta(t) = \left(\delta\theta_0 \cos \omega_0 t - \delta\phi_0 \sqrt{\frac{F_{\phi\phi}}{F_{\theta\theta}}} \sin \omega_0 t \right) - \gamma X_0 \int_0^t \cos [\omega_0(t-u)] f(u) du \\ \delta\phi(t) = \left(\delta\phi_0 \cos \omega_0 t + \delta\theta_0 \sqrt{\frac{F_{\phi\phi}}{F_{\theta\theta}}} \sin \omega_0 t \right) - \gamma X_0 \sqrt{\frac{F_{\phi\phi}}{F_{\theta\theta}}} \int_0^t \sin [\omega_0(t-u)] f(u) du \end{cases} \quad (8.7)$$

avec $\delta\theta_0$ et $\delta\phi_0$ les conditions initiales. Notons que puisque l'on ne considère pas l'amortissement, aucune condition sur la dérivée n'est nécessaire. Dans le cas de l'OSOT, les temps caractéristiques d'interaction sont tels que l'on peut considérer $\delta\theta_0 \neq 0$ et $\delta\phi_0 \neq 0$. Autrement dit, avant le début de la précession, on aurait une première variation de la position de l'aimantation instantanée par rapport aux autres temps caractéristiques du système.

La conséquence de l'Eq. 8.7 est que les amplitudes des oscillations vont dépendre de la position d'équilibre de l'aimantation (ϕ_0). Sans champ magnétique, si l'aimantation est strictement alignée suivant [100] ($\phi_0 = 0$ ou $K_{2\parallel} = 0$), aucune perturbation des K_i ne peut lancer la précession (Fig. 8.2). Avec un champ magnétique suivant [100] on peut avoir $\phi_0 = 0$ et $K_{2\parallel} \neq 0$. Ainsi, l'Eq. 8.4 montre que seule une perturbation de $K_{2\parallel}$ peut lancer la précession. Si l'aimantation est strictement alignée suivant [1-10] ($\phi_0 = -\frac{\pi}{4}$) que se soit sans champ ($K_{2\parallel} > K_{4\parallel}$ ou avec un champ $\parallel$ [1-10], aucune perturbation des constantes d'anisotropie $K_{2\parallel}$ et $K_{4\parallel}$ ne peut lancer la précession.

Afin de modéliser nos signaux nous calculons l'angle de rotation de la polarisation de la lumière à partir de $\delta\theta(t)$ et $\delta\phi(t)$ et des coefficients magnéto-optiques P_{Kerr} et P_{Voigt} précédemment établis dans la partie des effets magnéto-optiques¹ et dont on rappelle ici les expressions :

$$\delta\beta_{\theta_0=\pi/2}^d(t) = -P_{\text{Kerr}}\delta\theta(t) + 2\left(\frac{\delta M_s(t)}{M_s}\right)P_{\text{Voigt}} \sin 2(\phi_0 - \beta) + 2P_{\text{Voigt}}\delta\phi(t) \cos 2(\phi_0 - \beta) \quad (8.8)$$

$$\delta\beta_{\theta_0=0 \text{ ou } \pi}^d(t) = \mp P_{\text{Kerr}} \frac{\Delta M_s(t)}{M_s} \quad (8.9)$$

8.2 Forme et durée de l'impulsion excitatrice

Pour modéliser finement l'effet d'une excitation optique, il est nécessaire de choisir une forme et une durée d'excitation que l'on injectera dans l'Eq. 8.7.

L'excitation optique se fait sur des échelles de temps de l'ordre de la durée des impulsions laser (130 fs). Toutefois dans les signaux dynamiques, apparaît très clairement pour des polarisations à 45 deg de l'aimantation une composante exponentielle (Fig. 8.3a) ayant un temps de montée de 150 ps et un temps de déclin de 1250 ps (Fig. 8.3b), très long comparé à la largeur des impulsions laser. La présence d'un tel signal peut être retrouvé dans la littérature sur (Ga,Mn)As dans les travaux de Kobayashi *et al.*[91] et Nemec *et al.*[182]. Kobayashi *et al.* interprètent la présence de ce signal comme le signe d'une excitation longue en identifiant la source de ce dernier à un champ effectif excitateur. Nemec *et al.* parvinrent à identifier cette

¹Partie II chapitre 1 et l'Eq. 3.34

signature comme étant la variation du module de l'aimantation $\delta M_s/M_s$ en s'appuyant sur sa dépendance en polarisation. Toutefois, en analysant ses données de réflectivité différentielle, Nemec *et al.* montrent que malgré un $\delta M_s/M_s$ long, l'excitation est, elle, plus courte et doit représenter une variation transitoire de la température.

Le problème est le suivant : la variation du module de l'aimantation peut avoir pour origine soit la variation de densité de porteurs, soit une variation transitoire de température. Aux fluences utilisées, en prenant une profondeur de pénétration caractéristique du GaAs à 700 nm 3 μm [20] (l'ordre de grandeur est plutôt respecté dans (Ga,Mn)As), on obtient une densité de porteurs photo-crées d'environ 10^{17} porteurs/ cm^3 , 3 ordres de grandeur en deçà de ce qui aurait été nécessaire pour faire varier le module (ainsi que les K_i partie I chapitre 2, Fig. 2.8e) ne serait-ce que de 1 %. L'origine de $\delta M_s/M_s$ doit ainsi être forcément reliée à une variation transitoire en température. Si on suppose que cette variation en température est reliée directement au mécanisme d'excitation, on est donc face à une excitation longue.

Nous voyons donc là une contradiction entre les travaux de Kobayashi *et al.* qui supposent une excitation longue et Nemec *et al.* supposant une excitation courte, pour des conditions expérimentales tout à fait comparables aux nôtres. Si une forme d'excitation du type $e^{-t/\tau_P} - e^{-t/\tau_d}$ semble raisonnable en première approche, il convient désormais de considérer les bonnes durées d'excitation. Pour les déterminer, nous allons suivre une approche comparable à celle de Nemec *et al.* en étudiant les signaux dynamiques en fonction de la polarisation de la lumière.

8.2.1 Signaux en fonction de la polarisation sonde

L'étude en fonction de la polarisation se fait en ajustant chaque courbe par la fonction l'Eq. 7.12 dont on rappelle ici l'équation :

$$p(t) = \sum_i A_i \sin(\omega_i t + \phi_i) \exp(-\alpha_i \omega_i t) + \frac{C}{C_{\max}} \left[\exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{down}}}\right) - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{up}}}\right) \right] \quad (8.10)$$

Ici nous nous intéresserons uniquement à $C^*(\beta) = \frac{C}{C_{\max}}$. $C^*(\beta)$ présente une très forte variation π périodique, avec un changement de signe entre [1-10] et [110] (Fig. 8.3d). En utilisant l'Eq. 8.9 l'identification du signal magnéto-optique correspondant à C^* est directe. Sachant que l'aimantation se situe autour d'axe $\langle 100 \rangle$, le seul terme répondant à ce critère est celui dépendant de $\delta M_s/M_s$ évoluant en $P_{\text{Voigt}} \sin 2(\phi_0 - \beta)$, π périodique, maximal si $\phi_0 - \beta = \pi/4[\pi]$ et nul lorsque $\phi_0 - \beta = 0[\pi]$ ce qui correspond tout à fait à nos observations. Avec $P_{\text{Voigt}} = 0.5$ mrad à $T = 12$ K on obtient $\delta M_s/M_s \approx 1.5$ %. Par rapport à Kobayashi *et al.* et Nemec *et al.* [123], nous retrouvons bien une variation du module de l'aimantation avec une amplitude et des durées caractéristiques comparables.

Pour compléter cette interprétation, nous avons réalisé des expériences avec un champ appliqué hors du plan, suffisamment fort pour aligner l'aimantation avec $\theta_0 = 0$. Aucune excitation de la précession par variation des constantes d'anisotropie n'est visible mais seule reste une partie en exponentielle croissante et décroissante relié directement à celle que l'on peut observer à champ nul (Fig. 8.3c). Sur d'autres échantillons avec une aimantation hors-plan, nous avons pu vérifier expérimentalement que l'inversion de la polarité du champ magnétique change le signe de la courbe. En utilisant l'Eq. 8.9, on identifie alors directement le signal magnéto-optique à $\delta M_s/M_s$ confirmant l'identification réalisée à champ nul.

Cependant, nous attirons l'attention sur le fait que même si les temps caractéristiques de ce signal sont tout à fait comparables à ceux obtenus à champ nul, l'amplitude de la variation

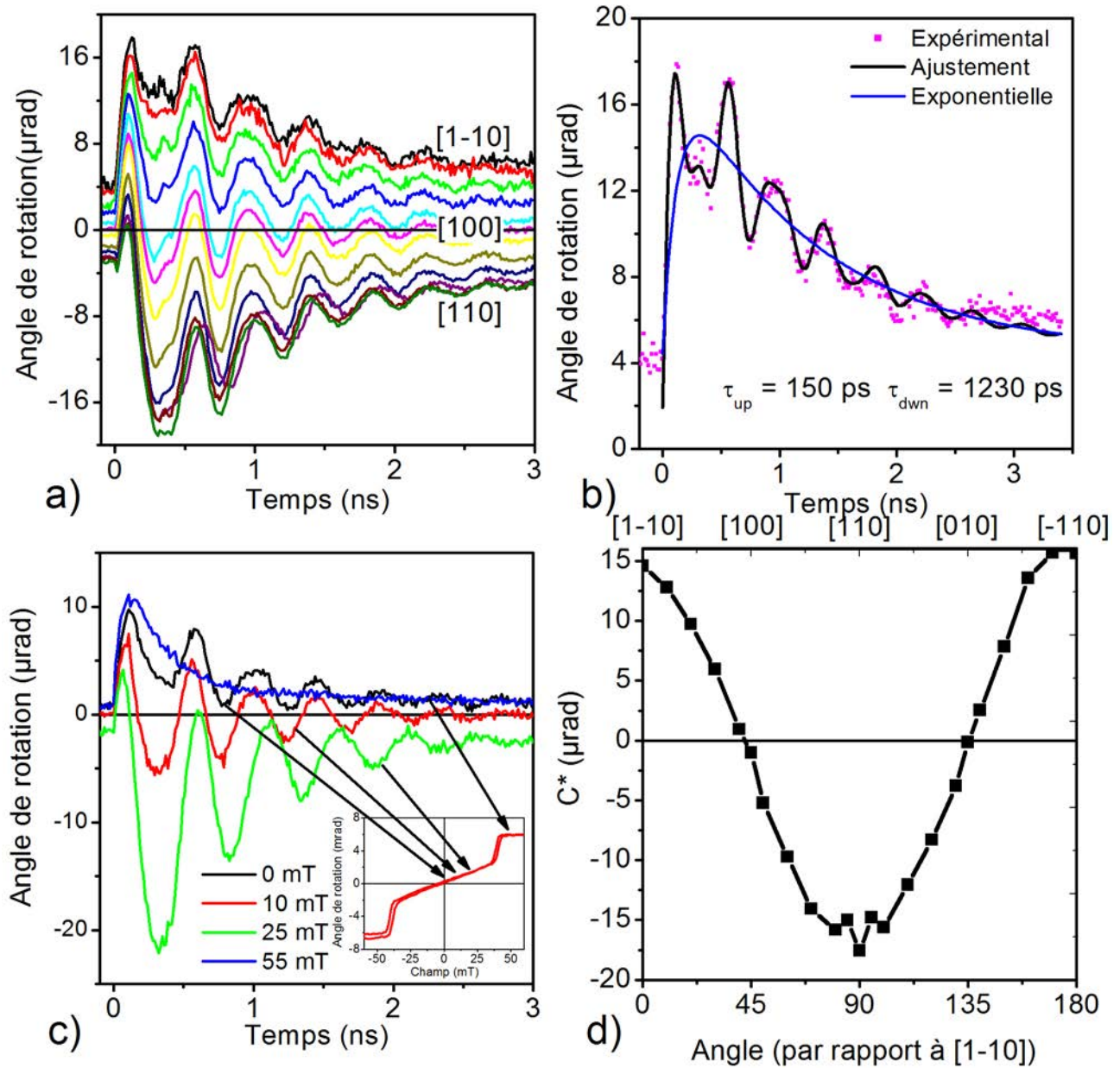


Figure 8.3: **a** Signaux magnéto-optiques obtenus en fonction de la polarisation de la sonde. **b** Focus sur la courbe noire ($\beta \parallel [1-10]$) de **a** : visualisation d'un signal de type exponentiel uniquement pour des basses puissances de pompe. **c** : signaux à polarisation sonde fixe ($\parallel [1-10]$) en fonction d'un champ hors-plan. (en encart : cycle d'hystérésis correspondant) **d** : Variation de C^* , l'amplitude du fond exponentiel, en fonction de la polarisation de la sonde.

Echantillon : $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; $T=12 \text{ K}$; $F_{\text{pompe}}=1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$; $F_{\text{sonde}}=0.7 \mu\text{J cm}^{-2}$; polarisation pompe et sonde $\parallel [1-10]$

du module à l'origine du signal n'est pas la même. En effet, si $\theta_0 = \pi/2$ (champ nul, $\vec{M}$ dans le plan), $\delta M_s/M_s$ est relié à P_{Voigt} (nous avons vérifié également expérimentalement ce fait en mesurant le signal dynamique en parcourant un cycle d'hystérésis) tandis que pour $\theta_0 = 0$ ($\vec{M}$ suivant $\vec{z}$), $\delta M_s/M_s$ est relié à P_{Kerr} . On obtient alors $\delta M_s/M_s \approx 0.1\%$ lorsque l'aimantation est hors-plan, soit une quantité 15 fois plus faible que lorsque l'aimantation est dans le plan. A notre connaissance, cet effet n'a jamais été observé dans la littérature, et nous n'avons aucune explication sur ce phénomène.

Nous n'insisterons pas plus sur l'interprétation de l'origine physique de ce signal, toutes les expériences réalisées jusqu'à présent ne permettant pas de conclure de façon irréfutable que celui-ci tire son origine de $\delta M_s/M_s$ (nous verrons deux cas avec du champ magnétique, et avec la fluence de la pompe ainsi que la température). Pour le moment nous ne faisons que supposer que celui-ci tire son origine de $\delta M_s/M_s$.

8.2.2 Simulation : excitation courte vs excitation longue

Intéressons nous aux différences entre une excitation courte et une excitation longue sur les signaux magnéto-optiques en résultant. Quantitativement, la bonne détermination de cette durée est cruciale pour une analyse quantitative des signaux : pour une même variation des constantes d'anisotropie, plus l'excitation sera longue, plus l'amplitude du signal magnéto-optique sera importante, celle-ci étant proportionnelle à l'intégrale de la fonction excitatrice. L'enjeu dans la détermination de la durée de l'excitation est donc d'obtenir les $\Delta_{i\parallel}$ correspondant réellement à notre excitation et donc par extension le ΔT responsable de ces variations.

Les simulations sont réalisées en résolvant LLG en prenant des fonctions excitatrices de la forme $e^{-t/\tau_{\text{down}}} - e^{-t/\tau_{\text{up}}}$ avec $\tau_{\text{down}} = 1250$ ps et $\tau_{\text{up}} = 150$ ps pour l'excitation longue, et $\tau_{\text{up}} = 0.1$ ps et $\tau_{\text{down}} = 5$ ps pour l'excitation courte. La trajectoire calculée pour chacune des excitations est ensuite injectée dans l'Eq. 8.9 afin de calculer le signal magnéto-optique résultant. Afin de toujours correspondre aux amplitudes expérimentales, l'amplitude des variations initiales a été adaptée. Pour l'excitation courte, nous utilisons $\Delta T = 15$ K ce qui correspond à $\Delta_{4\parallel} = 40\%$ et $\Delta_{2\parallel} = 20\%$. Pour l'excitation longue, $\Delta T = 3$ K ce qui correspond à $\Delta_{4\parallel} = 10\%$ et $\Delta_{2\parallel} = 8\%$.

Dans la Fig. 8.4a et b sont représentées les trajectoires simulées de l'aimantation pour une excitation courte et une excitation longue. Le point commun de ces deux excitations est que l'aimantation commence toujours par partir suivant $\delta\theta$. Ceci s'explique simplement car le champ exciteur s'applique sur $\delta\dot{\theta}$ et non sur $\delta\dot{\phi}$. Pour une excitation courte, $\delta\theta(t)$ et $\delta\phi(t)$ sont en quadrature. La rotation se fait autour d'un axe d'équilibre fixe. Dans le cas d'une excitation longue, après avoir atteint l'amplitude maximale de ϕ , on peut observer que $\delta\theta(t)$ et $\delta\phi(t)$ ne sont plus en quadrature car l'axe d'équilibre est désormais mobile ($\phi_0(t)$). La dynamique de $\phi_0(t)$ étant plus lente que celle de la précession, l'aimantation a le temps de précesser autour de cet axe mobile plusieurs fois donnant à la trajectoire cet aspect en spirale.

Les signaux magnéto-optiques sont présentés dans les Fig. 8.4c et d. Plusieurs différences entre ces deux séries de courbes apparaissent. La première est aux temps courts, sur la toute première oscillation. Dans le cas d'une excitation courte, on peut observer que la toute première arche augmente toujours dans le même sens (encart Fig. 8.4c) tandis que dans le cas d'une excitation longue, celle-ci change de signe (encart Fig. 8.4d). Deuxième différence l'angle β pour lequel on observe une oscillation parfaitement symétrique. On peut constater que dans le cas

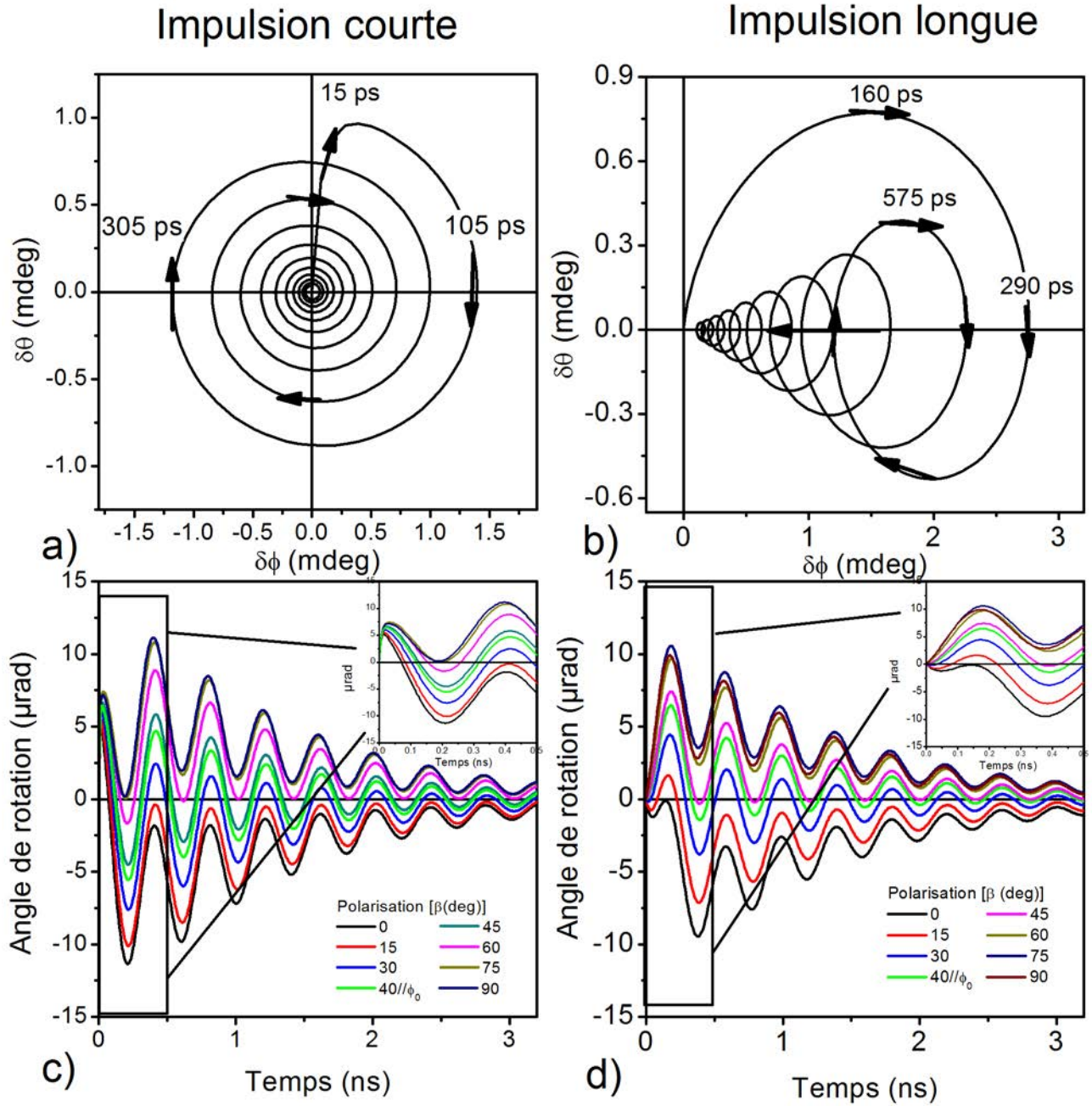


Figure 8.4: Simulation de l'effet de la durée de l'excitation sur la dynamique de l'aimantation à travers sa trajectoire (a et b) et les effets magnéto-optiques (c et d) a : trajectoire de l'aimantation suite à une excitation courte. b : trajectoire de l'aimantation suite à une excitation longue. c : signal magnéto-optique total après une impulsion courte. d : signal magnéto-optique total après une impulsion longue.

Paramètres utilisés : Echantillons $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; $T=12\text{ K}$; $P_{\text{Kerr}}=6.2\text{ mrad}$; $P_{\text{Voigt}}=0.5\text{ mrad}$; Excitation courte : $\Delta T=15\text{ K}$, $\Delta_{2\parallel}=0.2$, $\Delta_{4\parallel}=0.4$; Excitation longue : $\Delta T=3\text{ K}$, $\Delta_{2\parallel}=0.08$, $\Delta_{4\parallel}=0.1$

d'une excitation courte, β est égal à ϕ_0^2 . Dans le cas d'une excitation longue, ceci apparaît pour une polarisation éloignée de 10 deg par rapport à ϕ_0 . Ceci est dû à une compétition entre le terme en $\delta\phi(t) \cos[2(\phi_0 - \beta)]$ et le terme en $\Delta M_s/M_s \sin[2(\phi_0 - \beta)]$ pour lequel on rajoute une contribution dans $\delta\phi(t)$ en $\phi_0(t)$ avec une dynamique lente.

En comparant les signaux magnéto-optiques expérimentaux aux signaux théoriques, on peut constater que ceux-ci sont plus la résultante d'une excitation courte que d'une excitation longue. Deux arguments viennent appuyer cette remarque. Premièrement les signaux magnéto-optiques expérimentaux oscillent pratiquement autour de 0 d'une façon bien symétrique uniquement lorsque la polarisation est proche de l'aimantation c'est à dire là où le fond exponentiel s'annule. Deuxièmement le comportement aux temps courts des signaux se rapproche plus de celui d'une excitation courte que d'une excitation longue. Ces deux éléments nous font donc clairement pencher vers une excitation courte.

En s'intéressant donc purement aux effets magnéto-optiques, on en déduit alors que l'on est en présence d'une excitation courte validant ainsi les conclusions de Nemec *et al.*[125].

8.2.3 Reconstruction de la dynamique

L'étude des signaux en fonction de la polarisation de la sonde nous permet d'aller un peu plus loin en reconstruisant la dynamique. L'intérêt de cette procédure est de pouvoir déterminer différents régimes pour la dynamique comme ont pu le faire Nemec *et al.* pour déterminer la présence de l'OSTT [125] et l'OSOT [182].

Pour reconstruire la dynamique, il est nécessaire de changer de point de vue. Plutôt que de considérer chaque courbe indépendamment à l'instar de ce qui est fait par Tesarova *et al.* [184] et de sommer les courbes entre elles, on les considère toutes en même temps en travaillant sur leurs amplitudes en fonction de la polarisation à tout temps (cf Fig. 6.3) ; on se rapproche ainsi de la définition donnée par l'Eq. 8.9 qui prend en compte l'amplitude en fonction de la polarisation pour tout temps. A chaque temps, le signal en fonction de β est ajusté avec une fonction de la forme :

$$f_t(t, \beta) = f_0(t) + f_1(t) \cos 2(\phi_0 - \beta) + f_2(t) \sin 2(\phi_0 - \beta) \quad (8.11)$$

Le résultat de ce traitement est présenté dans la Fig. 8.5. Les deux premiers termes dans l'Eq. 8.11 présentent des oscillations d'amplitudes différentes, amorties. Notons que le terme indépendant de la polarisation (Fig. 8.5a) est plus grand que celui en $\cos 2(\phi_0 - \beta)$ (Fig. 8.5b). Dans le terme dépendant du $\sin 2(\phi_0 - \beta)$ (Fig. 8.5c), on peut constater en plus d'un signal de forme exponentielle, de petites oscillations additionnelles. On rappelle qu'ici ϕ_0 est aligné suivant [100], ce qui correspond à une polarisation $\beta=45$ deg.

Chacun de ces signaux peut être rapproché de l'Eq. 8.9 et connaissant l'amplitude des effets magnéto-optiques, on obtient directement un $\delta\theta(t)$, $\delta\phi(t)$ et $\delta M_s/M_s$. Afin d'être précis, nous avons tenu compte d'une dépendance en polarisation de l'effet Kerr que nous avons pu observer en réalisant des cycles d'hystérésis d'effet Kerr polaire en fonction de la polarisation. Nous avons ainsi pu mesurer que $P_{\text{Kerr}}(\beta) = P_{\text{Kerr}0} + P_{\text{Kerr}1} \sin 2(45 - \beta)$ avec $P_{\text{Kerr}0} = 7.13$ mrad et $P_{\text{Kerr}1} = -1.15$ mrad. Nos mesures ont montré que cet effet est indépendant de l'orientation de l'échantillon ce qui nous oriente vers un artefact d'expérience. L'origine de cet artefact ne

²Dans le cas présent, ϕ_0 est décalé de 5 deg par rapport à [100]

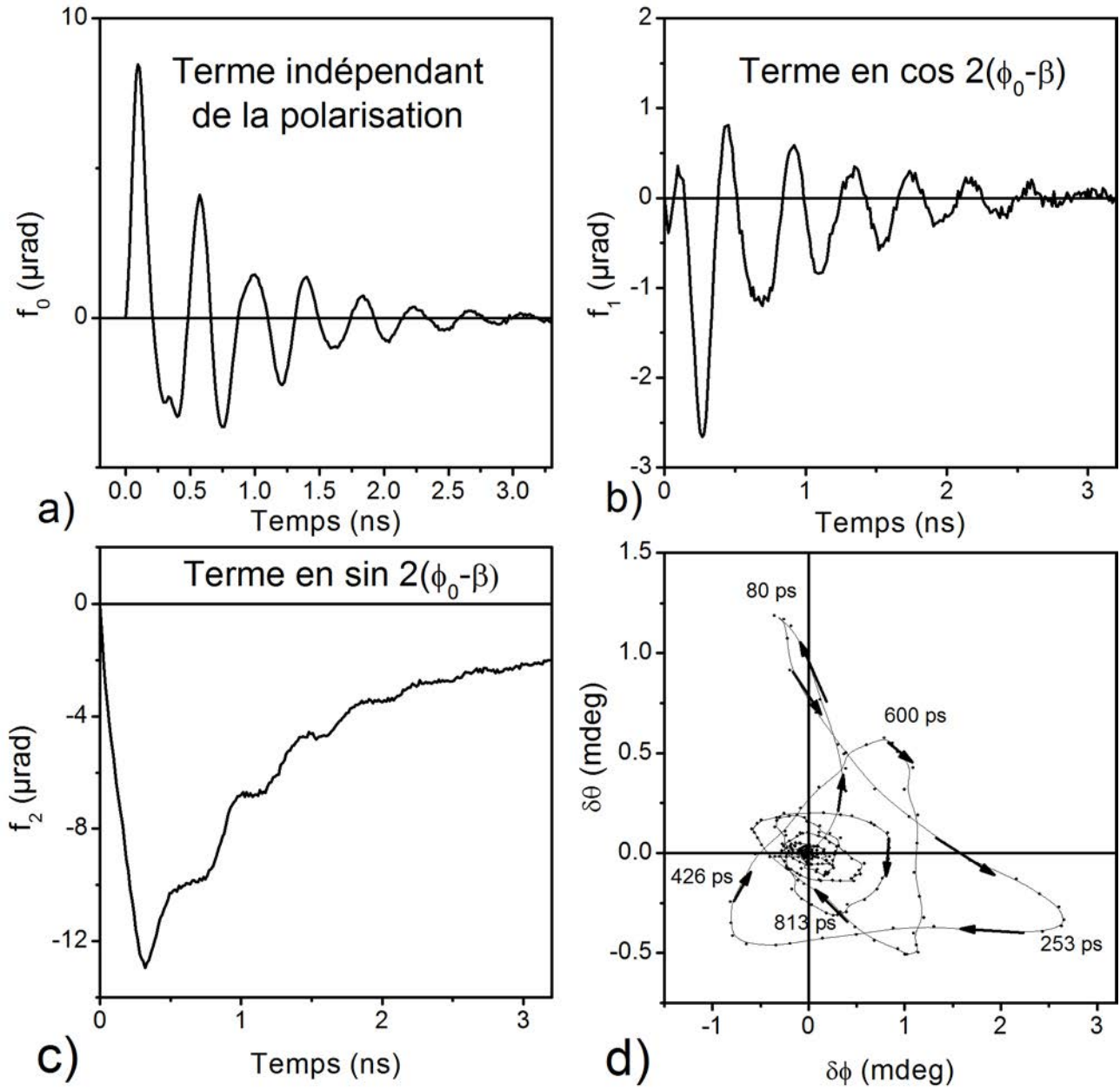


Figure 8.5: Composantes indépendante (a) et dépendantes de la polarisation (b et c) obtenues à partir du traitement des courbes à toutes les polarisations avec l'Eq. 8.11. d : reconstruction dynamique de la trajectoire. Les flèches correspondent au sens d'évolution de l'aimantation.

Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; $F_{pompe}=1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$; $F_{sonde}=0.7 \mu\text{J cm}^{-2}$

nous est pas connu celui-ci ayant une modulation trop faible pour être détecté aisément. La correspondance pour chacun des signaux est alors :

$$f_0(t) = -P_{\text{Kerr}0}\delta\theta(t) \quad f_1(t) = +2P_{\text{Voigt}}\delta\phi(t) \quad f_2(t) = P_{\text{Kerr}1}\delta\theta + 2P_{\text{Voigt}}\frac{\Delta M_s}{M_s} \quad (8.12)$$

Le résultat pour la dynamique complète est présentée dans la Fig. 8.5d. Qualitativement, après l'excitation laser, on observe que l'aimantation précesse autour d'un axe d'équilibre fixe, en accord avec une interprétation d'une excitation courte. Notons toutefois la forme particulière de la dynamique qui au temps court n'est pas aussi circulaire que la dynamique obtenue dans la simulation de la Fig. 8.4a. Ceci est due à la présence d'une onde de spin supplémentaire oscillant à une fréquence de ≈ 4 GHz comme le montre le résultat d'un filtrage de la trajectoire en supprimant les composantes de Fourier du signal entre 3 GHz et 4.5 GHz (Fig. 8.6a). La trajectoire du mode restant présente un aspect plus circulaire, précessant autour d'un axe fixe ce qui correspond à la Fig. 8.4a. Ce mode de spin supplémentaire que nous continuons de mettre de côté pour le moment sera au centre de notre attention dans la partie IV.

Par rapport à ce qui se fait dans la littérature, l'avantage de notre technique est donc de pouvoir bien séparer $\delta\theta(t)$ et $\delta\phi(t)$ et ce de façon directe, par l'intermédiaire d'un ajustement simple avec peu de paramètres. L'inconvénient de cette méthode étant qu'il est nécessaire d'avoir la dépendance complète en polarisation à chaque fois que l'on fait varier un paramètre (température, champ, puissance ...) ce que nous n'avons pas systématiquement réalisé, la reconstruction ayant été un problème secondaire. En comparaison, la méthode de Tesarova *et al.* [184] est plus facile à mettre en oeuvre, celle-ci ne nécessitant que 3 courbes prises à des polarisations clefs. Toutefois, nous attirons l'attention du lecteur que cette méthode s'est révélée inapplicable dans notre cas car la première onde de spin ne possède pas le comportement en fonction de la polarisation mesuré par Tesarova *et al.* (voir Fig. 8.6c et d). Actuellement nous ignorons les raisons de cette différence en polarisation.

8.3 Efficacité de l'excitation optique

Dans cette partie, nous allons déterminer les mécanismes de l'excitation optique. Plus précisément, nous allons essayer de comprendre et de quantifier les perturbations des constantes d'anisotropie les plus efficaces pour lancer la précession ce qui va nous permettre de faire une étude quantitative du phénomène.

Pour rappel, toutes les expériences relatives à cette partie ont été conduites avec des fluences de $F_{\text{pompe}} = 1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$ pour la pompe et $F_{\text{sonde}} = 0.7 \mu\text{J cm}^{-2}$ pour la sonde. Les processus indépendants de la polarisation étant au centre de notre intérêt, la polarisation de la pompe et de la sonde sont linéaires suivant [100]. Ici le paramètre que nous allons étudier est l'amplitude des fréquences de précession en fonction de la température, puis du champ magnétique.

8.3.1 Variation impulsionnelle thermique des K_i

Nous commençons notre étude par les expériences en fonction de la température. Comme présenté dans le chapitre 6.2, de façon qualitative les amplitudes de précession diminuent en fonction de la température.

Cette observation générale est la combinaison de deux effets. Le premier effet est d'origine purement magnéto-optique, les coefficients P_{Kerr} et P_{Voigt} décroissant en température comme

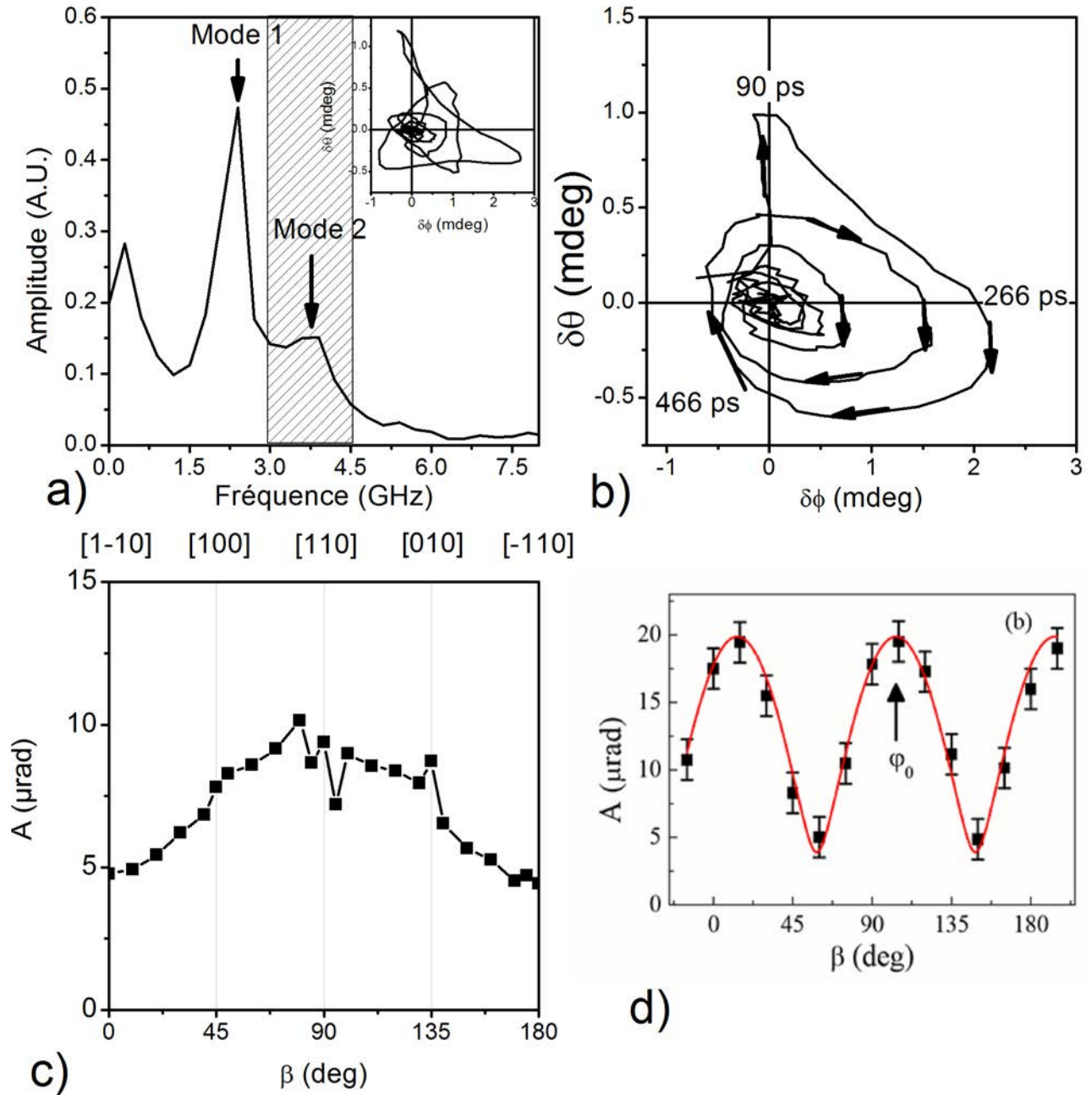


Figure 8.6: **a** : FFT de la trajectoire de l'aimantation présenté en encart. La zone hachée correspond aux fréquences coupées pour obtenir la trajectoire en **b**. **b** : trajectoire de l'aimantation du mode 1 uniquement. **c** : amplitude de A_1 en fonction de la polarisation sonde. **d** : Source Tesarova *et al.* [184] Amplitude de A_1 en fonction de la polarisation sonde

$M_s(T)$ et $M_s(T)^2$ respectivement. Le deuxième effet est une diminution de l'efficacité du couple exciteur variant comme $X_0 = \frac{\cos 2\phi_0(T)}{M_s(T)} K_{2\parallel} (\Delta_{2\parallel} - \Delta_{4\parallel})$. En pratique, notre signal magnéto-optique sera la combinaison de ces deux effets.

Regardons si la variation de l'amplitude peut provenir d'effets purement magnéto-optiques, c'est à dire des variations des constantes $P_{\text{Kerr}}(T)$ et $P_{\text{Voigt}}(T)$. S'il est difficile d'obtenir précisément $P_{\text{Voigt}}(T)$, $P_{\text{Kerr}}(T)$ lui a été mesuré à partir de l'amplitude des cycles d'hystérésis en champ perpendiculaire. Sur la gamme de température observée, $P_{\text{Kerr}}(T)$ ne diminue que très peu (13 %) tandis que l'amplitude s'annule vers $T=55$ K (Fig. 8.7a)³. Ainsi, le fait que nous n'observons plus de précession bien avant la T_c (≈ 85 K) prouve que nous n'avons pas qu'un effet purement magnéto-optique.

Une variation des constantes d'anisotropies...

Pour modéliser la variation de l'amplitude en fonction de la température, il faut donc considérer l'efficacité du couple exciteur. Connaissant la position d'équilibre de l'aimantation, l'aimantation ainsi que les constantes d'anisotropies en fonction de la température, on peut calculer le couple exciteur X_0 pour toutes les températures.

On s'attend alors à une diminution de l'efficacité en fonction de la température jusqu'à une complète annulation de l'excitation lorsque ϕ_0 s'aligne suivant [1-10] ($\phi_0 = \frac{3\pi}{4}$) à partir de 60 K. Le fait que nous puissions observer de la précession implique que X_0 n'est pas nul, autrement dit que $\Delta_{2\parallel} \neq \Delta_{4\parallel}$.

Trois paramètres pilotent alors les amplitudes de précession :

1. $\phi_0(T)$ obtenu à partir des $K_i(T)$
2. $M_s(T)$
3. $\Delta_i(T, \Delta T)$: la variation impulsionnelle des $K_i(T)$ reliée à la variation impulsionnelle de la température ΔT .

La troisième condition nécessite la connaissance de la variation des constantes d'anisotropie en fonction de la température. On définit $\Delta_{i\parallel}(T, \Delta T)$ par $\frac{K_i(T+\Delta T) - K_i(T)}{K_i(T)}$.

La procédure d'analyse de l'amplitude est alors la suivante. A une température donnée on connaît $M_s(T)$ et $K_i(T)$. On commence par calculer $\phi_0(T)$. Dans le cas présenté, nous utilisons un $K_{2\parallel}$ augmenté de 40 % par rapport aux données FMR afin d'obtenir l'alignement de l'aimantation selon [1-10] à 55 K, la température où l'amplitude de la précession s'annule⁴. Ensuite, on considère une variation de température ΔT qui donne $\Delta_i(T, \Delta T)$. On obtient ainsi X_0 . La résolution de l'Eq. 8.7 permet de calculer $\delta\theta(t)$ et $\delta\phi(t)$ puis l'amplitude du signal magnéto-optique en utilisant l'Eq. 8.9. On trouve ainsi la valeur de ΔT qui donne le meilleur accord entre l'amplitude mesurée et calculée. En considérant une excitation courte de la forme $f(t < 0) = 0$, $f(t) = e^{-t/\tau_P}$, l'Eq. 8.7 devient :

³Nous mettons une barre d'erreur importante sur le point à 52 K de la Fig. 8.7a. Le signal ne permettant pas un ajustement raisonnable, ce dernier a été mesuré "à la main" en prenant l'amplitude du premier pic.

⁴ $K_{2\parallel}(T)$ est proche de celui utilisé pour l'analyse de l'amortissement

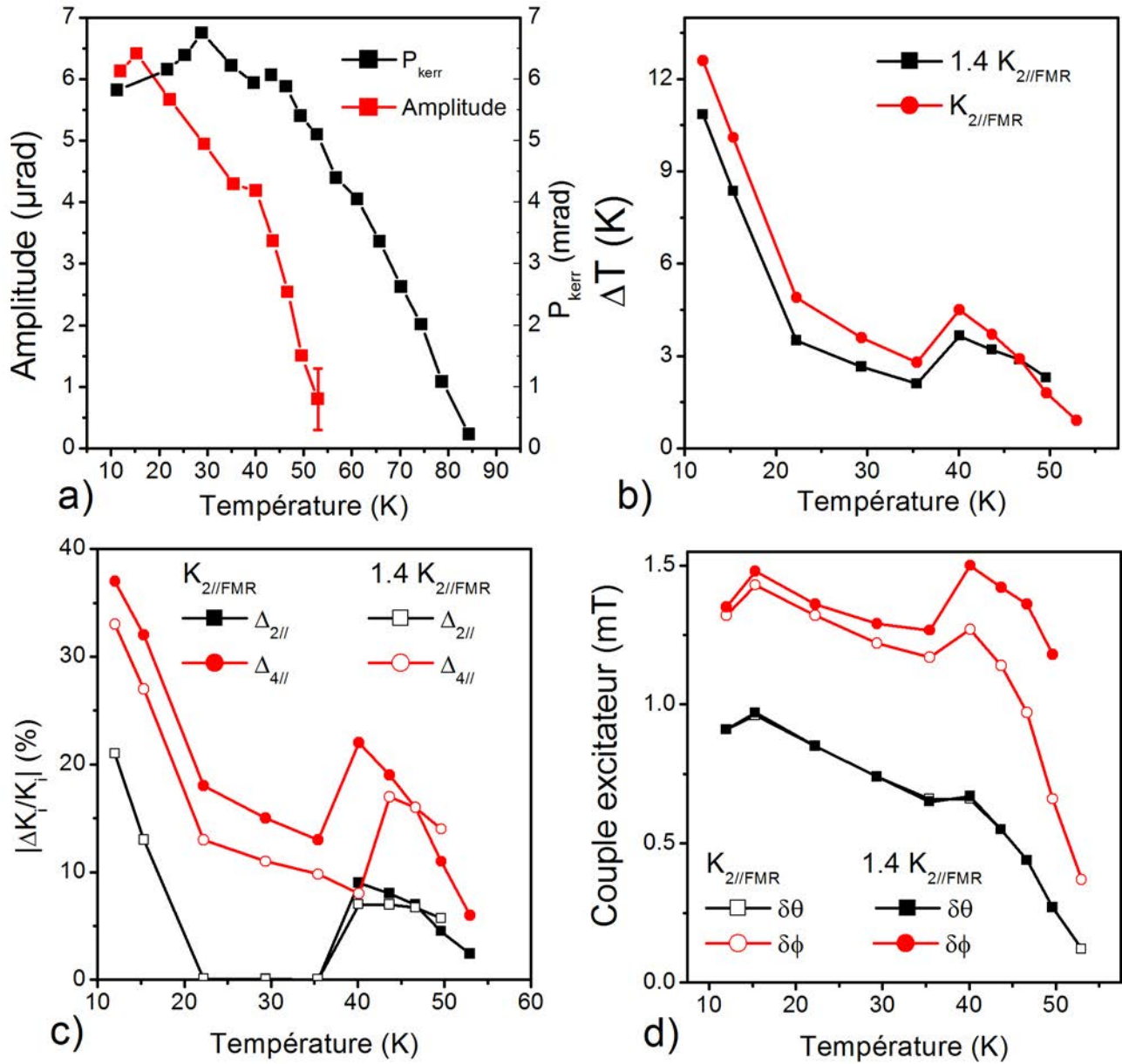


Figure 8.7: **a**: Evolution de l'amplitude A_1 et du coefficient P_{Kerr} en fonction de la température. **b**: élévation de température nécessaire afin de reproduire les amplitudes de **a** en fonction de la température. **c**: Variation des constantes d'anisotropies en fonction de la température pour le ΔT mesuré en **c**. **d**: calcul des couples excitateurs s'appliquant sur $\delta\theta(t)$ (X_0) et sur $\delta\phi(t)$ ($X_0\sqrt{\frac{F_{\theta\theta}}{F_{\phi\phi}}}$).

Echantillon : $Mn_7P_{4.3}$; polarisation pompe et sonde $\parallel [100]$

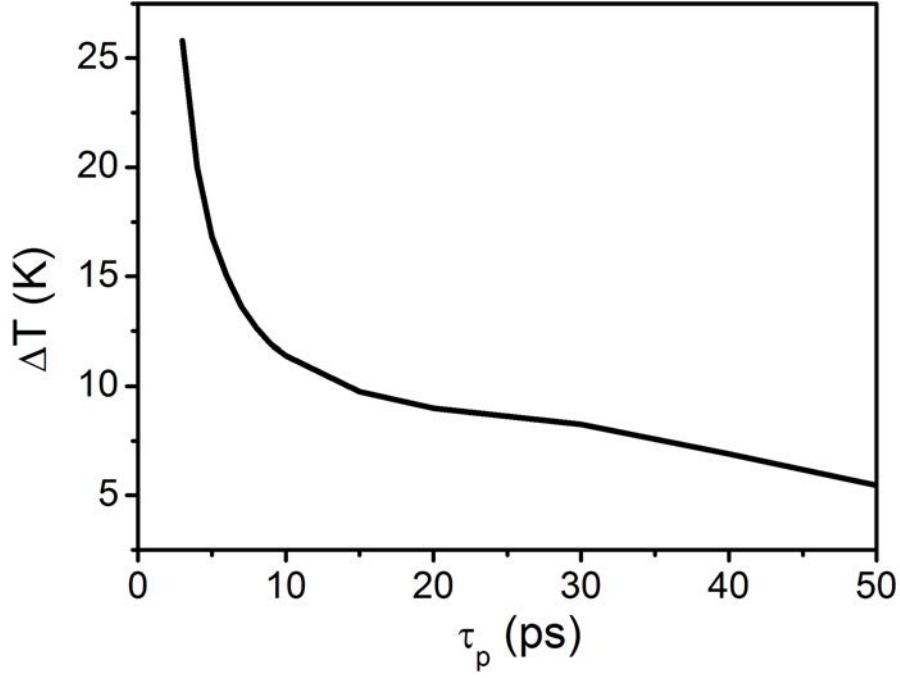


Figure 8.8: Variation de ΔT en fonction de τ_P sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ avec une température de base de 12 K

$$\begin{aligned}
 \delta\phi(t) &= \gamma X_0 \sqrt{\frac{F_{\theta\theta}}{F_{\phi\phi}}} \frac{-\omega_0 e^{-t/\tau_P} + \omega_0 \cos \omega_0 t - \frac{1}{\tau_P} \sin \omega_0 t}{\frac{1}{\tau_P^2} + \omega_0^2} \\
 \delta\theta(t) &= -\gamma X_0 \frac{-\frac{1}{\tau_P} e^{-\frac{t}{\tau_P}} + \frac{1}{\tau_P} \cos \omega_0 t + \omega_0 \sin \omega_0 t}{\frac{1}{\tau_P^2} + \omega_0^2}
 \end{aligned} \tag{8.13}$$

Notons que dans l'Eq. 8.13, dans le cas d'une excitation infiniment courte c'est à dire une fonction de Dirac, on se retrouve avec $\delta\theta(t)$ et $\delta\phi(t)$ en quadrature. Dans la littérature sur (Ga,Mn)As, cette dépendance est souvent considérée ([199] ou [125] par exemple) sans justification et nous en voyons ici l'hypothèse fondamentale.

... reliée à une élévation impulsionnelle de la température

La variation transitoire de température ΔT , la variation impulsionnelle des constantes d'anisotropies ($\Delta_{i||}$) ainsi que les couples excitateurs s'appliquant sur $\delta\theta(t)$ (X_0) et sur $\delta\phi(t)$ ($X_0 \sqrt{\frac{F_{\theta\theta}}{F_{\phi\phi}}}$) résultant de la modélisation des amplitudes sont portées dans les Fig. 8.7b, c et d respectivement. Dans un premier temps, nous avons considéré $\tau_P = 5$ ps.

On observe que la variation de température ΔT est très forte pour les basses températures, de l'ordre de 15 K et diminue pour donner une élévation de quelques K vers 50 K (Fig. 8.7b). Les variations des constantes d'anisotropies données par les $\Delta T(T)$ sont, elles, très importantes, de l'ordre de 40 % pour $K_{4||}$ à basse température, et de 20 % pour $K_{2||}$ (Fig. 8.7c). L'évolution est de plus fortement non monotone et ainsi vers 30 K, l'excitation n'est plus due qu'à une variation de $K_{4||}$ d'une vingtaine de % et la variation de $K_{2||}$ est nulle. L'amplitude des couples excitateurs est de l'ordre de 1 mT à basse température, le couple s'appliquant sur $\delta\phi$ est toujours plus fort que celui sur $\delta\theta$ avec un rapport évoluant à cause de la dépendance en $\sqrt{\frac{F_{\theta\theta}}{F_{\phi\phi}}}$. Toutefois,

l'amplitude des deux couples excitateurs ne fait que diminuer en fonction de la température (excepté vers 40 K avec une légère augmentation). Soulignons ici que ce type d'analyse n'ayant jamais été réalisé auparavant, aucun élément de comparaison ne peut être donné par rapport à la littérature. La seule analyse se rapprochant de celle décrite ici est celle de Kobayashi *et al.*[91] qui ont calculé une amplitude de champ excitateur dont on commentera plus loin la valeur par rapport à celles déduites ici.

Le paramètre important pour la détermination de ΔT est la valeur de τ_P , la durée caractéristique de l'excitation. Physiquement, celui-ci représente un temps transitoire d'élévation de la température du bain de phonons suite aux interactions électrons-phonons. Reprenons l'Eq. 8.13. Dans le cas où $\frac{1}{\tau_P} \gg \omega$, l'amplitude des oscillations sur $\delta\theta(t)$ aux temps longs est donnée par $\gamma X_0 \tau_P$. Plus τ_P sera petit, plus la variation de température devra être importante pour rendre compte de l'amplitude observée et inversement pour des τ_P grands (voir Fig. 8.8 à T=12 K). Notre excitation se faisant sur des temps courts, on peut voir que les ΔT sont impactés de quelques degrés Kelvin suivant la valeur de τ_{down} mais l'ordre de grandeur est conservé. Dans notre cas nous avons considéré un temps de 5 ps ce qui est un peu plus que les mesures de Patz *et al.* [135] qui avaient mesuré un temps de relaxation trou-électron de 2 ps. L'évolution en température de ce temps n'est pas pris en compte et nous verrons plus loin que ces approximations sont raisonnables.

Mesure de la chaleur spécifique

Nous pouvons tirer de la valeur de ΔT une estimation de la chaleur spécifique que l'on va comparer avec la littérature ce qui apportera une justification de l'ordre de grandeur de ΔT et donc de τ_P . L'évolution de ΔT illustre bien que c'est l'excitation en elle-même qui est de moins en moins efficace lorsque la température varie. L'élévation de température peut s'exprimer comme :

$$\Delta T = \frac{E_P}{\rho C_p V} \quad (8.14)$$

où E_p est l'énergie déposée par chaque impulsion laser dans le volume V, C_p la chaleur spécifique massique et ρ la masse volumique. On fera les approximations grossières suivantes : toute l'énergie apportée par l'impulsion laser est transférée au réseau (et donc en chaleur); le temps caractéristique de l'élévation de température ΔT est court durant le temps caractéristique de diffusion dans le substrat ; la chaleur spécifique de la couche de (Ga,Mn)(As,P) est la même que celle de GaAs. En supposant une tache de focalisation gaussienne avec w le rayon à $1/e^2$ et un profil exponentiel d'absorption avec un coefficient d'absorption α_{abs} , on obtient :

$$C_p(\Delta T) = \frac{2P\tau_L(1-R)\alpha_{abs}}{\rho\pi w^2(1-\frac{1}{e})} \frac{1}{\Delta T} \quad (8.15)$$

avec R représentant la réflectivité à $\lambda=700$ nm (0.3 en prenant celle du GaAs [20]), τ_L la période de répétition du laser (13.2 ns), et P la puissance mesurée au Wattmètre avant l'échantillon (1 mW) (le facteur 2 tient compte de la modulation du signal). Le résultat du calcul est porté sur la Fig. 8.9. Les valeurs de C_p déduites sont tout à fait en accord avec celles de la littérature (voir Blakemore *et al.*[20] pour le GaAs) ce qui confirme que les propriétés thermiques pilotant

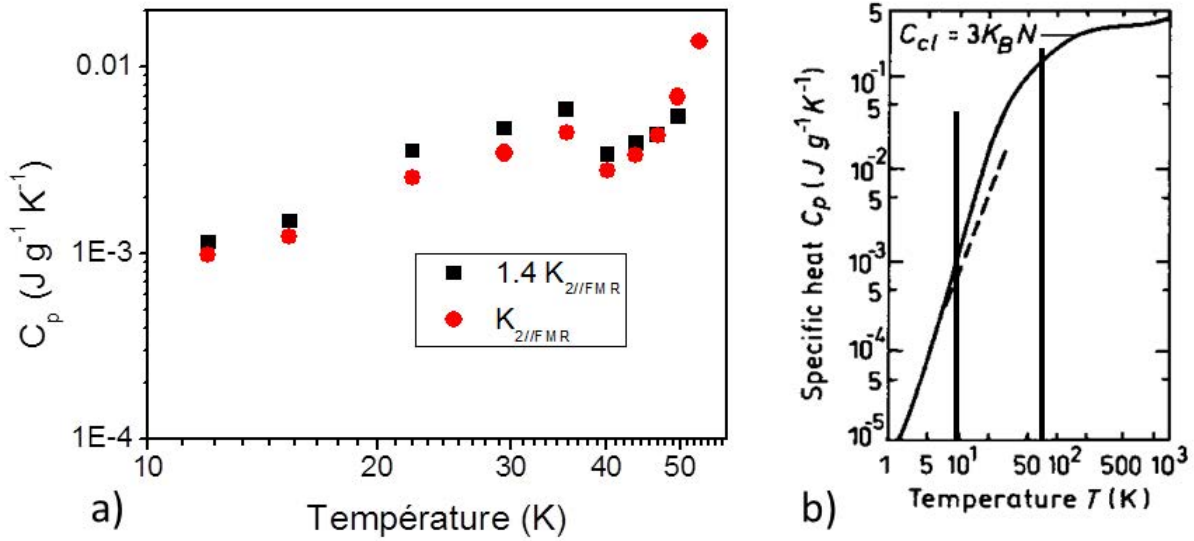


Figure 8.9: **a** Chaleur spécifique en fonction de la température déduites en utilisant les ΔT de la Fig. 8.7c. **b**: chaleur spécifique dans le GaAs (source Blakemore *et al.* [20])

notre système sont plutôt celles du GaAs. Citons également le papier de Yuldashev *et al.* [213]⁵ et de Jaworski *et al.* [76] présentant des valeurs de C_p pour (Ga,Mn)As ayant des valeurs peu différentes de GaAs [20].

C_p étant du bon ordre de grandeur par rapport à la littérature, on en déduit que les ΔT obtenus le sont également ce qui valide notre modèle d'excitation par variation des constantes d'anisotropie ainsi que la durée d'excitation $\tau_P = 5 \text{ ps}$ et les $\Delta_{i\parallel}$ trouvés. En utilisant $M(T)$, $\phi_0(T)$, $K_{i\parallel}(T)$ avec X_0 on trouve une amplitude du champ exciteur de 1.2 mT.

On peut comparer ce résultat aux champs trouvés par Kobayashi *et al.* [90]. Ces derniers avaient considéré empiriquement un champ effectif exciteur $\vec{H}_{\text{eff}} = (H_0, 0, H_0 \theta(t))$ avec la composante $\vec{x}$ du champ alignée suivant l'aimantation permettant alors un désalignement de l'aimantation suivant y et z. La forme de ce champ est donc très différente de ce qui a été considéré par nous même ainsi que par Wang *et al.* [199] (mais pour une excitation en forme de Dirac) avec un champ exciteur suivant y et z.

Toutefois, même si ces derniers arrivent à reproduire leurs données avec $H_0 = 0.2 \text{ T}$, ce qui donne un champ dans le plan 200 fois plus élevé que les nôtres et un champ hors-plan de 2 mT. Seul le champ hors-plan peut être comparé au champ de nos analyses et celui-ci est du même ordre du grandeur. Par contre, la valeur élevée de leur champ dans le plan s'explique par son orientation suivant x, et non suivant y : à $t = 0$ l'aimantation étant alignée suivant x, puisque le champ suivant z est proportionnel à $\delta\theta(t)$ ($=0$ à $t=0$) le couple total produit par ce champ est proche de 0. Un très fort champ est donc requis pour créer un premier $\delta\theta(t)$ permettant de lancer la précession d'où la valeur de H_0 élevée. Toutefois, ces derniers observaient bien une diminution du champ exciteur en fonction de la température ce qui correspond à nos observations.

⁵Celle de Yuldashev *et al.* sont en désaccord avec la littérature mais nous supposons plus à une erreur d'unité qu'une vraie différence.

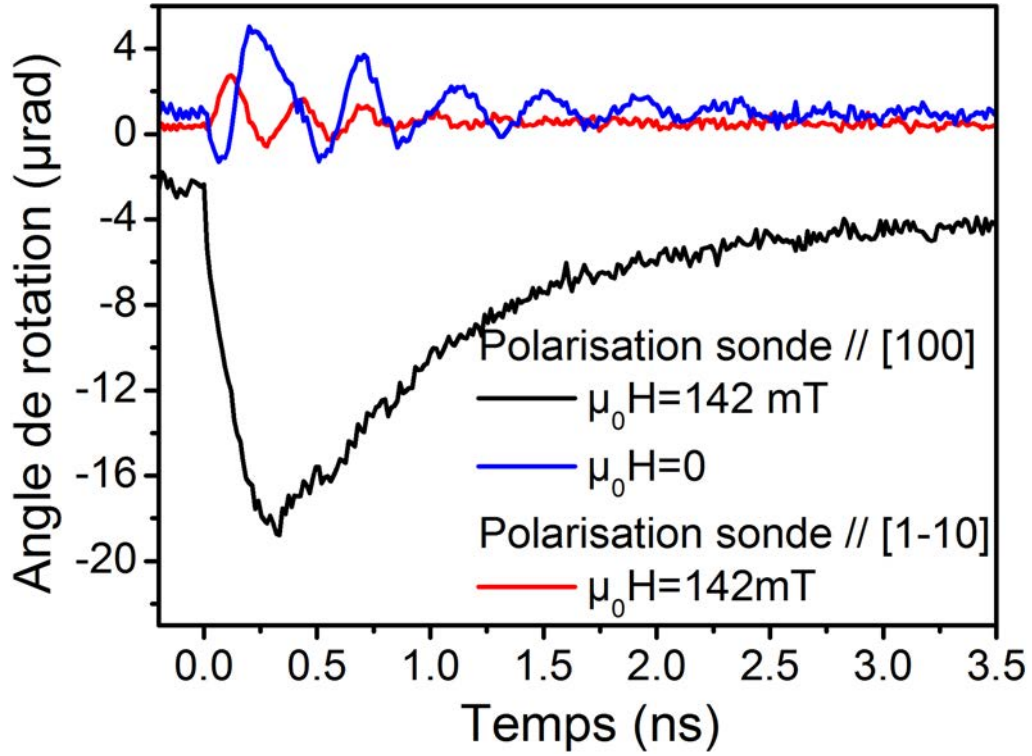


Figure 8.10: Effets de polarisation à fort champ magnétique.

Echantillon : $Mn_7P_{4.3}$; $T=12\text{ K}$; champ $\parallel [1-10]$

L'analyse que nous venons d'effectuer va donc un peu plus loin que les précédentes études dans $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$. Les études précédentes de Qi *et al.* [138] et Kobayashi *et al.* [90] avaient déjà argumenté sur une diminution de l'efficacité du couple exciteur sans relier celle-ci à une origine physique précise. Dans notre cas, nous précisons l'origine physique de l'excitation optique comme étant due à une variation des constantes d'anisotropies due à un ΔT transitoire, que nous avons quantifié en tenant compte d'une durée d'excitation compatible avec nos observations. Ce ΔT permet alors de remonter aux champs excitateurs produisant la dynamique.

8.3.2 Effets sous champ magnétique : l'influence de ϕ_0

Dans un cas très général, on peut se poser la question de quelle constante d'anisotropie varie le plus à l'excitation. Les expériences en température, quoique donnant des résultats satisfaisants, s'avèrent compliquées à analyser du fait de la dépendance en température des autres paramètres gouvernant l'excitation. On peut aussi se retrouver dans un cas de figure où $\Delta_{2\parallel} = \Delta_{4\parallel}$ ce qui entraînera l'absence d'excitation de la précession. Il existe donc des cas où une simple variation de température ne suffit pas pour l'étude de la dynamique de l'aimantation.

Une manière de simplifier le problème consiste à faire des expériences sous champ magnétique, en faisant varier son intensité et sa direction d'application. L'avantage est qu'en appliquant un champ avec une valeur ϕ_h , la condition d'équilibre de l'aimantation devient :

$$K_{2\parallel} \cos 2\phi_0 + K_{4\parallel} \cos 2\phi_0 \sin 2\phi_0 + \mu_0 H M_s \sin(\phi_0 - \phi_h) = 0 \quad (8.16)$$

L'excitation est toujours pilotée par X_0 mais avec ϕ_0 dépendant du champ magnétique. En

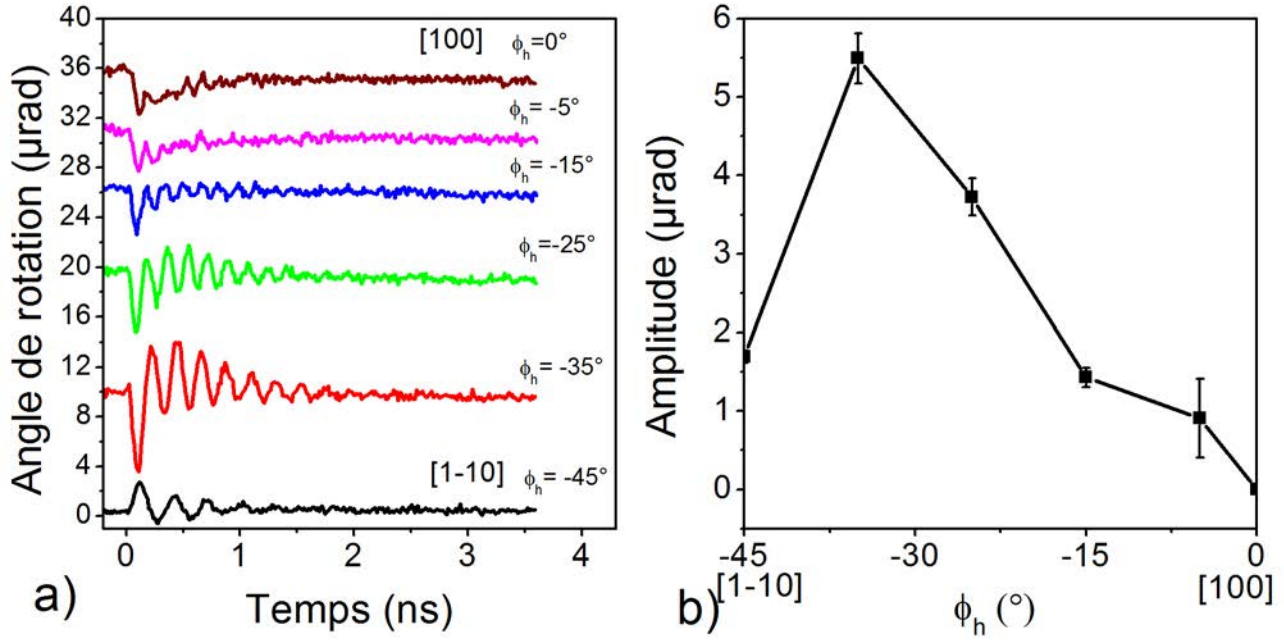


Figure 8.11: **a** : Signaux dynamiques en fonction de l'angle du champ. La polarisation a été ajustée afin de ne tenir compte que des effets de l'excitation. **b** : amplitude en fonction de l'angle du champ extraite de **a**.

Echantillon : $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; $F_{\text{pompe}} = 1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$; $F_{\text{sonde}} = 0.7 \mu\text{J cm}^{-2}$

conséquence, le champ va déséquilibrer les poids entre les couples $\Delta_{2\parallel} K_{2\parallel} F_{\phi K_{2\parallel}}$ et $\Delta_{4\parallel} K_{4\parallel} F_{\phi K_{4\parallel}}$. Ainsi, même si $\Delta_{2\parallel} = \Delta_{4\parallel}$, l'excitation peut être efficace. L'avantage est que l'on pourra parcourir librement les courbes décrites dans la Fig. 8.2 et remonter à la proportion entre les différents termes excitateurs sans avoir la connaissance de l'évolution précise des $K_i(T)$.

A condition de bien connaître tous les effets magnéto-optiques mis en jeu, et de remonter à $\delta\phi(t)$ et $\delta\theta(t)$, cette approche permettrait une étude quantitative de $\Delta_{2\parallel}$ et $\Delta_{4\parallel}$.

Dépendance angulaire de l'excitation optique

Dans les expériences en température, la position de l'aimantation n'est connue qu'indirectement par le biais d'une minimisation de l'énergie libre. Afin de lever l'inconnue de la position de l'aimantation, on applique un champ suffisamment fort pour aligner l'aimantation suivant le champ. Ceci nous permet alors à un ΔT fixé, de mettre en lumière le rôle de ϕ_0 . La position de l'aimantation étant désormais connue, on tourne le champ suivant ϕ_H et on enregistre les signaux dynamiques obtenus.

Afin de décorrélérer l'efficacité de l'excitation des effets magnéto-optiques, il est nécessaire d'ajuster la polarisation incidente β de sorte à conserver un angle $\beta - \phi_0$ constant. Un exemple est montré dans la Fig. 8.10 où le champ a été aligné suivant $[1-10]$. Lorsque on monte le champ de sorte à aligner l'aimantation suivant sa direction, on passe d'un signal où des oscillations sont visibles à un signal dominé par une courbe de forme exponentielle, attribuée à $\delta M_s/M_s$ et ne dépendant que de l'effet Voigt. Pour retrouver un signal magnéto-optique dépourvu d'effet Voigt, on réaligne la polarisation de la sonde suivant $[110]$, découplant ainsi les effets magnéto-

optiques de l'excitation.

Lorsque l'on tourne le champ, une manière de compenser les effets magnéto-optiques consiste à surveiller C^* (L'amplitude d'un fond exponentiel) et d'ajuster la polarisation sonde pour l'annuler. Cette procédure n'a néanmoins pas donné les effets escomptés. Lorsque l'on a tourné de 10 deg le champ magnétique, nous avons dû ajuster la polarisation de 45 deg. Ce résultat serait attendu si l'aimantation avait tourné de 45 deg, en contradiction avec ce que nous calculons en minimisant l'énergie FMR. Ensuite, aucun ajustement de la polarisation n'a été nécessaire.

Puisque nous ne sommes pas sûrs de notre procédure pour découpler les effets magnéto-optiques des effets d'excitation, nous nous contenterons ici d'une démonstration de principe même si l'essentiel du signal provient de $\delta\theta$.

Le résultat de cette expérience est néanmoins instructif et est présenté sur la Fig. 8.11a et b où un champ de 0.15 T a été appliqué. On a pris garde à ce que ce champ soit suffisant pour aligner l'aimantation suivant son axe pour toutes les valeurs en minimisant l'énergie libre. Cette procédure est réalisée simplement en appliquant un champ suffisamment fort suivant l'axe difficile à basse température. On peut constater que les amplitudes sont beaucoup plus faibles lorsque le champ appliqué est proche des axes cristallographiques. Le fait que les signaux ne s'annulent pas tout à fait est lié à la précision expérimentale de l'alignement du champ par rapport aux axes cristallographiques de l'échantillon. Cette expérience confirme donc le rôle essentiel de ϕ_0 dans l'excitation optique de manière directe.

Cette expérience est en parfait accord avec ce que l'on trouve dans la littérature, en particulier dans un Heusler de Co_2MnSi avec une anisotropie cubique où le même genre d'expérience en fonction de l'angle du champ a été effectué par Liu *et al.* [107]. De la dépendance en amplitude en fonction de l'angle du champ, Liu *et al.* prouvent que son excitation est bien provoquée par un changement des constantes d'anisotropie. Dans le cas de $(\text{Ga,Mn})\text{As}$, l'analyse est moins triviale car notre anisotropie magnétique a une composante uniaxiale.

Détermination du couple le plus efficace

L'expérience en fonction de l'angle du champ magnétique permet de fournir la démonstration que notre modèle fonctionne. Afin de déterminer un rapport entre $\Delta_{2\parallel}$ et $\Delta_{4\parallel}$, nous allons donc désormais mettre en pratique nos analyses sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ où ce rapport est connu et sur $\text{Mn}_{6.64}\text{P}_{6.64}$ où celui-ci ne l'est pas. En outre, cet échantillon possède la particularité de ne pas précesser à champ nul, alors que ϕ_0 n'est pas suivant un axe cristallographique. Une manière simple de faire consiste à appliquer sur ces échantillons un champ magnétique suivant [1-10] et [110].

La procédure pour la modélisation consiste à calculer la position de ϕ_0 en minimisant l'énergie libre, puis à calculer les couples appliqués à l'aimantation pour obtenir la dynamique ($\delta\theta(t)$ et $\delta\phi(t)$). Enfin on injecte ces quantités dans l'Eq. 8.9.

$\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$: Renforcement de la précession sous champ

Nous commencerons notre analyse par $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$. Les résultats ainsi que la modélisation sont représentés dans la Fig. 8.12. Comme on a pu commencer à le voir sur la Fig. 8.11, considérant que l'amplitude de la fréquence de précession est minimale lorsque l'on est suivant un axe

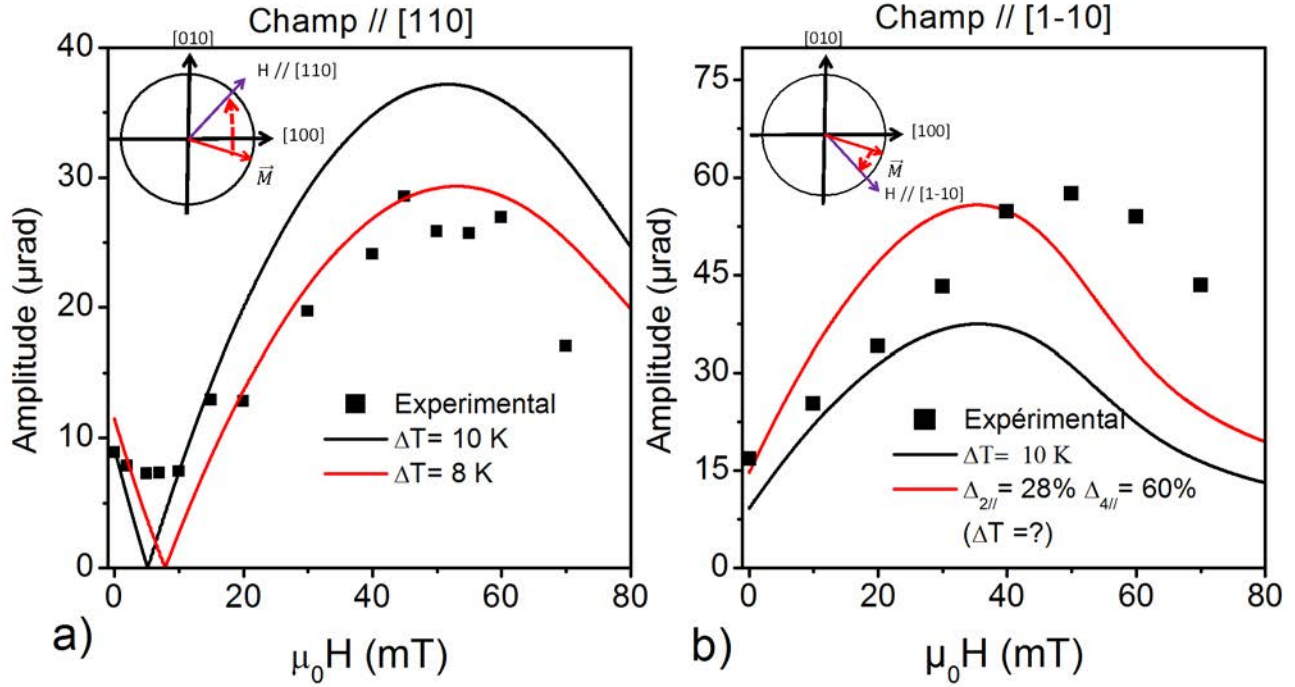


Figure 8.12: Amplitude du mode fondamental en fonction de la direction du champ ainsi que la modélisation associée **a** : champ // [110], **b** : champ // [1-10].

Echantillon : $\text{Mn}_{7.3}\text{P}_{4.7}$; $P_{\text{Voigt}} = 0.5 \text{ mrad}$; $P_{\text{Kerr}} = 7.1 - 1.16 \cos 2(\beta - \phi_0) \text{ mrad}$

cristallographique de type [100] ($\phi_0 = 0$), l'excitation optique s'explique alors par une faible valeur de $\Delta_{2||}$ et donc nous avons $\Delta_{4||} > \Delta_{2||}$ (cf l'Eq. 8.4).

Un raffinement supplémentaire de l'analyse peut être fait en regardant les données avec le champ appliqué suivant [110] (Fig. 8.12a). Dans ce cas, l'aimantation passe suivant [100] pour $\mu_0 H \approx 10 \text{ mT}$ ce qui fait passer l'amplitude du terme exciteur par un minimum. La position de ce minimum nous permet alors d'en déduire un rapport $\Delta_{4||}/\Delta_{2||}$. On trouve alors avec $1.4K_{2||\text{FMR}}$, $\Delta_{4||}/\Delta_{2||} = 2$ ce qui correspond aux précédentes analyses en fonction de la température.

Qualitativement, ces paramètres permettent de bien reproduire les courbes, néanmoins un meilleur accord quantitatif peut être trouvé avec $\Delta T = 8 \text{ K}$ pour le champ suivant [110], et pour le champ suivant [1-10] à des variations $\Delta_{4||} = 60\%$ et $\Delta_{2||} = 28\%$ ne permettant pas de remonter à un ΔT . Toutefois, en se référant à $\Delta_{4||}$, on aurait $\Delta T = 20 \text{ K}$. Ces valeurs sont raisonnablement dans la même gamme que celles trouvées précédemment, néanmoins aucune explication ne peut être donnée sur la raison d'une plus grande excitation lorsque le champ est aligné suivant [1-10].

Mn_{6.64}P_{6.64} : apparition de précession sous champ

Le même type d'analyse a été effectué sur $\text{Mn}_{6.64}\text{P}_{6.64}$. En n'appliquant aucun champ, nous n'observons aucune précession, ce qui va dans le sens d'un rapport $\Delta K_{4||}/\Delta K_{2||} \approx 1$. Néanmoins, un doute peut persister quant à la présence de domaines avec différentes orientations de $\vec{M}$ dans la tache de focalisation de la sonde donnant un signal dynamique moyen nul, même si le système est bien réinitialisé à chaque fois par l'application d'un champ suffisamment fort.

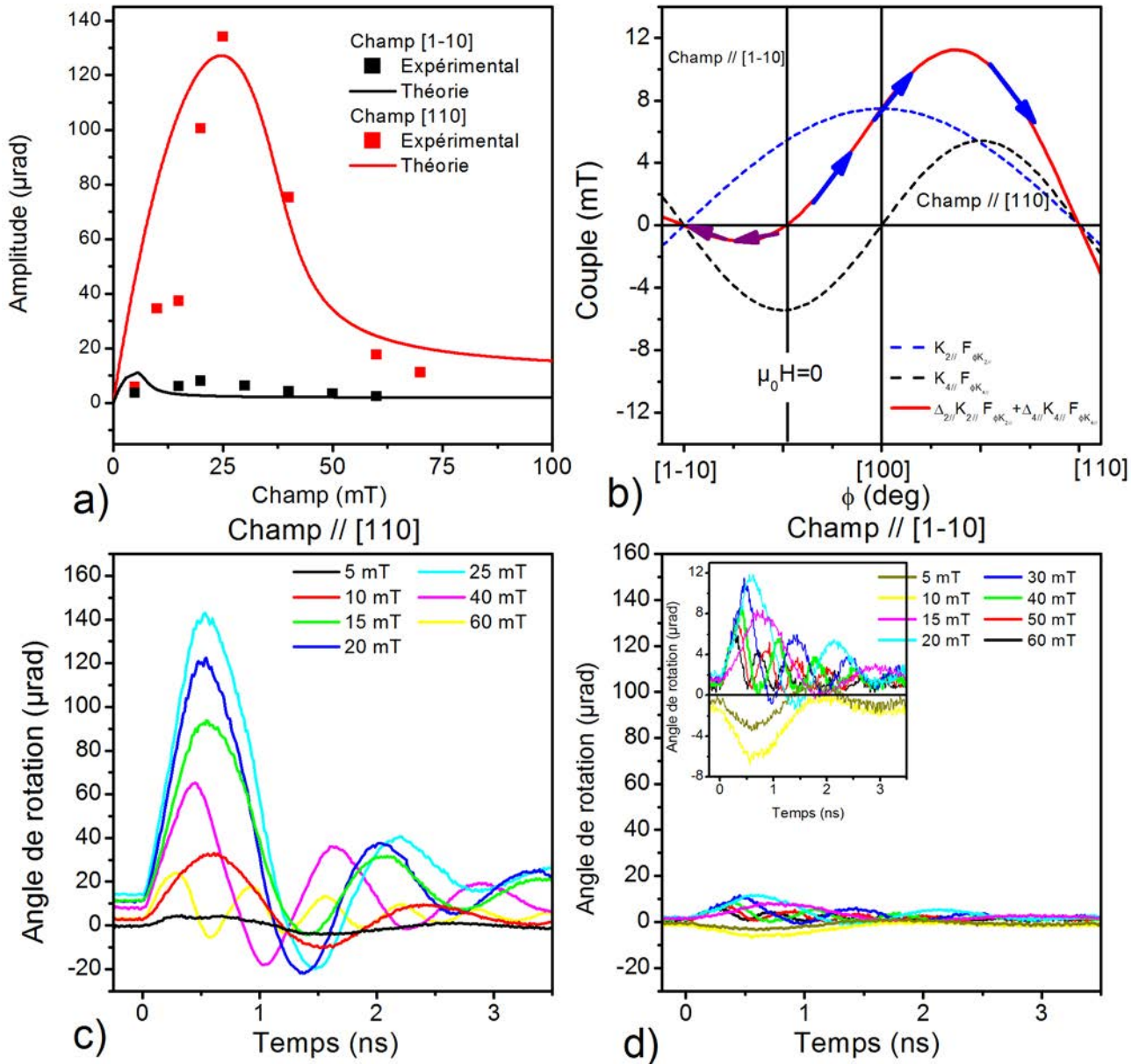


Figure 8.13: **a** : Amplitude expérimentale du premier mode d'onde de spin en fonction du champ pour deux directions du champ. Les symboles correspondent aux données expérimentales, les traits pleins aux courbes simulées. **b** : représentation des couples s'appliquant dans $Mn_{6.64}P_{6.64}$ ainsi que leur somme. Les flèches indiquent le sens de parcours de la somme des deux couples lors d'une augmentation du champ, suivant [1-10] (flèches ocre) ou suivant [110] (flèches noires). **c** : signaux expérimentaux pour un champ appliqué suivant [110]. **d** : signaux expérimentaux pour un champ appliqué suivant [1-10].

Echantillon : $Mn_{6.64}P_{6.64}$; $T=12$ K ; polarisation pompe : $\parallel[110]$; polarisation sonde $\parallel[100]$

Pour lever cette indétermination, on applique un champ suivant $[110]$ ou $[1-10]$. Pour le champ suivant $[1-10]$, les amplitudes restent très faibles en comparaison de celles pour un champ suivant $[110]$ (Fig. 8.13a, c et d). La différence est remarquable, allant jusqu'à un rapport 20 pour une même puissance de pompe.

Sur $\text{Mn}_{6.64}\text{P}_{6.64}$, l'angle d'équilibre ϕ_0 est environ de -20° (Fig. 8.13b). Qualitativement, lorsque l'on applique le champ magnétique suivant $[110]$, le fait que l'on ne voit qu'une augmentation signifie que contrairement à $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ $\Delta_{2\parallel}$ est non négligeable par rapport à $\Delta_{4\parallel}$ (Fig. 8.13b). Considérons maintenant un champ appliqué suivant $[1-10]$, la faiblesse des amplitudes ne peut s'expliquer qu'en considérant une compensation des couples $\Delta_{2,4\parallel} K_{2,4\parallel} F_{\phi K_{2,4\parallel}}$ (Fig. 8.13b). Ces deux éléments combinés font que l'excitation sur $\text{Mn}_{6.64}\text{P}_{6.64}$ ne peut s'expliquer qu'en considérant $\Delta_{2\parallel} \approx \Delta_{4\parallel}$, confirmant ainsi notre hypothèse de départ. Puisque nous ne connaissons pas les coefficients magnéto-optiques sur cet échantillon, nous ne pourrions pas aller plus loin dans notre analyse.

Le cas de $\text{Mn}_{6.64}\text{P}_{6.64}$ diffère grandement de celui de $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ en particulier à cause de sa faible anisotropie. Suivant les mesures FMR, il n'existe pas de ΔT tel que $\Delta_{2\parallel} = \Delta_{4\parallel}$. Les constantes sont donc probablement mal déterminées car trop faibles.

8.3.3 Conditions d'observation de l'effet des porteurs polarisés en spin

La bonne détermination des conditions d'observation des effets indépendants de la polarisation des porteurs permettent de mieux comprendre comment observer d'autres mécanismes d'excitation comme l'OSTT dépendant des porteurs polarisés en spin. L'observation de ces derniers a été beaucoup plus rare dans la littérature. L'étude la plus poussée a été réalisée uniquement par Nemec *et al.* [125].

Sur les nombreux échantillons que nous avons étudiés, seuls les échantillons de $(\text{Ga,Mn})\text{As}$ sans phosphore ont présenté des effets de la polarisation lumineuse, en particulier des différences $\sigma_{\pm}$ attestant d'un effet des porteurs polarisés en spin (OSTT). Nous n'avons en revanche pas été en mesure d'identifier de façon univoque l'effet de porteur non polarisé en spin (OSOT). En effet, à cause de la forte densité de porteurs des échantillons, nous n'attendions pas réellement à pouvoir observer la présence de l'OSOT. Cet mécanisme d'excitation requerrait plutôt des échantillons à faible densité de porteurs de sorte à avoir un $\Delta p/p$ non négligeable plus facilement, mais aussi un échantillon où une seule bande est occupée.

Lorsque l'on compare les amplitudes de précession des échantillons sans phosphore Mn_7P_0 et $\text{Mn}_{10.4}\text{P}_0$, on s'aperçoit que les amplitudes de la dynamique sont particulièrement faibles car l'axe facile à basse température est proche de $[1-10]$ réduisant alors considérablement les effets dus à des variations des constantes d'anisotropie. Les effets thermiques entraînant une variation impulsionnelle des K_i étant réduits, on devient sensible à d'autres effets comme l'OSTT.

L'OSTT dépendant de la polarisation des électrons et non des trous, la présence de ce dernier est possible même en présence d'échantillons à forte densité de porteurs. Les observations que nous avons réalisées font écho à l'étude de Nemec *et al.*. Dans cette étude, les auteurs ont réussi à faire apparaître des effets en fonction de la polarisation en changeant les contraintes de leurs échantillons par le biais d'un transducteur piézoélectrique, renforçant artificiellement l'anisotropie uniaxiale. Cette approche est équivalente à avoir un échantillon à forte anisotropie uniaxiale naturellement : le seul paramètre important est donc la valeur de ϕ_0 . Partant de

cette hypothèse, une solution plus facile pour étudier les effets de la polarisation des porteurs, consisterait alors à appliquer un champ de sorte à orienter l'aimantation suivant [1-10].

8.3.4 Conclusion

Ce type d'analyse permettant de remonter quantitativement à l'effet d'une excitation optique est à notre connaissance la première tentative dans (Ga,Mn)As . Qualitativement, cet effet avait été compris par Nemec *et al.* [183] mais sans modélisation. La détermination aussi bien qualitative que quantitative des $\Delta_{i\parallel}$ semblent donner des résultats satisfaisants vis à vis des propriétés physiques déduites, par rapport à ceux trouvées dans la littérature.

Un autre point se dégageant de ces analyses est l'importance de ϕ_0 permettant d'obtenir de fortes amplitudes à l'instar d'un bras de levier, pour une même excitation. En appliquant un champ magnétique, on est alors capable d'induire des amplitudes de précession plus fortes. On peut imaginer alors qu'en se plaçant là où l'on a un maximum d'effet, l'augmentation de la puissance de la pompe permettrait d'augmenter encore plus les amplitudes, permettant d'atteindre plus facilement d'autres régimes de dynamique.

8.4 Excitation optique et effets de la pompe

Les sections précédentes portaient sur des effets subtils de température transitoire ou position de ϕ_0 permettant d'obtenir une excitation efficace et ce sans avoir à augmenter la fluence. Dans cette partie nous allons tester la réponse du système magnétique en maintenant une température de consigne de 11.5 K, sans champ magnétique mais en faisant varier la fluence de la pompe. Dans un premier temps, nous étudierons les élévations en température induites par la pompe et nous les comparerons aux résultats de la partie II, chapitre 5. Puis nous nous intéresserons à l'influence de la fluence sur l'excitation. Ces expériences sont les plus compliquées à analyser et à comprendre et pour le moment nous ne délivrons que des débuts d'explication obtenus à partir de la compréhension des expériences à basse fluence de pompe.

8.4.1 Fluence de la pompe

Lorsque nous nous sommes intéressés aux effets stationnaires (partie II, chapitre 5), nous avons déjà mis en évidence qu'augmenter la fluence de la pompe revenait à augmenter la température stationnaire de notre système magnétique. En dynamique, l'augmentation de la puissance de la pompe entraînera également une évolution des $\Delta_{2,4\parallel}$, ainsi que des ΔT et $\delta M_s/M_s$ plus important.

Nous avons étudié principalement la dynamique en fonction de la fluence sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4,3}$ avec une polarisation de la sonde alignée suivant l'aimantation à basse température. Nous avons porté dans la Fig. 8.14 l'ensemble des courbes qui seront discutées par la suite.

Détermination de la température de base de la dynamique

Précédemment nous avons évalué la température stationnaire de notre système grâce aux amplitudes et champs coercitifs des cycles Voigt (méthode "statique"). Ici, nous allons utiliser une méthode "dynamique" plus répandue dans la littérature consistant à mesurer les fréquences de précession à basse fluence de pompe, en fonction de la température (Fig. 8.15a), et à température fixe en fonction de la fluence de la pompe (Fig. 8.15b). Nous comparerons directement chacune de ces variations afin d'en déduire une température effective. Cette expérience a été

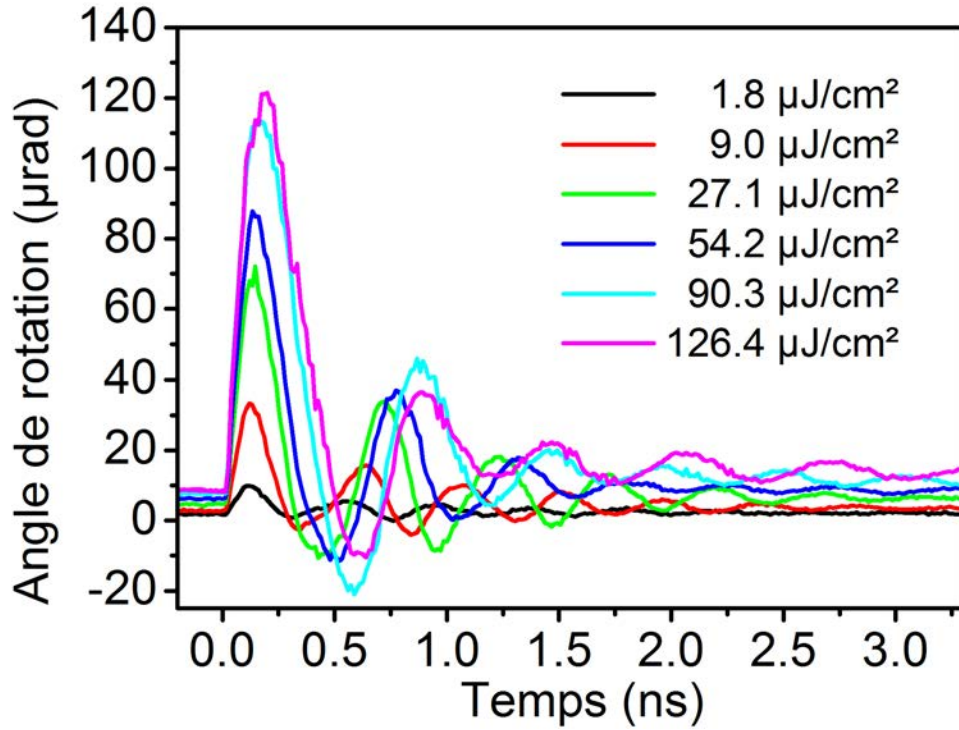


Figure 8.14: Dynamique en fonction de la fluence de la pompe sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$.

$T = 12 \text{ K}$; polarisation pompe $\parallel [110]$; polarisation sonde $\parallel [100]$.

réalisée à $\lambda = 700 \text{ nm}$ et $\lambda = 770 \text{ nm}$. L'intérêt de cette méthode est de savoir si en sondant une température effective nous pouvons être sensibles aux effets de température transitoire. Le deuxième intérêt est de pouvoir comparer les résultats des deux méthodes.

Sauf à forte fluence aux temps courts (0-200 ps), la fréquence de précession n'évolue pas avec le temps sur 4 ns ce qui indique une température qui ne change pas dans cette fenêtre. A $\lambda = 700 \text{ nm}$ (Fig. 8.15a et b), on peut constater que les fréquences diminuent en fonction de la fluence comme en fonction de la température, ce qui rejoint nos observations par la méthode statique.

De ces deux courbes on peut déduire une température effective en fonction de la fluence (Fig. 8.15c et d). La Fig. 8.15d montre également la variation de température en fonction de la fluence pour la pompe à $\lambda = 770 \text{ nm}$. Les fréquences de précession étant une propriété magnétique, indépendante des effets optiques, nous avons utilisé la variation des fréquences en fonction de la température à $\lambda = 700 \text{ nm}$ pour obtenir cette courbe.

Sur la Fig. 8.15c, on peut noter que l'augmentation en température est fortement sous-linéaire comme ce que nous avons déjà observé pour la calibration température-fluence à l'aide des cycles Voigt (voir chapitre 5). Les élévations de températures sont comparables entre les expériences "statique" et "dynamique" ce qui signifie que nous n'observons qu'un effet d'élévation stationnaire de la température.

Quantitativement, on peut observer de légères différences entre les courbes par méthode statique et dynamique à 700 nm . Tout d'abord, la pente à l'origine est moins forte en dy-

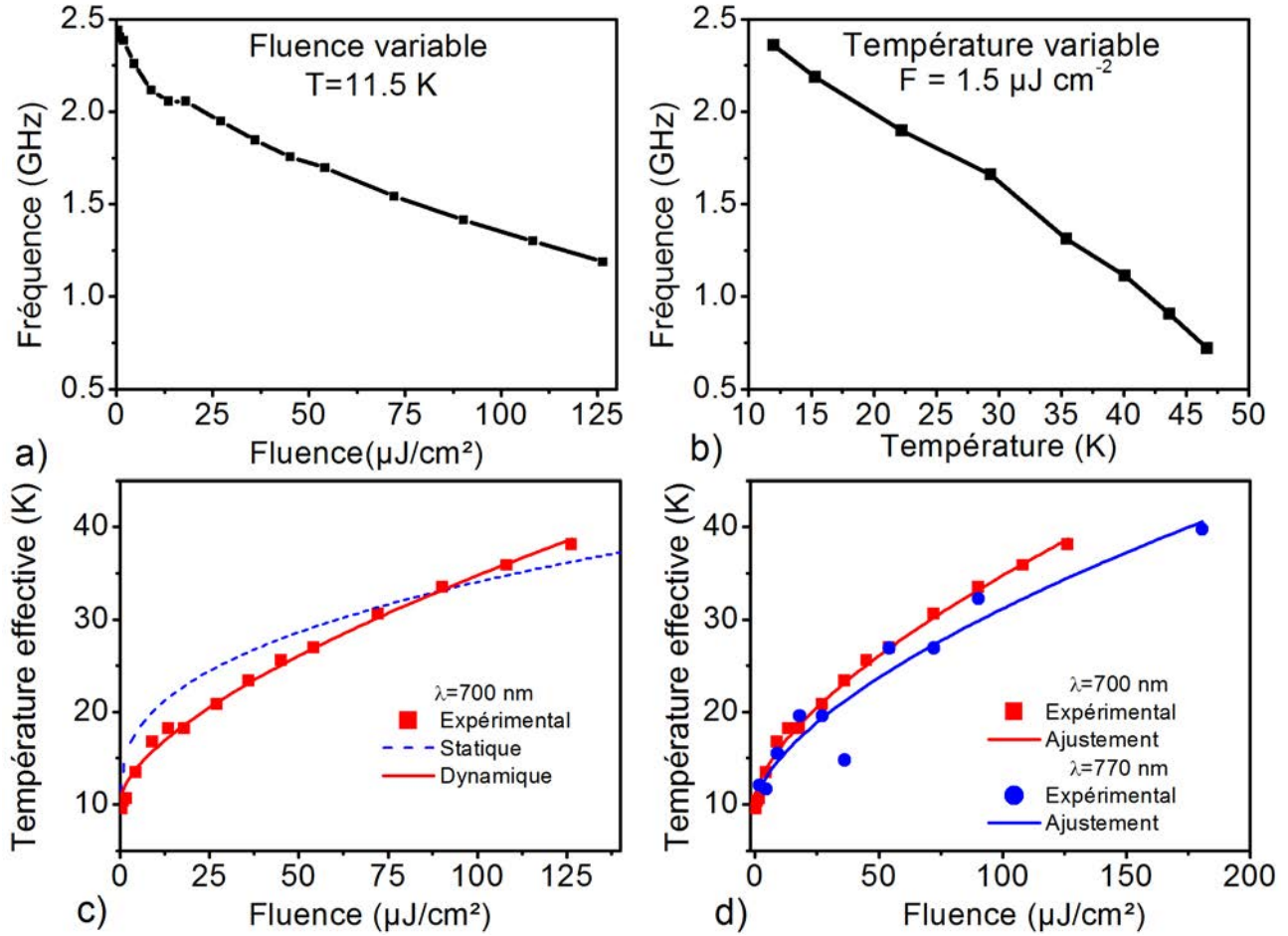


Figure 8.15: **a** : fréquence de précession en fonction de la fluence de la pompe à $\lambda=700$ nm. La fluence de la sonde a été diminuée pour les points à très faible fluence afin d'avoir $F_{\text{pompe}} > F_{\text{sonde}}$. **b** : fréquence de précession en fonction de la température à basse fluence pompe et sonde. **c** : comparaison entre les températures effectives de l'échantillon en fonction de la fluence de la pompe à 700 nm déduite par méthode "stationnaire" (courbe en pointillé) et "dynamique". Les carrés représentent les données, le trait plein l'ajustement par une fonction allométrique. **d** : comparaison entre les élévations de température déduites par méthode dynamique pour un faisceau pompe à $\lambda=700$ nm et $\lambda=770$ nm.

Echantillon : $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; Température de consigne : $T=12$ K

λ	a_1	a_2
Méthode statique		
700 nm	4.08	0.38
Méthode dynamique		
700 nm	1.25	0.64
770 nm	0.96	0.66

Figure 8.16: Paramètres pour les ajustements des températures effectives en fonction de la fluence de la pompe. L'ajustement a été réalisé sur une fonction allométrique de type $T_{\text{eff}}(F) = T_0 + a_1 F^{a_2}$.

namique qu'en statique. Ensuite, l'effet de saturation de l'augmentation de température est plus faible dans les courbes issues de la dynamique. De plus, si les courbes statiques ressemblaient à une première augmentation linéaire suivie d'une saturation, les courbes dynamiques quant à elles présentent une variation en forme de loi de puissance. En fait, on peut ajuster

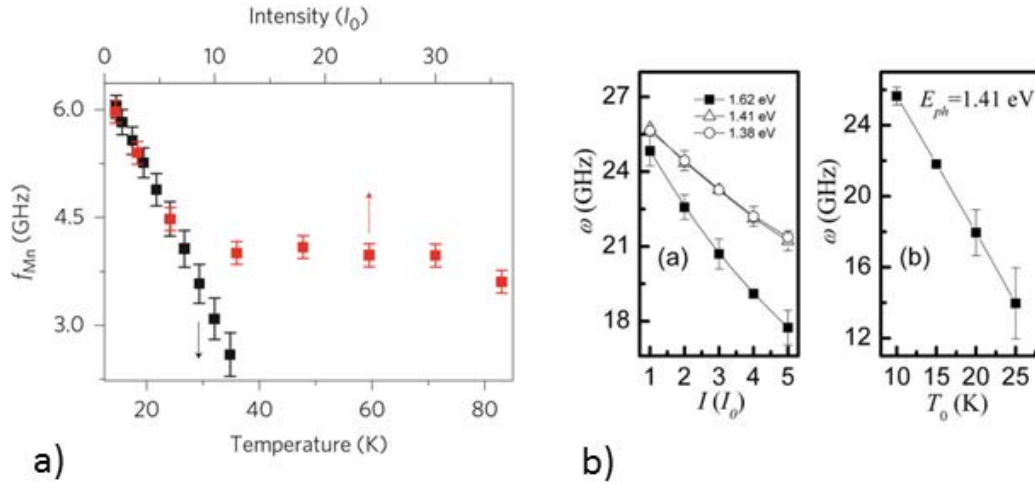


Figure 8.17: Fréquences en fonction de la fluence de la pompe et de la température. Ref **a** Tesarova *et al.* [182], **b** : Qi *et al.* [138]. **a**: $I_0 = 7 \mu\text{J cm}^{-2}$, $\lambda = 756 \text{ nm}$; **b** $I_0 = 0.75 \mu\text{J cm}^{-2}$ (**b** et **a**: $T = 10 \text{ K}$, $\lambda = 770 \text{ nm}$; 838 nm et 898 nm)

chacune de ces courbes par une fonction empirique allométrique, $T_{\text{eff}}(F) = T_0 + a_1 F^{a_2}$ en forme de loi de puissance de manière satisfaisante. Les paramètres pour chaque type d'ajustement sont résumés dans la table 8.16. Les différences entre les paramètres sont probablement dus à une thermalisation différente de l'échantillon dans les deux expériences.

De la même manière que précédemment (voir chapitre 5), en augmentant la longueur d'onde ($\lambda = 770 \text{ nm}$) pour se rapprocher de l'énergie correspondant à la largeur de la bande interdite ($E_g \approx 1.51 \text{ eV}$), on continue de voir des augmentations non négligeables de température alors qu'on s'attendrait à réduire de manière importante ces effets par diminution de l'absorption. Cette observation va à l'encontre des justifications données par le groupe de Zahn *et al.* [214], où ces derniers assuraient réduire grandement les effets thermiques en travaillant à grande longueur d'onde ($\lambda = 800 \text{ nm}$).

Qualitativement la calibration température-fluence par la méthode stationnaire confirme celle de la méthode dynamique.

Discussion

Dans la littérature, les élévations en température sont obtenues de façon similaire à la méthode "dynamique", la méthode "stationnaire" n'ayant jamais été utilisé dans (Ga,Mn)As à notre connaissance. On peut comparer les élévations en température obtenues avec celles de Nemec *et al.* [182] et Qi *et al.* [138].

Dans le cas de Qi *et al.* [138] (Fig. 8.17b), les auteurs travaillent à très faible fluence de pompe (maximum $3.75 \mu\text{J cm}^{-2}$). Une variation linéaire en température est visible avec une pente de $2.6 \text{ K}/\mu\text{J cm}^{-2}$ ce qui à leur fluence donne une élévation de 10 K à 770 nm . Lorsque l'énergie de l'excitation devient inférieure à la largeur de la bande interdite ($E_g = 1.51 \text{ eV}$), les élévations deviennent plus faibles avec une pente de $1.3 \text{ K}/\mu\text{J cm}^{-2}$ ce qui à leurs fluences correspond à une élévation de 5 K au maximum. Ces mesures sont compatibles avec nos observa-

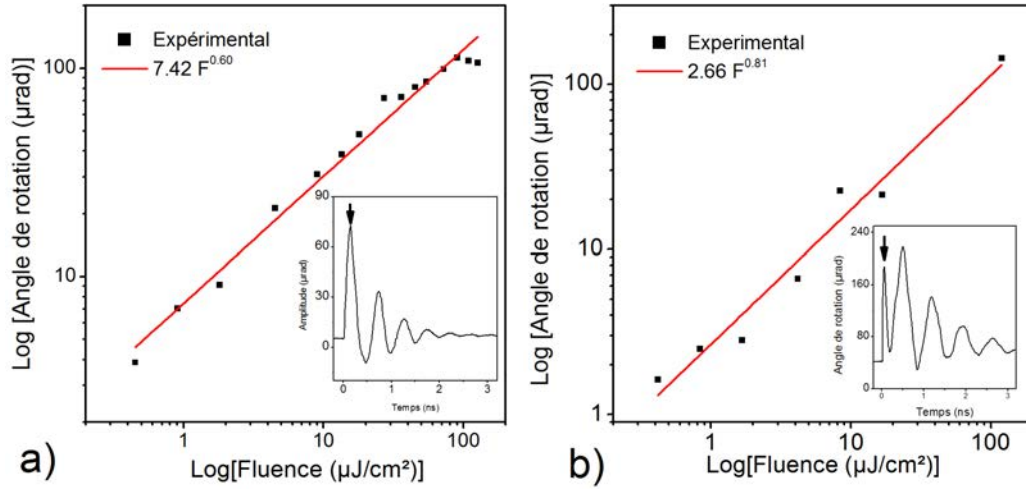


Figure 8.18: Amplitude à un temps fixe correspondant au premier pics des courbes (flèche sur les graphiques en encart), en fonction de la puissance. Les symboles représentent les points expérimentaux, les traits plein les ajustement par une loi puissance.

a : Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; **b** : Echantillon $Mn_7P_{2.6}$. Polarisation sonde $\parallel [100]$ et $F_{sonde}=0.7 \mu J cm^{-2}$ dans les deux cas

tions lorsque l'on fait varier la longueur d'onde. Lorsque l'on se rapproche de la bande interdite, l'absorption diminue ainsi que les effets de relaxation en énergie responsables de l'émission de phonons incohérents. Ainsi l'élévation de température est moins importante. Notons qu'aucun phénomène de saturation de ΔT avec F n'a été observé ici, leurs $F_{max}=3.75 \mu J cm^{-2}$ étant bien inférieure à la nôtre.

Tesarova *et al.* [182] (Fig. 8.17a) ont travaillé avec des fluences de pompe deux fois plus élevées que celles que nous utilisons, à $\lambda=756 nm$. Leurs courbes ressemblent plus à ce que nous avons obtenu par la méthode stationnaire, avec deux régimes clairement distinguables. Le premier régime a une pente de $0.28 K/\mu J cm^{-2}$ soit plus faible que les résultats de la Fig. 8.15. Le deuxième régime commence à $50 \mu J cm^{-2}$, la hausse de température reste constante avec une élévation de $11.7 K$ par rapport à la valeur sans pompe, soit un peu plus faible que ce que nous avons trouvé.

Ces différentes mesures sont plutôt en accord avec ce que nous mesurons avec des élévations en température du même ordre de grandeur. Les différences peuvent être principalement dues à des paramètres thermiques quelque peu différents (collage de l'échantillon, travail dans un gaz d'He).

8.4.2 Amplitude et amortissement

L'étude en fonction de la fluence de la pompe a également porté sur l'évolution de l'amplitude de la précession, de l'amortissement ainsi que de l'amplitude d'un fond exponentiel.

8.4.3 Augmentation de l'amplitude des ondes de spin

On peut constater que plus on augmente la puissance de la pompe, plus les amplitudes des ondes de spin augmentent. Nous regardons principalement l'effet Kerr polaire ; les oscillations ob-

servées représentent plus particulièrement le $\delta\theta(t)$. On peut aisément observer sur nos courbes Fig. 8.14 ou encore de façon plus nette sur Fig. 6.7, qu'une sorte de pic pousse au temps court. Celui-ci se comprend grâce à l'Eq. 8.13 ou encore grâce à l'Eq. 8.1 où l'on voit que le couple principal de l'excitation optique s'applique sur $\delta\theta$.

Afin de mieux mettre en évidence ce phénomène, plutôt que de porter l'amplitude des oscillations issues d'un ajustement pouvant être parfois approximatif (Fig. 8.19), on peut regarder les signaux bruts du premier pic pour lesquels on a retiré la partie aux temps négatifs agissant comme un offset. Cette approche permet de mieux approcher les courbes expérimentales lorsque qu'aucun ajustement correct n'a pu être réalisé et suppose que la position de ce pic maximum ne dépend pas de la puissance, ce qui est plutôt bien vérifié expérimentalement (cf Fig. 6.7 par exemple). Le résultat du traitement est porté sur la Fig. 8.18 pour $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ et $\text{Mn}_7\text{P}_{2.6}$ avec une échelle logarithmique.

On peut constater que l'amplitude de l'excitation en fonction de la puissance de la pompe varie comme une loi puissance et ce de façon plus ou moins universelle sur nos échantillons. Contrairement aux fréquences de précession qui vont plutôt représenter la température stationnaire du système, ce premier pic va représenter l'amplitude du couple que l'excitation va imposer au système. Si on considère l'équation de la chaleur avec le terme source, les coefficients thermiques sont tels que l'on peut considérer que l'établissement de la température est presque instantanée. Nous nous heurtons toutefois au fait que nous connaissons mal les constantes de temps relatives à l'excitation, celle-ci pouvant varier en fonction de la puissance. Par exemple, en supposant un temps d'excitation très court constant en fonction de la fluence, dès $10 \mu\text{J cm}^{-2}$ on arrive à des ΔT dépassant la T_c (85 K) ce qui ne semble pas raisonnable.

Les variations telles qu'on peut les observer sont cohérentes avec ce que l'on peut retrouver dans la littérature sur (Ga,Mn)As. Citons en particulier l'étude de Zahn *et al.* [214] où même si les auteurs n'ont pu observer des ondes de spins, l'amplitude en fonction de la fluence possède exactement les mêmes caractéristiques que celles présentées ici même avec une saturation de l'excitation optique. La différence entre Zahn *et al.* et nous étant simplement que les auteurs travaillent à des fluences 1000 fois plus forte que nous. D'autres comme Nemec *et al.* [184] ou encore Qi *et al.* ont pu trouver le même genre de résultat. En particulier Qi *et al.* ont interprété la présence d'un plateau à forte puissance de pompe comme étant due à un réaligement de l'aimantation suivant un axe de type [1-10]. Ce dernier point interdirait toute excitation par variation des constantes d'anisotropies ce qui indiquerait alors un autre processus d'excitation.

Temps d'excitation variable?

Un indice nous permettant de dire que le temps d'excitation varie en fonction de la puissance est donné par le fond exponentiel. Lors de nos précédentes études, nous avons identifié l'origine de ce fond exponentiel à $\delta M_s/M_s$ (C^*), un terme variant en $\sin 2(\phi_0 - \beta)$ ($\phi_0 \approx 0$). Nous venons de voir que varier la fluence de la pompe est équivalent à augmenter la température stationnaire d'un échantillon. ϕ_0 étant une fonction de la température, lorsque l'on augmente la fluence et nous devrions retrouver une trace d'une exponentielle dans nos signaux. Dans un premier temps, à basse puissance nous avons fait en sorte d'annuler C^* ou tout du moins le rendre aussi faible que possible. Ensuite nous avons augmenté la fluence.

Nos ajustements de courbes ont révélé qu'il était toujours nécessaire de considérer une exponentielle lorsque l'on augmente la fluence, mais sur des temps plus courts (ex : à $F_{\text{pompe}} = 54 \mu\text{J cm}^{-2}$, on a $\tau_{\text{up}} = 183 \text{ ps}$ et $\tau_{\text{down}} = 457 \text{ ps}$) en comparaison des temps du $\delta M_s/M_s$ trouvé dans la par-

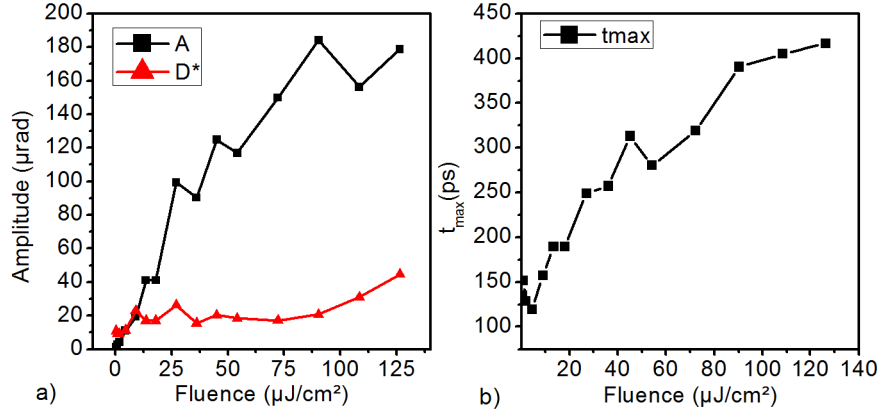


Figure 8.19: **a**: Evolution des amplitudes des ondes de spin et de l'exponentiel en fonction de la fluence ; **b**: Evolution de la position du maximum de l'exponentiel en fonction de la fluence.

Echantillon $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; $T=12\text{ K}$; polarisation pompe : $\parallel [110]$; polarisation sonde : $\parallel [100]$

tie précédente ($\tau_{\text{up}} = 123\text{ ps}$ et $\tau_{\text{down}} = 1250\text{ ps}$) ce qui signifie que l'exponentielle que nous mesurons ici tire son origine physique d'un phénomène différent.

Il est néanmoins surprenant de ne pas voir réapparaître le signal que nous avons attribué à $\delta M_s/M_s$, celui-ci étant une fonction dépendante de ϕ_0 et nous voyons encore une fois la limite de notre première interprétation. Toutefois, lorsque l'on fait varier la température, la signature dynamique de ce signal semble avoir la même dépendance en polarisation comme si ϕ_0 était constant en température. Cette hypothèse a été testée avec le modèle des variations des K_i , très sensible à la valeur de ϕ_0 et très rapidement aucune variation des K_i ne permet de tenir compte des amplitudes mesurées. Cela signifie que ϕ_0 varie en fonction de la température, en accord avec nos précédentes expériences d'effet Voigt.

Sachant que l'augmentation en fluence est équivalent à une augmentation de température, il est peu surprenant de ne pas voir réapparaître ce signal attribué à $\delta M_s/M_s$. Le signal exponentiel que l'on peut observer dans les expériences en fonction de la fluence est probablement dû à la convolution de l'excitation et pour la différencier de la désaimantation, nous l'avons noté D^* . La position temporelle du pic de cette exponentielle (t_{max}) porte alors la signature de la durée de l'excitation. t_{max} passe d'une valeur inférieure à 100 ps à une valeur proche de 400 ps avec une tendance vers l'obtention d'un plateau ce qui signifie que plus la fluence augmente, plus l'excitation s'allonge ce qui mécaniquement entraîne une augmentation de l'excitation. Ce point n'a encore jamais été évoqué dans la littérature et la question de la durée précise fait encore l'objet de travaux de notre part.

8.5 Conclusion partie dynamique de l'aimantation

Dans cette partie nous nous sommes intéressés à la dynamique de l'aimantation induite par une excitation impulsionnelle optique en faisant varier plusieurs paramètres comme la fluence, la température, la polarisation de la pompe et le champ magnétique.

Dans le chapitre 2, nous avons discuté de la correspondance FMR/pompe-sonde et nous avons démontré que celle-ci n'est pas systématiquement vérifiée. L'origine de ces désaccords est certainement due à des variations des K_i sur l'échantillon : la FMR ne donnant que les K_i moyen alors que les techniques pompe-sonde sont sensibles aux K_i à un emplacement donné. Nous avons également pu déterminer l'amortissement et nous avons mis en évidence une forte contribution inhomogène.

Dans le chapitre 3, nous nous sommes intéressé à l'excitation optique en elle-même. En considérant que la plupart de nos effets sont liés à des variations transitoires de température, nous avons développé un modèle phénoménologique permettant de décrire les variations d'amplitude en température et sous champ magnétique. Nous avons démontré que l'excitation optique pouvait se décrire de façon effective comme une variation impulsionnelles des K_i , en particulier $K_{2\parallel}$ et $K_{4\parallel}$ lorsque l'aimantation est dans le plan. En l'absence de champ magnétique, l'excitation n'est efficace qu'à la condition où $\Delta_{2\parallel} \neq \Delta_{4\parallel}$.

A partir des expériences en fonction de la polarisation de la sonde, nous avons réussi à reconstruire la trajectoire de l'aimantation, nous permettant ainsi de conclure à une excitation courte pour des basses fluences de pompe. Cette conclusion nous a permis de remonter à l'excitation, à travers l'amplitude de la variation impulsionnelles des K_i originaire d'un ΔT transitoire ce qui nous a permis d'évaluer la chaleur spécifique de notre système.

En étudiant les comportements en champ magnétique des amplitudes des fréquences de précession, nous avons été en mesure de mettre en évidence l'importance de l'orientation de l'aimantation dans le plan de la couche. Les amplitudes des fréquences de précessions en fonction du champ se révèle très sensible au rapport de la variation de $K_{2\parallel}$ sur $K_{4\parallel}$. En théorie, ce rapport peut être déduit en considérant un ΔT transitoire à partir de la variation des $K_i(T)$. Toutefois sur les échantillons à très faible anisotropie, cette procédure se révèle très incertaines à cause des incertitudes sur les $K_i(T)$ obtenus par FMR.

Ces séries d'études nous ont servi de base afin de comprendre les évolutions des différents paramètres observés en fonction de la fluence de la pompe en particulier les fréquences de précession, les amplitudes et l'amortissement. En étudiant les fréquences de précession en fonction de la température et en fonction de la fluence, nous en avons déduit une élévation stationnaire en température que nous avons comparé à celle préalablement obtenue grâce aux cycles d'hystérésis (voir partie II chapitre 5). Nous avons également observé la signature de notre excitation, convoluée avec le système magnétique. Qualitativement, l'amplitude ainsi que la durée de l'excitation augmente avec la fluence de la pompe et des études complémentaires sont réalisées afin d'évaluer quantitativement cette durée.

Partie IV

Ondes de spin

Chapitre 9

Identification des ondes de spin et conditions d'observation

Dans la partie précédente, nous avons pu observer des dynamiques d'aimantation variées et notre intérêt ne s'est porté jusqu'à présent que sur l'excitation et l'amortissement d'un seul mode de précession. Toutefois, un oeil attentif ou habitué aux signaux TRMOKE aura repéré immédiatement la présence de plusieurs fréquences de précession attribuées à la présence d'ondes de spin (un exemple est donné pour $\text{Mn}_7\text{P}_{3.6}$ dans la Fig. 9.1).

Les ondes de spin peuvent être visualisées comme de petites déviations par rapport à la position d'équilibre de l'aimantation. Depuis leurs premières observations par Seavey *et al.* [167], celles-ci ont été considérées pendant plusieurs décennies comme des outils efficaces permettant de déterminer les propriétés micro-magnétiques des matériaux comme les constantes d'anisotropie ou encore la constante d'échange. Avec l'évolution des techniques de croissance et de lithographie celles-ci sont désormais utilisées de façon originales comme vecteur de l'information grâce à leur caractère ondulatoire, mais aussi comme support de l'information du fait de leur petite longueur d'onde (de l'ordre de quelques nm). On regroupe l'ensemble de ces techniques sous le nom de magnonique [96]. Le désavantage est qu'il faut des matériaux d'excellente qualité, avec des temps d'atténuation très long afin de pouvoir faire se propager des ondes avec le minimum d'atténuation (par exemple voir Au *et al.* [11] avec la propagation d'une onde de surface résolue par microscopie magnéto-optique).

Plusieurs types d'ondes de spin existent. Historiquement les premières prédictions et observations ont été réalisées par Kittel *et al.* [88] et Tannenwald *et al.* [167] en 1958. Kittel proposa un modèle où les ondes de spin stationnaires sont confinées dans l'épaisseur de la couche et sont reliées par la constante d'échange. Ces modes sont appelés modes de Kittel avec une fréquence évoluant en n_{mode}^2 , n_{mode} représentant le numéro du mode (Fig. 9.1b).¹ Les seconds type de mode possible sont des modes magnéto-statiques et ont été prédis puis observés par Damon *et al.* [36].

Pendant plusieurs décennies, les ondes de spin ont été mises en évidence grâce aux expériences de FMR sondant les champs de résonance. Le développement des lasers impulsionnels, en particulier les titane-saphir avec des largeurs d'impulsions de l'ordre de la centaine de fs, ainsi que des détectations synchrones, a rendu possible la description de la dynamique de l'aimantation par le biais d'expériences optiques de type pompe-sonde, permettant ainsi l'observation de ces ondes dans le domaine temporel. Toutefois, même si ces deux techniques observent le même phénomène, elles diffèrent grandement par leur processus d'excitation. Si on considère une

¹Nous appellerons ondes de spin ou magnons y compris le mode uniforme pour rester aussi général que possible.

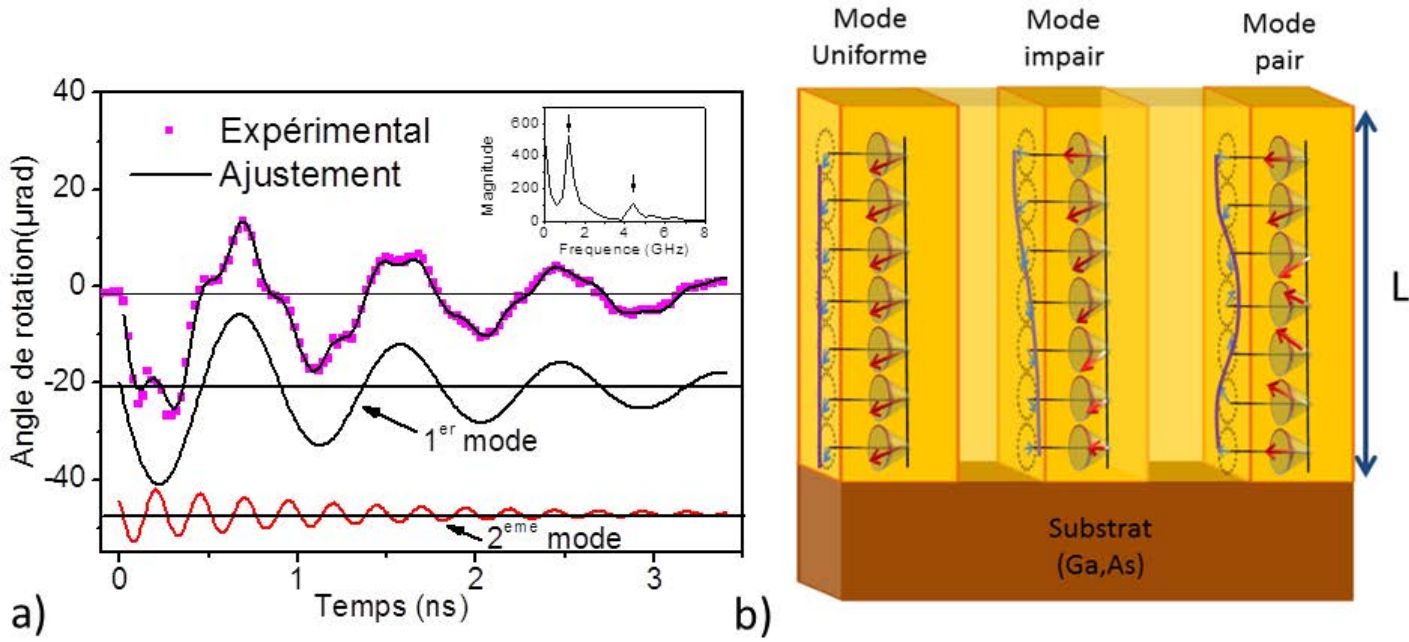


Figure 9.1: **a** : Signal dynamique obtenu sur l'échantillon $\text{Mn}_7\text{P}_{3.4}$. Les points représentent les données expérimentales superposées à l'ajustement (en trait plein) obtenu par l'Eq. 7.12. La décomposition sur les deux modes visibles est représentée en décalant les courbes. Dans l'encart est représentée la transformée de Fourier du signal expérimental montrant deux pics correspondant aux deux modes observés. **b** : Schéma représentant les PSSW dans une couche magnétique d'épaisseur L sur un substrat.

$T=11.5 \text{ K}$; $F_{\text{pompe}}=1.5 \mu\text{J cm}^{-2}$; $F_{\text{sonde}}=0.6 \mu\text{J cm}^{-2}$; polarisation sonde : $[100]$; polarisation pompe : $[110]$.

onde de spin comme un oscillateur à une fréquence ω , l'excitation ne sera efficace que si elle contient la composante de Fourier correspondante à ω . Dans le cas de la FMR, l'excitation sélectionne les ondes de spin à exciter en forçant le système grâce à un champ oscillant. En pompe-sonde, la largeur des impulsions lasers (130 fs, $\delta\omega=7.6 \text{ THz}$) fait qu'a priori aucune sélection en fréquence n'est effectuée et donc toutes les ondes de spin peuvent être excitées.

Au regard de la FMR, l'observation des ondes de spin dans des matériaux ferromagnétiques par des techniques optiques est très récente, aussi bien dans les métaux que dans (Ga,Mn)As. En 2002, dans du Ni, Van Kampen *et al.*[196] observaient plusieurs fréquences de précession identifiées comme des ondes de spin stationnaires perpendiculaires (PSSW par la suite). En 2007, Wang *et al.* [199] réalisaient les mêmes observations et interprétations que Van Kampen *et al.* sur (Ga,Mn)As, mais en considérant une hybridation d'ondes stationnaires de volume et de surface lié à l'échange. L'observation de plusieurs ondes de spin dans (Ga,Mn)As a ensuite été confirmée en 2012 par Nemec *et al.* [123] puis nous mêmes en 2015[169].

Au cours de cette thèse, nous avons cherché à identifier les ondes de spin détectées afin de répondre à plusieurs questions comme : pourquoi les excite-t-on? Mais aussi pourquoi arrive-t-on à les détecter? Ces questions sont fondamentales afin de comprendre les amplitudes de nos signaux, la présence de plusieurs ondes de spin ou non, mais aussi pour calculer la constante d'échange.

Dans un premier temps, nous nous intéresserons aux ondes de spin en elles mêmes abordées

de manière phénoménologique à partir de LLG. Le but est d'identifier les ondes de spin excitées. Nous aborderons ensuite la question du processus de détection des ondes de spin.

9.1 Modes couplés surface/volume

L'ingrédient essentiel pour observer des ondes de spin stationnaires est l'échange. Physiquement, cette quantité permet de relier la dynamique de plusieurs spin voisins lorsqu'ils ne sont pas tout à fait alignés l'un par rapport à l'autre. Communément dans la littérature, la dénomination de celle-ci varie suivant le point de vue adopté. Dans le système international, on définit la constante d'échange A_{ex} en J m^{-1} à partir du terme $A_{ex}(\nabla\vec{m})^2$ dans LLG. L'utilisation de cette grandeur est particulièrement adaptée lorsque l'on s'intéresse à la propagation des parois de domaine, où la largeur de la paroi est donnée par une relation du type $\Delta_{DW} = \sqrt{A_{ex}/K}$, K étant la constante d'anisotropie en J m^{-3} .

Lorsque l'on s'intéresse aux ondes de spin, on préfère parler de raideur de spin reliée à l'échange avec $D_{ex} = \frac{2A_{ex}}{M_s}$, en T nm^2 ou en multipliant par $g\mu_B$, en meV nm^2 , ce qui présente l'avantage de travailler sur une quantité normalisée par l'aimantation. Les T nm^2 sont plutôt utilisés dans des modèles macroscopiques lorsque l'on s'intéresse aux champs de résonance ou encore aux fréquences de précession. Quelques ordres de grandeurs dans les métaux : $D_{exNi}=37 \text{ T nm}^2$ [196] ou encore $D_{exFe}=26 \text{ T nm}^2$ [101]. Afin de comparer les différentes couches de (Ga,Mn)As à notre disposition ainsi que celles de la littérature, nous utiliserons par la suite D_{ex} en T nm^2 . (Pour indication : multiplier la valeur de D_{ex} en T nm^2 par 0.115 pour obtenir un ordre d'idée en meV nm^2)

9.1.1 Relation de dispersion

De la même manière que dans la partie **III** chapitre 2, nous utiliserons l'équation LLG avec l'amortissement et en rajoutant le terme d'échange. Pour calculer le champ d'échange en coordonnées sphériques, on part de la définition de l'énergie d'échange :

$$E_{ex} = A_{ex} \left[\left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)^2 + \sin^2 \theta \left(\frac{\partial \phi}{\partial z} \right)^2 \right] \quad (9.1)$$

On obtient alors en calculant les dérivées fonctionnelles $\frac{\delta E_{ex}}{\delta \phi, \theta}$:

$$\frac{\delta E_{ex}}{\delta \theta} = A_{ex} \sin 2\theta \left(\frac{\partial \phi}{\partial z} \right)^2 - 2A_{ex} \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} \quad \frac{\delta E_{ex}}{\delta \phi} = -2A_{ex} \sin^2 \theta \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} \quad (9.2)$$

Pour une aimantation planaire avec $\theta_0 = \frac{\pi}{2}$, l'équation à résoudre pour obtenir la relation de dispersion des magnons est alors :

$$\begin{cases} \dot{\delta \theta} = -\frac{\gamma}{M_s} F_{\phi\phi} \delta \phi + \gamma D_{ex} \frac{\partial^2 \delta \phi}{\partial z^2} - \alpha_G \dot{\delta \phi} \\ \dot{\delta \phi} = \frac{\gamma}{M_s} F_{\theta\theta} \delta \theta - \gamma D_{ex} \frac{\partial^2 \delta \theta}{\partial z^2} + \alpha_G \dot{\delta \theta} \end{cases} \quad (9.3)$$

On cherche les solutions stationnaires à l'Eq. 9.3. On découple les parties spatiales et temporelles des ondes de spin en posant $\delta \theta(t, z) = \hat{\delta \theta}(z) e^{i\Omega t}$, $\delta \phi(t, z) = \hat{\delta \phi}(z) e^{i\Omega t}$ avec Ω la fréquence complexe.

Pour la partie dépendante de l'espace, les solutions de l'Eq. 9.3 dans l'approximation des petites déviations sont des fonctions harmoniques de la forme $\cos k_b z$ ($\sin k_b z$) pour les modes de volumes et $\cosh k_s z$ ($\sinh k_s z$) pour les modes de surfaces pairs (impairs) par rapport au centre de la couche, k_s et k_b représentant les vecteurs d'ondes pour les modes de surface et de volume respectivement. Pour ces modes, l'Eq. 9.3 devient alors :

$$\begin{cases} i\Omega\hat{\delta}\theta(z) + \left(\frac{\gamma}{M_s}F_{\phi\phi} + i\Omega\alpha_G \pm k_s^2\gamma D_{ex}\right)\hat{\delta}\phi(z) = 0 \\ -\left(\frac{\gamma}{M_s}F_{\theta\theta} + i\Omega\alpha_G \pm k_s^2\gamma D_{ex}\right)\hat{\delta}\theta(z) + i\Omega\hat{\delta}\phi(z) = 0 \end{cases} \quad (9.4)$$

Le signe $+$ ($-$) correspond aux ondes de volume (surface). Le déterminant de l'Eq. 9.4 est :

$$\Omega^2(1 + \alpha_G^2) = \frac{\gamma^2}{M_s^2}F_{\theta\theta}F_{\phi\phi} + i\frac{\gamma\alpha_G\Omega}{M_s}(F_{\theta\theta} + F_{\phi\phi}) \quad (9.5)$$

$$\pm k_s^2 D_{ex} \left[\frac{\gamma^2}{M_s}(F_{\theta\theta} + F_{\phi\phi}) + 2i\Omega\alpha_G\gamma \right] + k_s^4\gamma^2 D_{ex}^2 \quad (9.6)$$

On pose $\Omega = \omega + i\chi$ et on calcule la partie imaginaire pour l'amortissement, et la partie réelle pour la fréquence. On a alors :

$$\chi_{\text{vol,surf}} = \frac{\alpha_G\gamma}{2(1 + \alpha_G^2)} \left[\frac{(F_{\theta\theta} + F_{\phi\phi})}{M_s} \pm 2k_{b,s}^2 D_{ex} \right] \quad (9.7)$$

pour l'amortissement et pour la fréquence angulaire :

$$\omega_{\text{vol,surf}} = \frac{\gamma}{\sqrt{1 + \alpha_G^2}} \left\{ \frac{1}{M_s^2}F_{\theta\theta}F_{\phi\phi} - \frac{\alpha^2}{4M_s^2(1 + \alpha_G^2)}(F_{\theta\theta} + F_{\phi\phi})^2 \pm \frac{k_{b,s}^2 D_{ex}}{M_s} \frac{F_{\theta\theta} + F_{\phi\phi}}{1 + \alpha_G^2} + \frac{k_{b,s}^4 D_{ex}^2}{1 + \alpha_G^2} \right\}^{1/2} \quad (9.8)$$

Les indices vol et surf désignent les ondes de volume et de surface. Les relations de dispersion $f(k) = \frac{\omega(k)}{2\pi}$ ainsi que $1/\chi(k)$ et $\alpha_{eff} = \chi(k)/\omega(k)$ pour les ondes de volume et de surface sont portées sur la Fig. 9.2. En $k = 0$, la fréquence n'est déterminée que par les constantes d'anisotropie et dans une moindre mesure par α_G . La courbure des relations est déterminée par la raideur de spin D_{ex} . Notons que l'introduction de l'amortissement dans le problème ne change de façon significative la relation de dispersion que pour des valeurs de α_G grandes ($\alpha_G = 0.3$ dans l'exemple donné ici). La constante d'amortissement α_{eff} des modes de volume est pratiquement indépendante de k mais le temps d'amortissement $1/\chi$ diminue en fonction de k . Le cas des ondes de surface est plus subtil à cause du lien existant entre k_b et k_s comme nous allons le voir immédiatement.

9.1.2 Hybridation des modes volume-surface

Suivant les travaux de Wang *et al.* [199], on considère l'excitation d'ondes de spin hybrides c'est à dire une superposition d'ondes de volume et de surface. L'idée est de rendre compte de l'observation de modes d'ondes de spin non uniformes de valeur moyenne non nulle dans l'épaisseur de la couche. Les dépendances spatiales prennent alors la forme suivante :

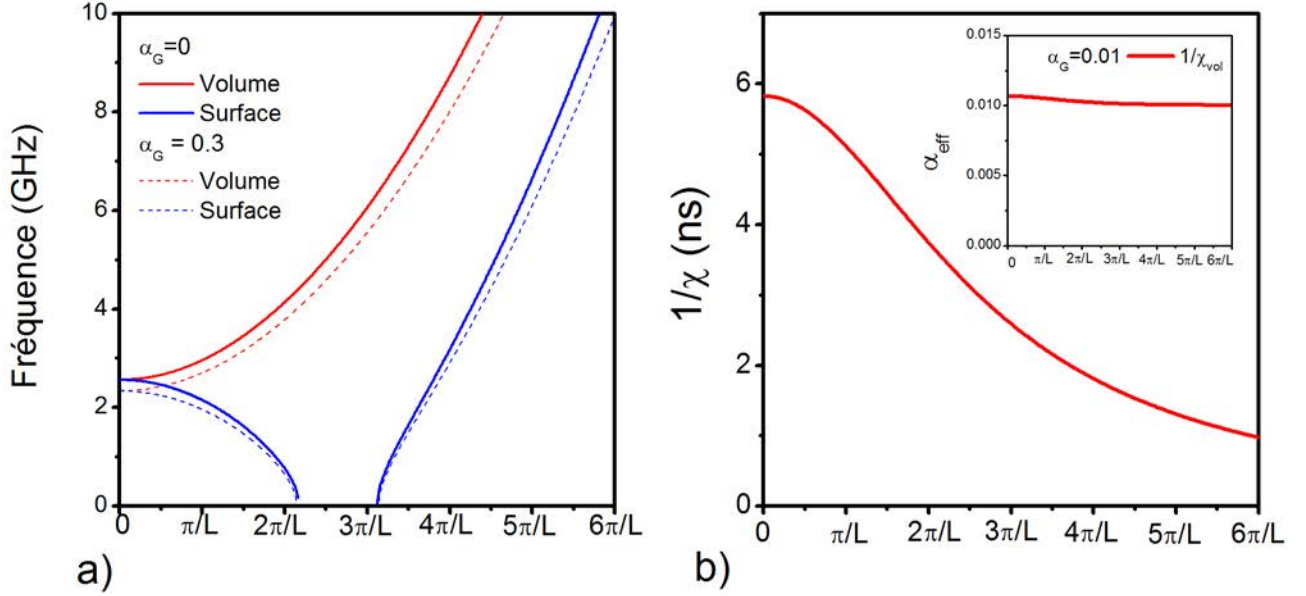


Figure 9.2: **a** Relations de dispersion de magnons calculées à partir de l'Eq. 9.8. Les modes de surfaces sont en bleu, et les modes de volume en rouge. Le calcul a été fait pour $\alpha_G = 0$ (courbes en trait plein) et $\alpha_G = 0.3$ (courbe en traits pointillés). **b** : Evolution du temps de décroissance $1/\chi_{vol}(k)$ et en encart de $\alpha_{eff} = \frac{\chi(k)}{\omega(k)}$ pour les modes de volume.

Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; $T=12$ K ; $D_{ex}=3.6$ T nm²

$$\begin{cases} \hat{\delta}\phi(z) = A_\phi \cos k_b z + B_\phi \cosh k_s z \\ \hat{\delta}\theta(z) = A_\theta \cos k_b z + B_\theta \cosh k_s z \end{cases} \quad (9.9)$$

avec $A_{\phi,\theta}$, $B_{\phi,\theta}$ les amplitudes des différentes contributions au profil des ondes. Par définition de l'hybridation, les modes de volumes et de surfaces sont à la même énergie. Il existe alors une relation entre k_s et k_b définie à partir de $\omega_{vol} = \omega_{surf}$. On obtient alors une équation indépendante de la constante d'amortissement :

$$(k_b^2 + k_s^2) \left[(k_b^2 - k_s^2) D_{ex} + \frac{1}{M_s} (F_{\theta\theta} + F_{\phi\phi}) \right] = 0 \quad (9.10)$$

Le premier terme de l'Eq. 9.10 décrit le cas où l'on a purement des ondes de volume ou de surface avec $k_b = ik_s$. Le deuxième terme décrit l'hybridation entre des ondes de volume et de surfaces avec :

$$k_b = \sqrt{k_s^2 - \frac{1}{D_{ex} M_s} (F_{\theta\theta} + F_{\phi\phi})} \quad (9.11)$$

Dans leur traitement d'ondes hybrides, Wang *et al.* n'ont pas considéré la présence du terme d'amortissement à cause de l'impact négligeable de ce dernier sur les valeurs numériques des fréquences de précession. Néanmoins la présence de celui-ci rajoute une condition très forte sur l'égalité des parties imaginaires si on considère $\Omega_{vol} = \omega_{vol} + i\chi_{vol} = \Omega_{surf} = \omega_{surf} + i\chi_{surf}$, changeant la physique du problème. En effet, l'égalité des amortissements impose $k_b = ik_s$ ce qui signifie que les modes propres ne peuvent être *que* des ondes purement de volume *ou* de surface. Le calcul de leur amplitude montre que leur existence est restreinte à la condition d'un

piégeage strictement nul. Des modes hybrides peuvent néanmoins exister transitoirement avec un amortissement de la partie surface différente de celle du volume.

Toutefois même dans ce cas, l'amortissement des ondes de volumes et de surfaces suivent des règles bien précises. A cause du lien entre k_b et k_s on a $\chi_{vol} = -\chi_{surf}$ et ce pour tout k_b . Dans le cas d'un mode avec $k_b = 0$ et $\alpha_G = 0.01$, on obtient $1/\chi_{vol} = 5.8$ ns. Ce temps est plus long que ce que l'on observe et en pratique nous avons déjà montré précédemment (partie III chapitre 7 Fig. 7.8) que nous sommes limités par une contribution inhomogène à l'amortissement très importante.

Expérimentalement nos observations ne nous permettent pas de trancher sur l'existence ou non des modes hybrides et nous continuons de considérer la possibilité d'une telle hybridation, celle-ci résultant de la présence d'une anisotropie de surface.

9.1.3 Anisotropie de surface et condition aux limites

La relation de dispersion ayant été établie, on doit désormais trouver les ondes de spin autorisées par le système magnétique c'est-à-dire la quantification des k_s et k_b . Cela permettra alors de calculer les fréquences ainsi que les profils des modes d'ondes de spin. Pour ce faire, on considère des conditions aux limites sur l'aimantation aux interfaces substrat/(Ga,Mn)As et (Ga,Mn)As /vide.

Dans la littérature, les conditions aux limites particulièrement utilisées sont celles de Kittel avec $\delta\phi(\pm L/2) = \delta\theta(\pm L/2) = 0$ aussi appelées conditions de fort piégeage en surface. Ces conditions donnent une quantification $k_{b_n} = n\pi/L$ pour les modes confinés d'ondes de spin dans la couche. Suivant les valeurs de n , les profils des modes que l'on obtient sont des modes de volumes pairs ou impairs par rapport au centre de la couche. Les interprétations basées sur ces modes ont donné pléthore de résultats satisfaisants depuis leurs prédictions par Kittel ([167] par exemple).

Le problème des conditions de Kittel réside dans le mode uniforme avec $k_b = 0$ ce qui donne un mode indépendant de la position dans l'épaisseur de la couche magnétique. En considérant ce mode plat, comment ce dernier peut-il exister avec les conditions de Kittel sans être égal à 0 partout? Comment expliquer alors l'observation d'un tel mode dans la littérature?

Les conditions de Kittel présentant une certaine limitation, nous considérons les conditions de Rado-Weertman qui présentent l'avantage d'utiliser les dérivées de l'aimantation permettant ainsi l'observation d'un mode uniforme. L'utilisation de ces conditions implique la possibilité d'une anisotropie de surface non nulle introduisant alors de nouveaux couples s'exerçant sur l'aimantation à la surface. La dérivation de l'équation de conditions aux limites a été réalisé par Rado *et al.* [141], en regroupant les termes ne dépendant que du volume uniquement, c'est à dire tous les termes à l'exception de celui dépendant de l'échange qui continue d'agir en surface. En intégrant LLG sur un parallélépipède et en faisant tendre l'épaisseur de celui-ci vers 0, on obtient les conditions aux limites à la surface nommées usuellement condition aux limites de Rado-Weertman[141] :

$$\vec{M} \times \left(\vec{\nabla}_{\vec{M}} F_{surf} - \frac{D_{ex}}{M_s} \frac{\partial \vec{M}}{\partial \vec{n}} \right) = 0 \quad (9.12)$$

avec $\vec{n}$ la normale à la surface orientée vers l'extérieur en $\pm \frac{L}{2}$. L'anisotropie de surface tient

compte de la brisure de symétrie lorsque l'on arrive en surface, et seul le terme d'échange en est impacté. On considère que l'anisotropie est de la forme $F_{\text{surf}} = K_s \frac{M_s^2}{M_s} = K_s \cos^2 \theta_0$. Dans ce manuscrit nous ne considérons pas la possibilité d'avoir en plus la présence d'une anisotropie de surface dans le plan. En coordonnées sphériques, dans le cas où l'aimantation est dans le plan, l'Eq. 9.12 devient :

$$\frac{\partial \hat{\delta}\phi}{\partial z} = 0 \quad \frac{\partial \hat{\delta}\theta}{\partial z} = \mp \frac{2K_s}{D_{ex}M_s} \hat{\delta}\theta \quad (9.13)$$

en $\pm L/2$. Notons que les conditions de Rado-Weertman ne sont strictement équivalentes aux conditions de Kittel ($\hat{\delta}\theta = \hat{\delta}\phi = 0$ en $\pm L/2$) uniquement dans le cas d'un piégeage fort *et* d'une anisotropie de surface dans le plan (calculs réalisés par Catherine Gourdon, non présentés ici) permettant de relier $\frac{\partial \hat{\delta}\phi}{\partial z}$ à $\hat{\delta}\phi$. Avec une anisotropie de surface hors-plan, le régime de fort piégeage ne donne que $\hat{\delta}\theta = 0$ donc un cas intermédiaire.

9.1.4 Profil d'aimantation : quantification des vecteurs d'ondes

Pour une épaisseur L de la couche magnétique, on calcule les vecteurs d'ondes k_s et k_b autorisés, sachant que l'un se déduit de l'autre par l'Eq. 9.11. L'équation à résoudre se trouve en partant des profils des ondes de spin que l'on injecte dans l'Eq. 9.12.

Dans un cas général, les ondes de spin détectées vont dépendre de la valeur de l'anisotropie de surface K_s aux interfaces. Dans la littérature, on considère le plus souvent des conditions aux limites symétriques[141][199] ce qui suppose la même anisotropie de surface à l'interface substrat/couche magnétique, et couche magnétique/vide. Dans la réalité, cette condition n'est très certainement pas remplie. On se propose ici d'étudier le cas général en considérant des conditions aux limites asymétriques avec $K_s^\pm$ la valeur de l'anisotropie de surface en $\pm L/2$. Les conditions étant asymétriques, les modes que nous observerons seront un mélange de modes pair et impair. Le profil des modes dans la couche est alors :

$$\begin{cases} \hat{\delta}\theta(z) = A_{1\theta} \cos k_b z + A_{2\theta} \sin k_b z + B_{1\theta} \cosh k_s z + B_{2\theta} \sinh k_s z \\ \hat{\delta}\phi(z) = A_{1\phi} \cos k_b z + A_{2\phi} \sin k_b z + B_{1\phi} \cosh k_s z + B_{2\phi} \sinh k_s z \end{cases} \quad (9.14)$$

où les A_i et B_i sont les inconnues du système. Pour trouver les vecteurs d'ondes, on commence par injecter les expressions des (9.14) dans le terme en $\hat{\delta}\theta$ de l'Eq. 9.3 (on néglige le terme d'amortissement). Cette première étape permet de relier les $A_{i\theta}$ et $B_{i\theta}$ aux $A_{i\phi}$ et $B_{i\phi}$. En identifiant terme à terme, on obtient directement :

$$A_{1\theta} = \frac{\gamma}{\omega} F_B A_{1\phi} \quad B_{1\theta} = \frac{\gamma}{\omega} F_S B_{1\phi} \quad (9.15)$$

$$A_{2\theta} = \frac{\gamma}{\omega} F_B A_{2\phi} \quad B_{2\theta} = \frac{\gamma}{\omega} F_S B_{2\phi} \quad (9.16)$$

avec $F_B = \frac{F_{\phi\phi}}{M_s} + k_b^2 D_{ex}$ et $F_S = \frac{F_{\phi\phi}}{M_s} - k_s^2 D_{ex}$. On utilise ensuite les conditions aux limites de Rado-Weertman. On obtient alors un système d'équation (cf Annexe A) dont on calcule le déterminant que l'on égalise à 0. Par commodité, on note $\frac{2K_s^\pm}{D_{ex}M_s} = \kappa_s^\pm$ en $\pm L/2$. L'équation de conditions aux limites permettant de trouver k_b et k_s est alors :

$$\begin{aligned}
0 = & -2k_b k_s F_B F_S \kappa_s^+ \kappa_s^- + \left\{ -D_{ex} k_b F_B k_s^2 (k_b^2 + k_s^2) (\kappa_s^+ + \kappa_s^-) \cos k_b L \right. \\
& + \left[(F_S^2 k_b^2 - k_s^2 F_B^2) \kappa_s^+ \kappa_s^- + D_{ex}^2 (k_b^2 + k_s^2)^2 k_s^2 k_b^2 \right] \sin k_b L \left. \right\} \sinh k_s L \\
& - F_S k_b k_s \left[-2F_B \kappa_s^+ \kappa_s^- \cos k_b L + D_{ex} k_b (k_b^2 + k_s^2) (\kappa_s^+ + \kappa_s^-) \sin k_b L \right] \cosh k_s L \quad (9.17)
\end{aligned}$$

avec k_b relié à k_s par l'Eq. 9.11. Pour calculer les profils d'aimantation, on résout numériquement l'Eq. 9.17 sur k_s . On obtient ainsi k_b et k_s .

Les amplitudes des fonction trigonométriques des profils sont obtenues en utilisant le système d'équation nous ayant permis de calculer le déterminant. On exprime alors toutes les amplitudes en fonction de $A_{1\phi}$ que l'on normalise (les expressions complètes peuvent être retrouvées dans l'appendice A). Pour une onde de spin donnée, on calcul sa fréquence en utilisant l'Eq. 9.8 puis son profil spatial avec l'Eq. 9.14. Les différents types de profils que l'on va obtenir vont dépendre des valeurs des anisotropies de surfaces considérées. On définit le numéro du mode en fonction du nombre de zéro de la fonction $\hat{\delta}\theta$ (en dehors de $\pm L/2$).

Piégeage nul et mode uniforme

En prenant $K_s = 0$ c'est à dire aucun piégeage en surface, les vecteurs d'ondes sont quantifiés avec $k_b = \frac{n\pi}{L}$, et la fréquence des modes confinés est proportionnelle à n_{mode}^2 où n_{mode} correspond au numéro du mode (Fig. 9.3a). Ici les modes sont uniquement des modes de volumes et même s'il existe des solutions pour les vecteurs d'ondes de surface (k_s), la contribution de ces modes aux profils est nulle.

Pour $K_s = 0$ l'observation d'un mode uniforme en $k_b = 0$ est possible. Ceci s'explique par le fait que pour ce mode les dérivées de chaque composante de l'aimantation sont bien constantes et égales à 0 dans toute l'épaisseur, sans que l'aimantation soit nulle (Fig. 9.3b). La conséquence de la présence de ce mode est qu'il ne variera pas avec l'épaisseur de l'échantillon rendant ainsi aisée son identification (Fig. 9.5a). Toutefois, dans le cas où nous serions sensible à l'aimantation moyenne des modes dans la couche, seul le mode uniforme serait visible, tous les autres ayant une moyenne nulle.

Faible piégeage $K_s > 0$

Lorsque le piégeage est faible en surface, les ondes de spin que l'on observe seront des modes hybrides surface/volume. Par rapport à $K_s = 0$, les k_b glissent en bloc vers des valeurs plus grande faisant que les modes ne sont plus confinés avec un vecteur d'onde en $n\pi/L$. La conséquence est que les modes pairs auront une aimantation moyenne non nulles. Toutefois, les fréquences de chaque mode dépendront de l'épaisseur de l'échantillon, et il n'y aura pas de mode uniforme.

De plus, en considérant des modes asymétriques, les modes résultants seront mixtes pair/im-pair. Par exemple, sur Fig. 9.3d le mode 0 n'est pas plat et ressemble plus à un mode impair, tandis que le mode 1 commence à ressembler à un mode pair. La principale conséquence est que l'intégrale du mode 1, originellement impair, a désormais une valeur non nulle.

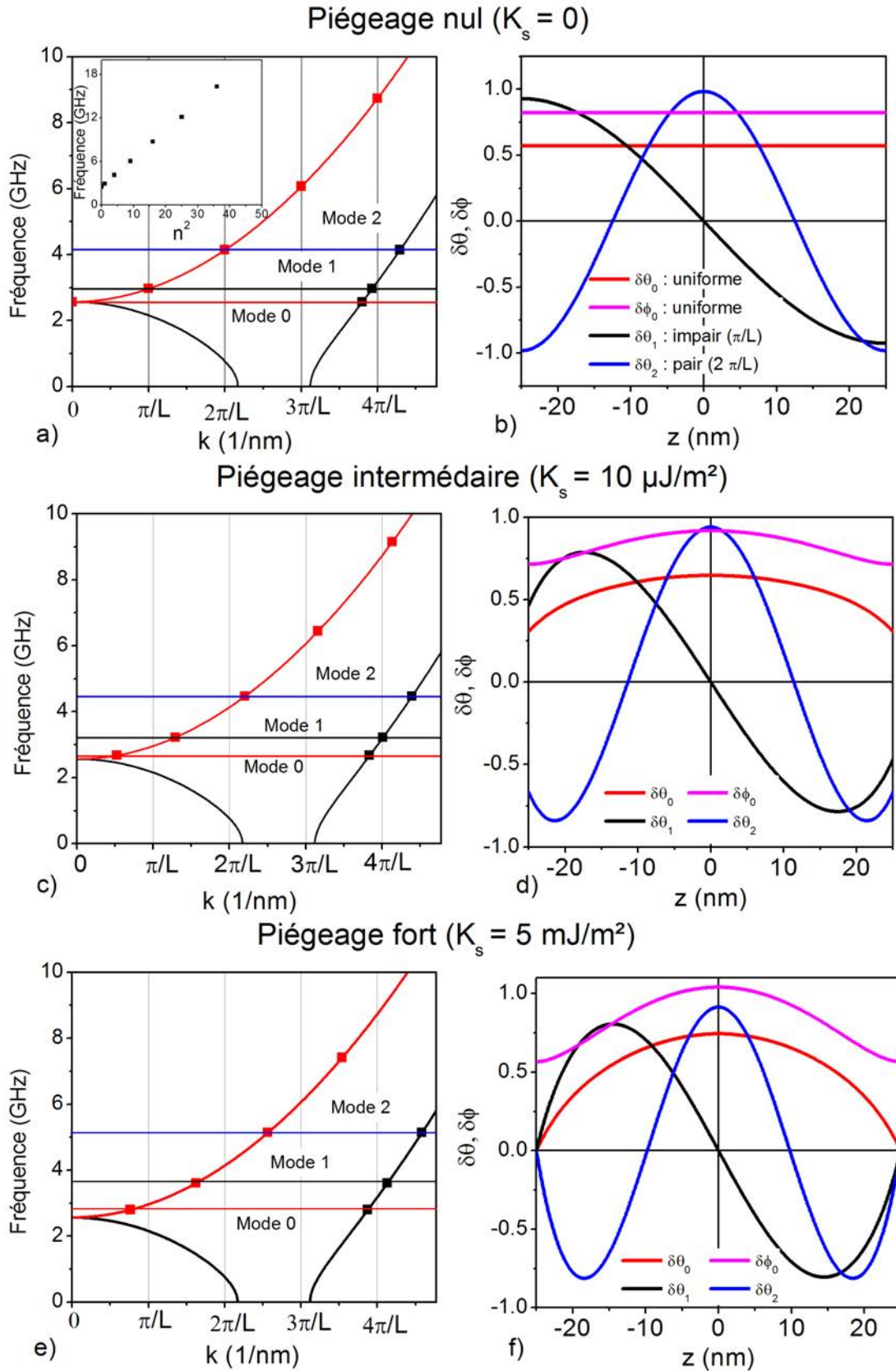


Figure 9.3: Illustration de l'effet de l'anisotropie de surface sur les fréquences et sur les profils des modes. Dans les figures **a**, **c** et **d** sont portées les relations de dispersions des modes de volume (en rouge) et des modes de surface (en noir). Les symboles correspondent aux k_b (carré rouge) et k_s (carré noir) autorisés. Sur les figures **b**, **d** et **e** sont portés les profils correspondant à chaque anisotropie de surface des trois premières ondes de spin.

Piégeage fort (Fig. 9.3e,f)

Lorsque le piégeage est suffisamment fort (typiquement $> 50 \mu J/m^2$), les profils en $\delta\theta$ des ondes de spin finissent par être nul en surface ce qui correspond à une des conditions de Kittel ($\delta\theta = 0$ en $\pm \frac{L}{2}$). Les fréquences quant à elles continuent de suivre la tendance visible pour un piégeage intermédiaire. Notons que dans ce cas qui se rapproche des conditions de Kittel, le mode 0 n'est plus un mode uniforme mais toujours un mode pair dans la couche.

Piégeage non nul : $K_s < 0$

Dans le cas où $K_s < 0$, on peut commencer à observer des modes d'ondes de spin purement de surface, pair ou impair par rapport au centre de la couche (Fig. 9.4c et d). On dénomme ces modes pur surface car leurs vecteurs d'ondes ne se trouvent que sur la relation de dispersion des ondes de surfaces et obéissent à la condition $k_b = ik_s$. L'intérêt principal de ces ondes est que l'on peut obtenir une intégrale non nulle beaucoup plus facilement qu'avec des modes hybrides.

9.1.5 Conséquences de l'anisotropie de surface

La valeur de l'anisotropie de surface va avoir un impact sur la fréquence (Fig. 9.5) et même la nature des modes que l'on pourra observer. Comme précisé plus haut, on ne pourra tout d'abord plus réellement parler de mode pair ou impair et la seule façon de les distinguer consiste à compter le nombre de 0 entre $\pm L/2$.

On peut constater sur la Fig. 9.5a, les fréquences des modes n'évoluent fortement que sur une très petite gamme de K_s avant d'atteindre rapidement un comportement indépendant de l'anisotropie de surface. Pour un même mode, l'écart entre les fréquences pour des valeurs de K_s positives et négatives peut être relativement important, de l'ordre de 1 GHz pour le mode 1, jusqu'à plusieurs GHz pour les modes d'ordre plus élevé. Notons que les fréquences pour des grands K_s dépendent également du type de conditions aux limites utilisées et la considération de conditions asymétriques rend la fréquence moins sensible aux variations de K_s . Expérimentalement, lorsque l'on arrive à identifier les modes que l'on génère, K_s n'apparaît plus que comme une simple variable d'ajustement pour comparer des fréquences calculées avec les K_i par l'Eq. 9.8 avec les fréquences expérimentales, ce qui pourrait être aussi réalisé en ajustant les K_i .

La dépendance des modes en fonction de l'épaisseur est peu sensible à la valeur de K_s Fig. 9.5b. Un mode 0 gardera une faible dépendance en fonction de l'épaisseur malgré la présence d'une anisotropie de surface tant que les épaisseurs des échantillons ne sont pas trop faibles (> 30 nm). Un mode 2 lui conservera une évolution très comparable au cas $K_s = 0$. L'écart entre les modes 2 et 0 ne sera aussi que peu affecté par K_s et restera principalement déterminé par D_{ex} et l'épaisseur.

Le seul apport significatif de l'anisotropie de surface est la présence d'une valeur moyenne non nulle pour des modes autres que le mode uniforme. Prenons par exemple le mode 2 et des conditions aux limites symétriques et supposons que les deux modes soient excités avec la même amplitude. Si nous faisons la même hypothèse que Wang *et al.* [199] c'est à dire que le signal magnéto-optique résultant du mode 2 correspond à la valeur moyenne de $\delta\theta$, l'observation d'un mode 2 nécessiterait une valeur K_s non nulle (Fig. 9.5c).

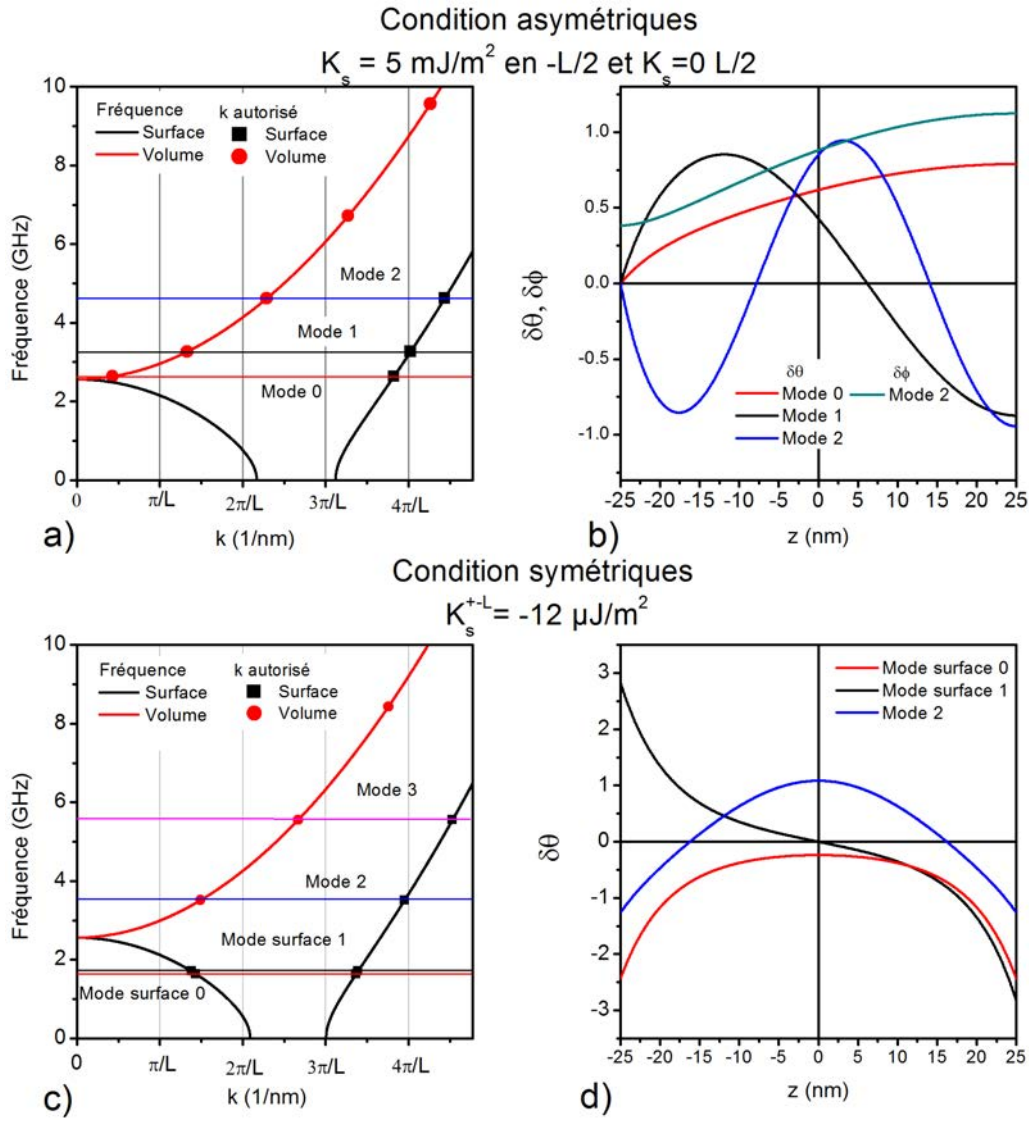


Figure 9.4: Illustration de l'influence de l'anisotropie de surface sur les ondes de spin. Sur les figures **a** et **c** sont portées en trait plein les relations de dispersion pour les modes de volumes (rouge) et de surface (noir). Les symboles correspondent aux vecteurs d'onde de volume (carré rouge) et de surface (carré noir) autorisé. Sur les figures **b** et **d** sont portés les profils des 3 premières ondes de spin en $\delta\theta$ des figures **a** et **c**.

Paramètres de calcul : Echantillon $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; $T=12 \text{ K}$; $D_{ex}=3.42 \text{ T nm}^2$; **a** $\kappa_s^- = 5 \text{ mJ/m}^{-2}$ et $\kappa_s^+ = 0$; **b** $\kappa_s^- = -12 \text{ } \mu\text{J/m}^{-2}$ et $\kappa_s^+ = -7 \text{ } \mu\text{J/m}^{-2}$

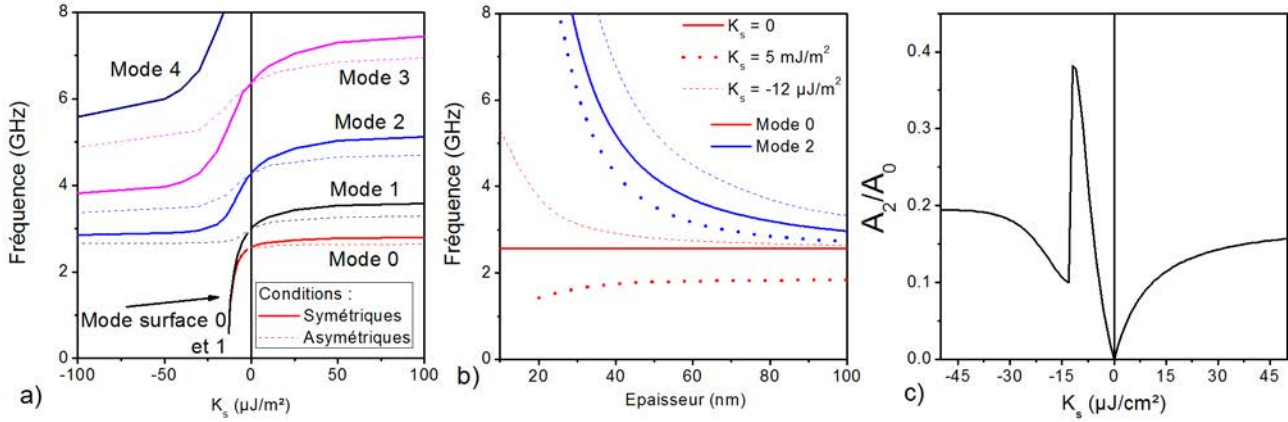


Figure 9.5: **a** : Evolution des fréquences des ondes de spin en fonction de K_s . Les courbes en tiret correspondent à une anisotropie asymétrique avec $\kappa_s^- \neq 0$ et $\kappa_s^+ = 0$. Les labels des modes correspondent à leurs nombres de 0 entre $\pm L/2$. **b** : Calcul de la fréquence de précession en fonction de l'épaisseur de la couche magnétique pour différentes valeurs de K_s . **c** : évolution du rapport de l'intégrale du mode 2 sur le mode 0 en fonction de l'anisotropie de surface (les conditions aux limites sont symétriques).

Paramètres de calculs : échantillon $Mn_7P_{4.3}$, $T=12$ K et $D_{ex}=3.6$ T nm²

9.2 Identification des modes

L'identification des modes d'ondes de spin étant cruciale, nous avons fait varier l'épaisseur de la couche magnétique et observée la dynamique associée. Cette approche est relativement standard en FMR ainsi qu'en pompe sonde dans les métaux [196] mais n'a été réalisée qu'une fois dans (Ga,Mn)As [123]. L'idée consiste à étudier la dépendance fréquentielle des modes avec l'épaisseur (Fig. 9.5b) pour éventuellement identifier un mode uniforme dont la fréquence ne varie pas avec l'épaisseur. En outre cette approche permet de vérifier l'homogénéité de l'aimantation dans la couche, et de prouver que les modes supérieurs sont bien des modes reliés par l'échange et non des modes magnéto-statiques².

9.2.1 Procédure de gravure chimique

L'épaisseur des couches de (Ga,Mn)As étant de 50 nm, nous avons réalisé une gravure chimique basée sur des cycles d'oxydation et désoxydation. A chaque étape du cycle, on commence par oxyder la couche de (Ga,Mn)As avec une solution de H_2O_2 pendant 20 s. On rince ensuite une première fois pendant 1 min à l'eau désionisée. La fine couche d'oxyde créée est ensuite enlevée en utilisant une solution de HCl à 12.5 % pendant 20 s. Le cycle se termine en rinçant l'échantillon une dernière fois pendant 3 min. Avec cette procédure, la vitesse de gravure est approximativement de 2.5 nm/cycle.

Cette procédure a été réalisée sur un morceau de $Mn_7P_{4.3}$ afin de réaliser un échantillon en forme de marche d'escalier, chaque marche faisant 5 nm de hauteur. Chaque marche était protégée de la procédure de gravure par une résine. Deux régions ont été protégées, l'une avant la première marche, et l'autre juste après la dernière marche, de sorte d'avoir deux témoins des propriétés magnétiques du système à 50 nm.

²La faible valeur de l'aimantation dans (Ga,Mn)As par rapport aux métaux rend ce dernier cas très improbable

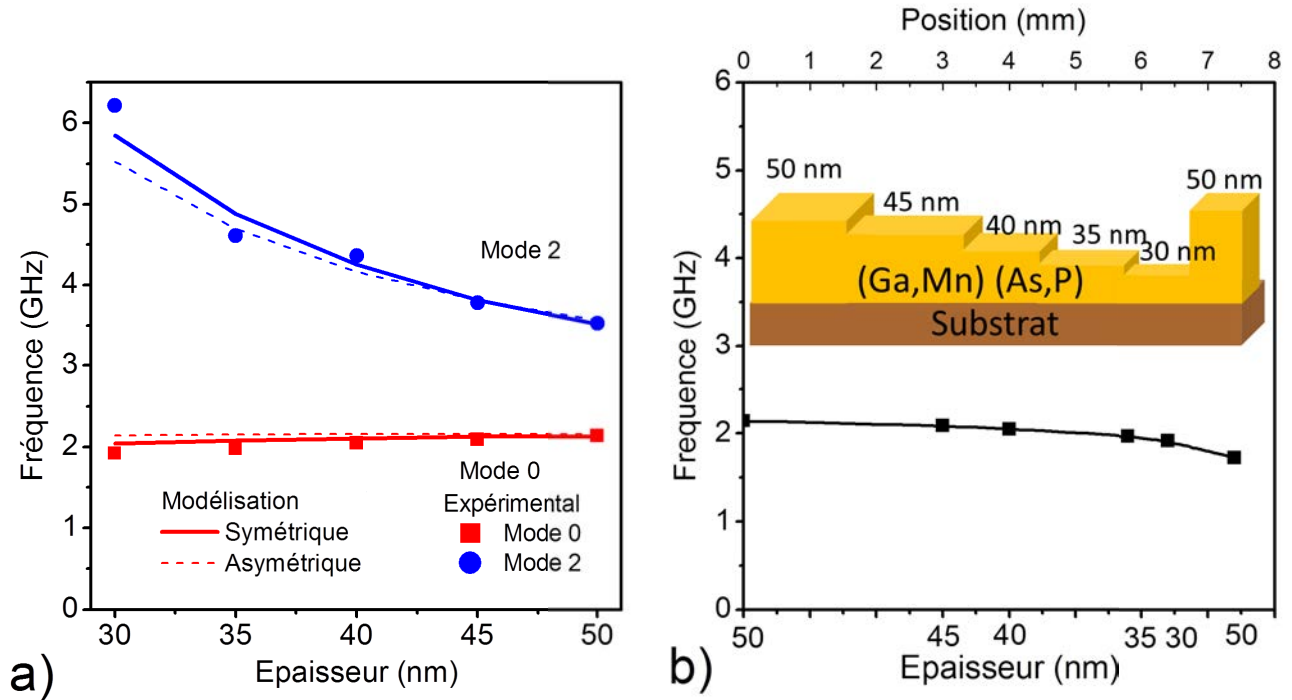


Figure 9.6: **a** : Fréquence de précession expérimentale et calculée en fonction de l'épaisseur de l'échantillon. **b** : Evolution de la fréquence du mode 0 en fonction de la position sur l'échantillon

Echantillon $Mn_{71}P_{29}$; $F_{pompe}=1.5 \mu J cm^{-2}$; $F_{sonde}=0.7 \mu J cm^{-2}$

9.2.2 Identification du mode uniforme

Le résultat des expériences pompe-sonde réalisées sur l'échantillon en forme de marche d'escalier est présenté sur la Fig. 9.6.

On observe que la fréquence du mode de plus basse énergie ne varie presque pas en fonction de l'épaisseur tandis que le premier mode excité lui augmente lorsque l'on diminue l'épaisseur de la couche. Ce résultat signifie que le mode de plus basse énergie est un mode uniforme ou tout du moins, un mode très proche de ce dernier, tandis que le mode de plus haute excitation correspond à une PSSW. Ce résultat prouve que l'on pourra extraire la raideur de spin de l'écart fréquentiel entre les modes.

Procédure de détermination de K_s et D_{ex}

On commence par ajuster les courbes expérimentales pour en retirer les deux fréquences de précession des modes d'onde de spin. A partir des deux fréquences mesurées, la procédure de détermination de K_s et D_{ex} est la suivante :

1. En utilisant les K_i et l'Eq. 9.8, on calcule la valeur de la fréquence attendue pour le mode 0 en ajustant la valeur de K_s si nécessaire pour reproduire la plus basse fréquence expérimentale.
2. En supposant l'observation d'un mode 2, on ajuste la fréquence du deuxième mode avec une valeur de D_{ex} afin que celle-ci corresponde à la valeur expérimentale de la fréquence la plus élevée.

Lorsque K_s est non nul, la position du mode 0 dépend un peu de la valeur de D_{ex} . On réapplique alors itérativement les étapes 1 et 2 jusqu'à ce qu'il y ait convergence entre les fréquences calculées et observées.

Une anisotropie de surface faible

La fréquence du mode le plus bas étant légèrement différente de celle calculée d'après les données de FMR (< 0.5 GHz), nous avons envisager plusieurs cas de figure.

1. **Conditions aux limites symétriques** : on trouve $K_s^\pm = -7 \mu\text{J m}^{-2}$, et $D_{ex} = 3.4 \pm 0.3 \text{ T nm}^2$.
2. **Conditions aux limites asymétriques** : en laissant une surface sans piégeage, on trouve $K_s^- = -7 \mu\text{J m}^{-2}$ avec $K_s^+ = 0$ et $D_{ex} = 2.84 \pm 0.3 \text{ T nm}^2$.
3. **Conditions libres en surface** : en supposant aucune anisotropie de surface, la fréquence du mode 0 s'obtient en réduisant $K_{4\parallel}$ de 20 % et on obtient $D_{ex} = 3.05 \pm 0.3 \text{ T nm}^2$.

Suivant le cas envisagé, la valeur de D_{ex} ne change que très peu. Le cas où l'on fait varier les K_i représente une sorte d'intermédiaire entre des conditions aux limites symétriques et asymétriques pour la valeur de D_{ex} . Toutefois à chaque fois que nous considérons la présence d'une anisotropie de surface, celle-ci est relativement faible et peut varier d'un point à l'autre de l'échantillon.

Que l'on considère des conditions symétriques ou asymétriques ou encore l'absence d'anisotropie de surface, ces expériences permettent de déterminer D_{ex} avec une bonne précision. De manière générale, par cette approche, la barre d'erreur n'est déterminée que par l'incertitude sur l'épaisseur de l'échantillon par la formule $2D_{ex}\Delta L/L$ (nous avons pris $\Delta L/L = 5\%$). On peut noter également une légère dépendance de la fréquence du mode uniforme avec l'épaisseur mal reproduite dans tous les cas de figure étudiés ici. Dans les faits, l'évolution du mode 0 dépend plus de la position sur l'échantillon que de son épaisseur comme le montre la Fig. 9.6b en comparant les deux points avec des épaisseurs de 50 nm, ce qui irait dans le sens d'une variation des constantes d'anisotropie seulement. Nous sommes donc probablement dans un cas où $K_s = 0$ ou est très faible (en divisant par l'épaisseur de la couche, $K_s = -130 \text{ J m}^{-3}$ ce qui reste une valeur 3 fois plus faible que la plus faible des constantes).

Notons que l'utilisation de notre modèle suppose une aimantation homogène dans l'épaisseur de la couche ce qui a été vérifié sur un échantillon provenant de la même plaque récemment par des expériences de XMCD en synchrotron par Tonerre *et al.*³. Les auteurs ont ainsi pu montrer qu'il était constitué d'une couche aimantée uniformément dans le plan de 49 nm d'épaisseur, ainsi que d'une couche de 2 nm d'oxyde en surface non aimantée. La présence d'un tel oxyde est connue dans (Ga,Mn)As (voir par exemple Haghighi *et al.* [65]), l'oxygène se liant facilement avec les Mn proches de la surface.

L'expérience en fonction de l'épaisseur permet ainsi de démontrer que nous sommes bien en présence de modes d'ondes de spin reliés par l'échange ce qui nous permet d'extraire la valeur de la raideur de spin D_{ex} .

³Communications privées non publiées

9.2.3 Comparaison des D_{ex} dans la littérature : identification du second mode

Avant de continuer, comparons la valeur de D_{ex} obtenue ci-dessus avec les valeurs de la littérature obtenues par méthode pompe-sonde dans (Ga,Mn)As. En pompe-sonde la constante d'échange n'a pu être mesurée que par Wang *et al.* [199] et par Nemec *et al.* [123][181].

Wang *et al.* ont considéré que le second mode observé était un mode pair et ont trouvé pour des échantillons de (Ga,Mn)As de 120 nm $D_{ex}=25 \text{ T nm}^2$, et pour des échantillons de 71 nm et 47 nm $D_{ex}=5.4 \text{ T nm}^2$. Pour les échantillons de 47 nm et 71 nm, la valeur de l'échange est comparable à ce que nous mesurons. L'écart pour l'échantillon plus épais de 120 nm s'explique par une aimantation probablement inhomogène dans la couche rendant ainsi l'analyse incorrecte.

Nemec *et al.* au contraire supposent que le second mode est un mode impair et trouvent une valeur pour D_{ex} de 20 T nm², pour un échantillon de (Ga,Mn)As [123] et de 16 T nm² pour un échantillon de (Ga,Mn)(As,P) [183], avec des épaisseurs de 50 nm, optimisés pour obtenir des couches de bonnes qualités ($T_c > 120 \text{ K}$). Afin de bien vérifier l'homogénéité de l'aimantation dans la couche, les auteurs ont également réalisé un test en fonction de l'épaisseur afin d'identifier les ondes de spin dans le cas de (Ga,Mn)As. Si les auteurs avaient supposé un mode pair (ou nous un mode impair), la valeur de D_{ex} aurait été divisée (multipliée) par 4 et on retombe sur des valeurs comparables. Leur supposition d'un mode impair est faite par analogie avec ce qui se passe dans les métaux où à cause de l'absorption, on peut exciter et détecter tous les modes pourvu qu'ils aient une amplitude non nulle à la surface.

Les valeurs pour D_{ex} dans la littérature du pompe-sonde semblent donc être en accord avec la nôtre sous réserve de la bonne identification du mode supérieur. Le noeud du problème est qu'en pompe-sonde rien ne permet de faire la distinction entre ces deux types de modes. Supposons comme le fait Wang *et al.* que le signal détecté est uniquement dû à la moyenne de l'aimantation du mode i dans la couche (A_i). Considérant que nous sommes probablement dans un cas où $K_s = 0$, l'aimantation moyenne des modes pairs ou impairs serait également nulle et on ne devrait observer que le mode uniforme. En prenant en compte la présence de l'absorption et des déphasages optiques (ce que nous développerons par la suite dans la section 9.3), le problème ne se résout pas plus car dans ce cas tous les modes pourraient être observables.

De plus, contrairement à ce que supposaient Wang *et al.* [199], tenir compte de l'anisotropie de surface ne résout pas non plus le problème. En supposant des conditions symétriques, seul un mode 2 peut être observé avec un rapport $A_2/A_0 = 0.2$ et $A_1/A_0 = 0$. Le mode 1 pourrait en revanche s'observer avec des conditions asymétriques, sûrement plus proche de notre système physique. En supposant l'observation du mode 1 et en prenant une valeur 4 fois plus grande pour D_{ex} environ, on trouverait $A_1/A_0 = 0.26$.

Expérimentalement, le rapport entre des amplitudes est plus proche de 0.4. Considérer $K_s = 0$ ou non ne résout donc pas le problème de la nature de ce deuxième mode. Pour déterminer la nature du mode observé de façon sûre, nous avons comparé les valeurs de raideur de spin à elles obtenues par d'autres techniques expérimentales.

9.2.4 Comparaison avec la FMR

La première technique dont nous avons cherché à comparer les données est la FMR, même si celle-ci se base également sur l'observation et la numérotation des modes de spin. Strictement

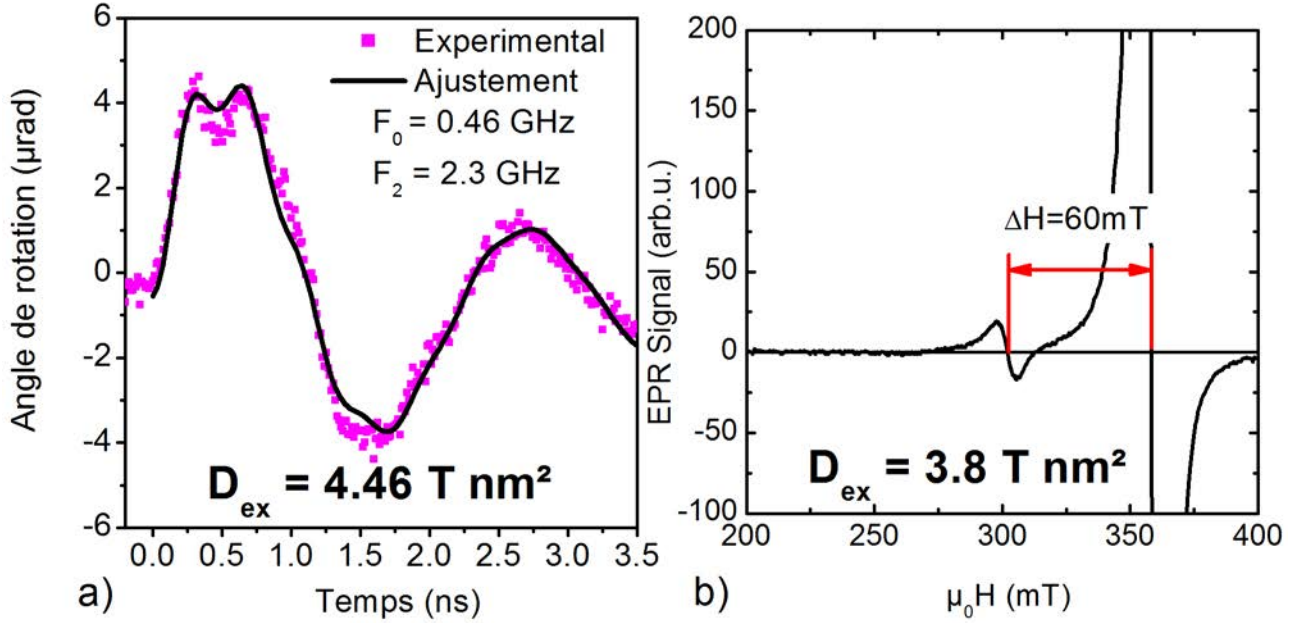


Figure 9.7: **a** : Signal dynamique avec un champ magnétique de -5 mT appliqué suivant [110] (en symbole) et la courbe d'ajustement associée (en trait plein). **b** : Signal FMR sous champ dans le plan à 40 K avec une fréquence d'oscillation de 9.34 GHz.

Echantillon $Mn_{6.64}P_{6.64}$; **a** : $T=12 \text{ K}$, $F_{pompe}=1.5 \mu J \text{ cm}^{-2}$, $F_{sonde}=0.7 \mu J \text{ cm}^{-2}$

parlant, la FMR est sensible la moyenne de l'aimantation dans la couche, celle-ci étant différente de 0 uniquement lorsque l'on tient compte d'une anisotropie de surface. Le problème est que du fait des faibles valeurs de l'anisotropie de surface, les modes d'ondes de spin non uniforme sont difficilement observables car leurs intégrales sont quasi nulles. Néanmoins lorsque un mode est observé, on peut directement comparer les résultats donnés par les deux techniques sur un même échantillon.

Sur $Mn_7P_{4.3}$ aucun mode autre que le mode uniforme n'a été observé en FMR ce qui va dans le sens de $K_s = 0$, et qui serait en accord avec notre conclusion sur K_s en TRMOKE. Par contre sur $Mn_{6.64}P_{6.64}$ les données FMR ainsi que les données pompe-sonde montrent clairement une onde de spin en plus du mode uniforme, lorsque le champ est dans le plan Fig. 9.7. En supposant un mode pair et aucune anisotropie de surface, on trouve en pompe-sonde par la technique décrite précédemment 4.4 T nm^2 . Pour calculer D_{ex} en FMR, on calcule l'écart des champs de résonance des deux ondes de spin en utilisant l'Eq. 9.8, avec $f = 9.4 \text{ GHz}$.

Pour analyser les données FMR, on suppose une anisotropie de surface nulle. En prenant les deux modes en $k_b = 0$ et $k_b = 2\pi/L$, pour une valeur $\Delta H_r = 60 \text{ mT}$ et $f = 9.4 \text{ GHz}$, on obtient $D_{ex} = 3.8 \text{ T nm}^2$ (Fig. 9.7b). On a alors une correspondance des données FMR et TRMOKE. Cette correspondance n'est pas fortuite et a été observée sur tous les échantillons où la réalisation de cette analyse a été possible.

Toutefois, le signal donnée par le mode 2 est beaucoup plus faible que celui du mode uniforme ce qui est un signe d'une faible anisotropie de surface (proche de 0) donnant une moyenne de l'aimantation proche de 0. Cependant le mode pair et impair présenterait les mêmes caractéristiques. La FMR ne nous permet alors que de confirmer les valeurs trouvées, mais pas de

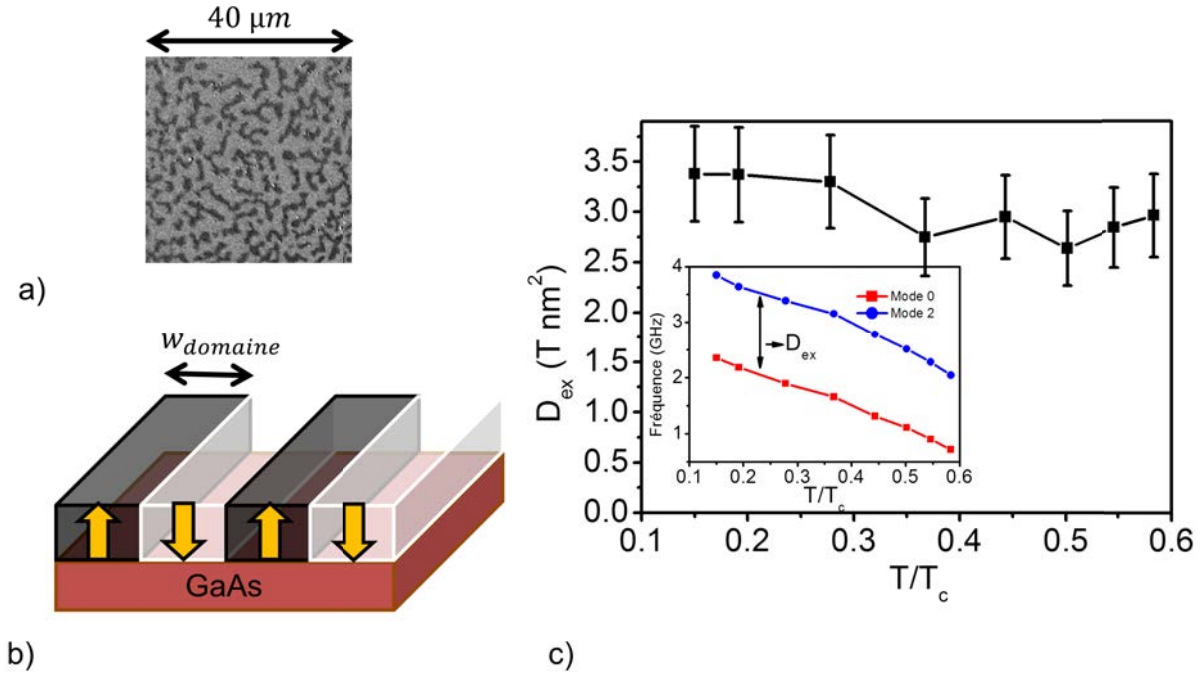


Figure 9.8: **a**: Image obtenue en microscopie Kerr sur l'échantillon de l'équipe de Nemec *et al.* (Mn_6P_{10}) ayant servi dans [183] à $T=95\ \text{K}$ ($T/T_c = 0.86$). **b** : Schéma représentant l'organisation à $T=95\ \text{K}$. **c** : D_{ex} en fonction de la température normalisée par la $T_c (=85\ \text{K})$ mesuré en TRMOKE sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$. En encart est représentée l'évolution des fréquences de précession en fonction de la température normalisée par T_c .

trancher entre la nature des modes.

9.2.5 Comparaison avec les domaines magnétiques

Sur certains échantillons à aimantation perpendiculaire on peut observer par microscopie magnéto-optique une auto-organisation des domaines Up et Down en forme de rubans avec une période (w_{domaine}) (Fig. 9.8a et b). Dans d'autres cas, on peut observer la présence de domaines de type ruban accrochés à des centres de piégeages. Ces observations permettent d'extraire la raideur de spin [65] [64]. Lorsque cette auto-organisation est présente, il suffit de mesurer la périodicité des lamelles pour remonter à D_{ex} . Lorsque des lamelles piégées sont observées, c'est la largeur de ces lamelles qui permet de déterminer D_{ex} .

Ces techniques présentent l'avantage que la mesure de l'échange est alors indépendante d'une numérotation quelconque. L'inconvénient est que la valeur de l'échange pourrait être dépendante du type de paroi que l'on considère et de l'épaisseur. Le modèle que nous utilisons ne prend en compte que des parois de Bloch alors que des parois mixtes Bloch-Néel sont obtenues par simulation micromagnétique [65].

Le modèle de ruban a été appliqué par Gourdon *et al.* [64] sur Mn_7P_0 et les auteurs ont pu déduire $D_{\text{ex}}=5.2\ \text{T nm}^2$. Dans cette thèse, nous avons étudié Mn_8P_0 et $\text{Mn}_{10.4}\text{P}_0$ par TRMOKE. Les valeurs de la raideur de spin obtenues pour ces deux échantillons sont respectivement de $4.8\ \text{T nm}^2$ et $4.75\ \text{T nm}^2$. Le fait que nous obtenions deux valeurs de D_{ex} identiques pour des échantillons à concentration en Mn différentes amène à penser que la raideur de spin n'est pas

influencée par la concentration en Mn sur la plage observée. De plus, le fait que l'étude des domaines donnent le même résultats que le TRMOKE semble indiquer que nous observons bien un mode pair.

Pour confirmer ce résultat, nous avons étudié un même échantillon par les trois techniques (TRMOKE, FMR et auto-organisation des domaines). Sur $\text{Mn}_{10.4}\text{P}_8$, on trouve en TRMOKE 5.4 T nm^2 et en FMR 4 T nm^2 . Dans le cas de l'auto-organisation de domaines (thèse de Haghighoo *et al.*[65]), on trouve une valeur de 10.1 T nm^2 , une valeur certes plus élevée que les mesures FMR et TRMOKE mais beaucoup plus proche de la raideur de spin trouvée avec l'hypothèse d'un second mode pair plutôt que d'un mode impair (qui donnerait $D_{ex} = 20.8 \text{ T nm}^2$). Cette valeur élevée peut être due au fait que les parois de domaines sont des parois mixtes Bloch-Néel dans la couche, alors que nous supposons des parois de Bloch dans le modèle d'auto-organisation.

De plus, nous avons appliqué la méthode de l'auto-organisation en domaines à un échantillon du groupe de Nemec *et al.* (Mn_6P_{10} , Fig. 9.8a) qui a récemment fait l'objet d'une publication [183] avec une valeur de $D_{ex} = 16.4 \text{ T nm}^2$ en TRMOKE en supposant un second mode impair. Une auto-organisation a pu être observée à 95 K et donne $D_{ex} = 4 \text{ T nm}^2$ soit un facteur 4 par rapport aux analyses de Nemec *et al.* ce qui confirme que le second mode en TRMOKE doit être un mode pair. Il est intéressant de noter que l'échantillon de Nemec *et al.* est moins épais que ceux utilisées par Haghighoo *et al.* et nous mêmes ce qui donne un caractère plus Bloch que Bloch-Néel aux parois ([65]), expliquant probablement un meilleur accord entre le modèle des domaines et les expériences de TRMOKE.

Un dernier doute peut persister considérant que la mesure a été effectuée à $0.85T_c$. Toutefois nos propres expériences TRMOKE sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ montrent que D_{ex} ne diminue quasiment pas jusqu'à $0.6T_c$ confortant alors la valeur de D_{ex} mesurée à 95 K pour l'échantillon de Nemec *et al.* (Fig. 9.8c). Le second mode est bien un mode d'onde de spin pair.

9.2.6 Conclusion sur l'identification des modes

Pour conclure, en recoupant les résultats donnés par 3 techniques différentes, nous avons déterminé que les deux modes d'ondes de spin sont le mode uniforme et un mode pair en approximativement $k_b = \frac{2\pi}{L}$.

9.3 Conditions d'observation des ondes de spins : modèle de couche finie

Suivant les travaux de Wang *et al.*[199], nous sommes partis de l'hypothèse que le signal mesuré était un signal moyen sur la couche, défini par $\langle \delta\theta \rangle = 1/L \int_{-L/2}^{+L/2} \hat{\delta\theta}(z) dz$. Néanmoins dans la section précédente, nous avons prouvé que l'anisotropie de surface était très proche de 0 dans nos échantillons : à part pour le mode uniforme on a alors $\langle \delta\theta \rangle = 0$ pour tous les modes supérieurs et seul le mode uniforme serait visible. L'hypothèse de départ nécessite donc d'être affinée pour tenir compte de l'épaisseur de la couche connue pour influencer sur les signaux magnéto-optiques ([193]).

Dans cette section, nous allons utiliser un modèle développé par Catherine Gourdon prenant en compte la réponse magnéto-optique d'un échantillon ayant une aimantation variant continu-

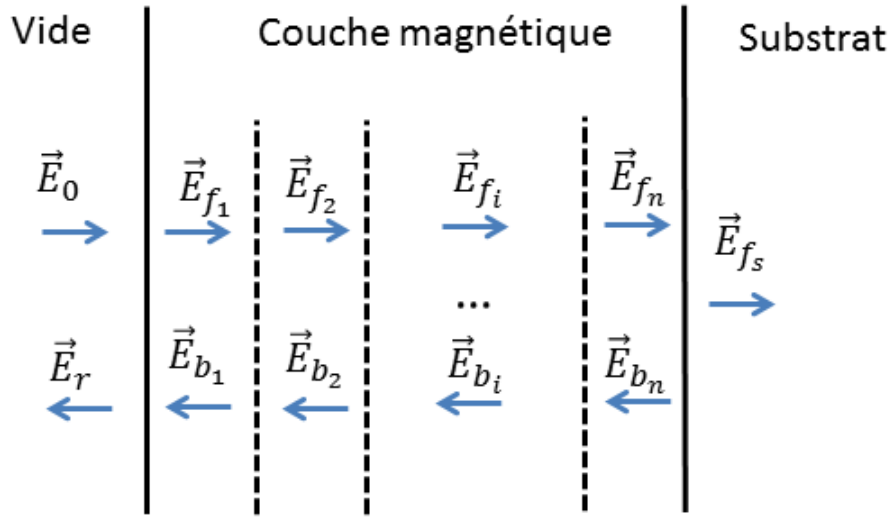


Figure 9.9: Schéma représentant la modélisation des effets magnéto-optique dans un modèle de couche finie.

ment dans une couche magnétique d'épaisseur finie. Nous calculerons l'effet Kerr polaire et nous considérerons un échantillon à aimantation perpendiculaire. Cette démarche est équivalente à considérer un échantillon à aimantation planaire et à réaliser des développements sur la petite composante de l'aimantation en tenant compte de $\delta\theta(t)$. Les deux versions de ce calcul ont été réalisées, néanmoins seule la version avec $M_\perp$ sera présentée ici, la deuxième version étant plus complexe.

9.3.1 Matrice de passage

On considère une couche magnétique que l'on discrétise en petites tranches d'épaisseur dz , numérotée i . Dans chacune de ces tranches, l'onde $\vec{E}_i$ sera la somme d'une onde se propageant vers les z positif $\vec{E}_f$, et vers les z négatifs $\vec{E}_b$ que l'on décomposera suivant les vecteurs propres du système. On a alors :

$$\begin{aligned} \vec{E}_i = & \alpha_f \vec{E}_{i+} e^{-i\omega(t - \frac{n_+ z}{c})} + \alpha_b \vec{E}_{i+} e^{-i\omega(t + \frac{n_+ z}{c})} \\ & + \beta_f \vec{E}_{i-} e^{-i\omega(t - \frac{n_- z}{c})} + \beta_b \vec{E}_{i-} e^{-i\omega(t + \frac{n_- z}{c})} \end{aligned} \quad (9.18)$$

avec $\vec{E}_{i+} = \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix}$ et $\vec{E}_{i-} = \begin{pmatrix} i \\ 1 \end{pmatrix}$ et $\alpha_{f,b} = \frac{E_{x_{f,b}} - iE_{y_{f,b}}}{2}$, $n_\pm = n_i \sqrt{1 \pm Qm_i}$ et

$\beta_{f,b} = \frac{-iE_{x_{f,b}} + E_{y_{f,b}}}{2}$ définis à partir des vecteurs propres. Dans un premier temps, nous allons calculer la matrice de passage entre une tranche i et j en utilisant les conditions de continuité des composantes tangentielles de $\vec{E}_i$ et $\vec{H}_i$ à l'instar de ce que nous avons réalisé précédemment pour le calcul de l'effet Voigt (Partie II, chapitre 3).

Pour une tranche i , d'indice n_i avec une aimantation m_i , on rappelle l'expression du tenseur diélectrique ϵ_r (cf Partie II Chapitre 1) et on calcule les vecteurs propres $\vec{D}_+$ et $\vec{D}_-$:

$$\epsilon_r = n_i^2 \begin{bmatrix} 1 & -iQm_i & 0 \\ iQm_i & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \Rightarrow \vec{D}_+ = \frac{n_i^2(1+Qm_i)}{2} \vec{E}_+; \quad \vec{D}_- = \frac{n_i^2(1-Qm_i)}{2} \vec{E}_- \quad (9.19)$$

En utilisant la relation entre $\vec{D}$ et $\vec{H}$, on obtient à l'interface entre deux milieux :

$$\begin{cases} H_x = \frac{-\alpha_f}{n_+} D_{y+} + \frac{\alpha_b}{n_+} D_{y+} - \frac{\beta_f}{n_-} D_{y-} + \frac{\beta_b}{n_-} D_{y-} \\ H_y = \frac{\alpha_f}{n_+} D_{x+} - \frac{\alpha_b}{n_+} D_{x+} + \frac{\beta_f}{n_-} D_{x-} - \frac{\beta_b}{n_-} D_{x-} \end{cases} \quad (9.20)$$

Pour une sous-couche d'indice i , la matrice M_{ij} donnant $\vec{E}_i$ à partir de $\vec{E}_j$ est alors :

$$M_{ij} = \frac{1}{t_{ij}} \begin{pmatrix} 1 & r_{ij} & Q_{ij} & -Q_{ij} \\ r_{ij} & 1 & -Q_{ij} & Q_{ij} \\ -Q_{ij} & Q_{ij} & 1 & r_{ij} \\ Q_{ij} & -Q_{ij} & r_{ij} & 1 \end{pmatrix}; \quad \begin{aligned} r_{ij} &= \frac{n_i - n_j}{n_i + n_j} \\ t_{ij} &= \frac{2n_i}{n_i + n_j} \\ Q_{ij} &= i(m_i - m_j)t_{ji}Q/4 \end{aligned} \quad (9.21)$$

Cette matrice est obtenue dans un cas très général où les indices de réfraction d'une couche i et d'une couche j peuvent être différents ce qui permet de prendre en compte les interfaces vide/-couche magnétique et couche magnétique/substrat. Le cas où $Q = 0$ redonne les coefficients de Fresnel de transmission et de réflexion.

9.3.2 Effet magnéto-optique

Pour calculer la réponse magnéto-optique due à une aimantation variable dans la couche, on considère la matrice de passage calculée que l'on applique sur chaque couche d'épaisseur dz avant de passer à la limite pour une couche continue en faisant tendre dz à 0. En surface, l'expression de $\vec{E}_0$ et $\vec{E}_r$ est donnée par :

$$\begin{pmatrix} E_{0x} \\ E_{rx} \\ E_{0y} \\ E_{ry} \end{pmatrix} = \left(\prod_{i=0}^{N-1} M_{i,i+1} M_{\phi,i+1} \right) M_{N,s} \begin{pmatrix} E_{f_{sx}} \\ 0 \\ E_{f_{sy}} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (9.22)$$

où $M_{\phi,i}$ représente la matrice de propagation des ondes électromagnétiques suivant les vecteurs propres du système :

$$M_{\phi,i} = \begin{pmatrix} e^{-i\phi_i} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{i\phi_i} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-i\phi_i} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{i\phi_i} \end{pmatrix} \quad (9.23)$$

avec $\phi_i = \frac{n_i \omega \delta z}{c}$.

On cherche à passer du cas discret au cas continu. On pose $E_{0x} = E_0 \cos \beta$ et $E_{0y} = E_0 \sin \beta$. On applique dans un premier temps l'Eq. 9.22 et on calcule les composantes E_{rx} et E_{ry} en prenant $n_i = n$ pour toutes les couches magnétiques. Puis on calcule le rapport E_{ry}/E_{rx} en développant au premier ordre en Q . Après simplification, on obtient :

$$\chi = \frac{E_{ry}}{E_{rx}} = \frac{-2nQ \sec^2 \beta}{n^2 - 1} \sin\left(\frac{n\delta z\omega}{c}\right) \left[m_1 e^{\frac{i n \delta z \omega}{c}} + m_2 e^{2\frac{i n \delta z \omega}{c}} + \dots + m_N e^{N\frac{i n \delta z \omega}{c}} \right] + \tan \beta \quad (9.24)$$

Pour calculer cette somme, on considère que z_i désigne le milieu de chaque tranche i . On aura donc $z_1 = \frac{\delta z}{2}$, $z_2 = \frac{3\delta z}{2}$, $z_3 = \frac{5\delta z}{2}$ En injectant ces expressions dans l'Eq. 9.24 et en généralisant pour N couches avec $\delta z = L/N$ (L l'épaisseur de la couche), on obtient :

$$\chi = \frac{-2nQ \sec^2 \beta}{n^2 - 1} \frac{\sin\left(\frac{n2\pi L}{N\lambda}\right)}{L/N} \sum_{j=1}^N m_j e^{\frac{4\pi i n z_j}{\lambda}} \frac{L}{N} + \tan \beta \quad (9.25)$$

Le passage au cas continu s'obtient en passant à la limite lorsque $N \rightarrow \infty$. On obtient alors directement en utilisant les formules donnant la rotation et l'ellipticité développées partie II chapitre 3 :

$$\delta\beta_K = \text{Re}\left[\frac{-4\pi}{\lambda} \frac{n^2}{n^2 - 1} Q \int_0^L \delta\theta(z) e^{i\frac{4\pi n z}{\lambda}} dz\right] \quad (9.26)$$

$$\delta\psi_K = \text{Im}\left[\frac{-4\pi}{\lambda} \frac{n^2}{n^2 - 1} Q \int_0^L \delta\theta(z) e^{i\frac{4\pi n z}{\lambda}} dz\right] \quad (9.27)$$

Ce résultat signifie que ce n'est pas la valeur moyenne de l'aimantation que nous observons, mais une moyenne pondérée par un facteur de phase $e^{\frac{i\pi n_{0r} z}{\lambda}}$ et l'absorption $e^{-\alpha_{abs} z}$ définie par $\alpha_{abs} = 4\pi n_{0i}/\lambda$ avec $n = n_{0r} + i n_{0i}$. L'absorption va déséquilibrer les poids des intégrales. Dans le cas d'un matériau fortement absorbant (par exemple, $\alpha_{abs} = 76 \mu\text{m}^{-1}$ dans le Ni [132]), les signaux magnéto-optiques ne seront sensibles qu'à l'amplitude des modes proches de la surface. Dans (Ga,Mn)As a contrario, la profondeur de pénétration est grande ($\alpha_{abs} = 3.6 \mu\text{m}^{-1}$) et c'est le facteur de phase qui modifie les intégrales des modes de sorte à les rendre non nulles.

En développant le terme $e^{i\frac{4\pi n_{0r} z}{\lambda}}$, on obtient pour la rotation (idem pour l'ellipticité) :

$$\delta\beta_K = \text{Re}\left[\frac{-4\pi}{\lambda} \frac{n^2 Q}{n^2 - 1} \int_0^L \delta\theta(z) e^{-\alpha_{abs} z} \left(\cos \frac{4\pi n_{0r} z}{\lambda} + i \sin \frac{4\pi n_{0r} z}{\lambda} \right) dz\right] \quad (9.28)$$

Les termes oscillants à l'intérieur de l'intégrale couplés avec la partie réelle et imaginaire du coefficient Q vont avoir une grande incidence sur l'amplitude des modes en fonction de l'épaisseur de la couche. Le poids des intégrales va dépendre principalement des quantités n_{0r} et n_{0i} avec Q_r et Q_i . Toutefois puisque nous sommes dans un cas où $n_{0r} \gg n_{0i}$, les quantités dominantes seront $n_{0r} Q_i$ et $n_{0r} Q_r$. Dans le cas où toutes les ondes de spins sont excitées, pour certaines épaisseurs, à cause de ces termes oscillants, on peut ne pas être en mesure d'observer certaines ondes (Fig. 9.10a). Suivant les valeurs du paramètre Q , on peut se retrouver dans un cas où aucune précession ne soit visible. Une conséquence supplémentaire sera une évolution du rapport des amplitudes des deux modes d'ondes de spin en fonction de l'épaisseur de la couche.

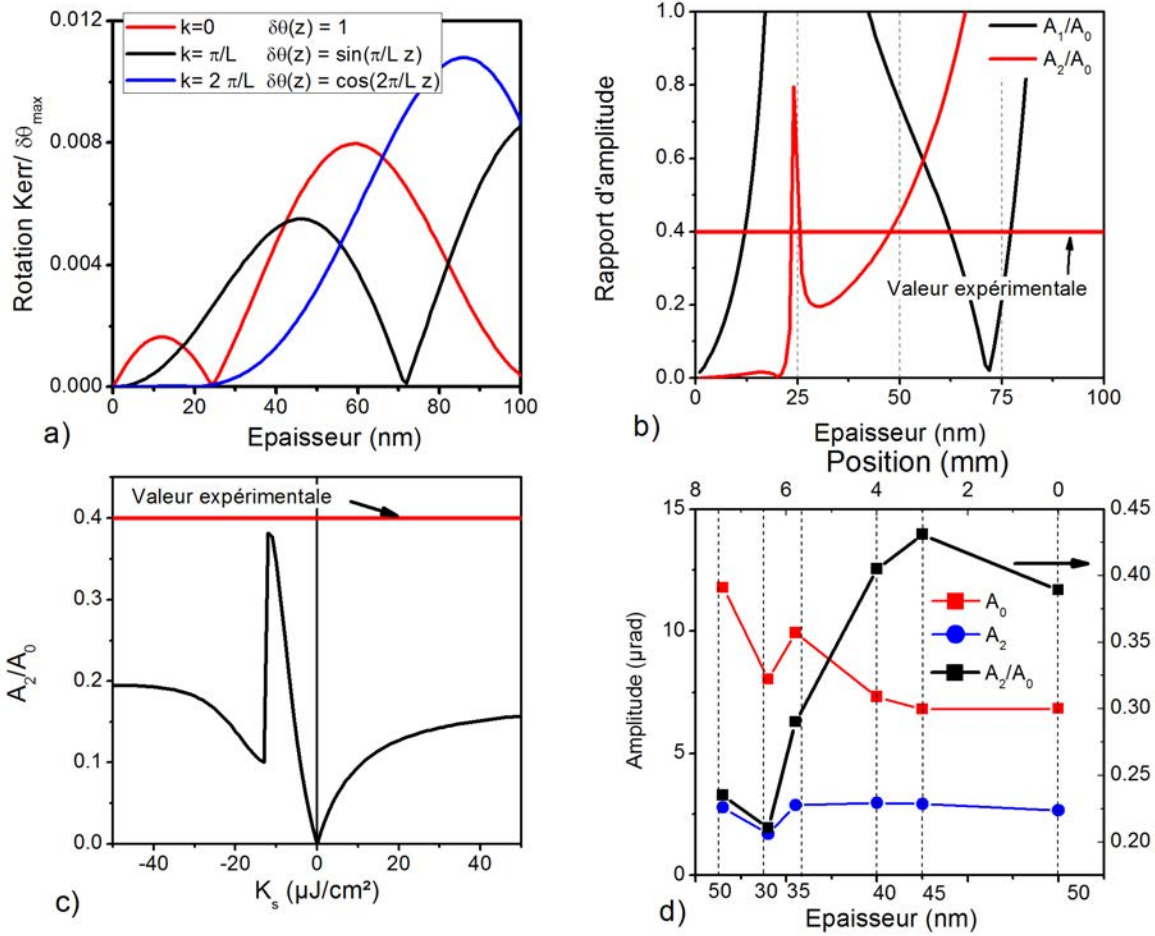


Figure 9.10: **a** : Amplitudes des modes d'ondes de spin pour $K_s = 0$ en fonction de l'épaisseur suivant l'Eq. 9.26. **b** : Rapport des amplitudes des modes d'ondes de spin en fonction de l'épaisseur pour $K_s = 0$. **c** : Rapport des amplitudes A_2/A_0 en fonction de K_s avec l'hypothèse $\langle \delta\theta_{\text{moy}} \rangle = 1/L \int_{-L/2}^{+L/2} \delta\theta(z) dz$. **d** : Amplitude expérimentale des deux modes d'ondes de spin mesurées en fonction de l'épaisseur de la couche et de la position sur l'échantillon.

Echantillon $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$; $n_0 = 3.705 + i0.228$; $Q = 0.0135 + i0.0135$; $\lambda = 700 \text{ nm}$

9.3.3 Amplitudes des ondes de spin

Nous allons désormais montrer que le modèle couche finie permet l'observation d'onde de spin autre que le mode uniforme, même dans le cas de faibles anisotropies de surface. Les paramètres clefs du modèle tel que Q et n_0 n'ayant pas été mesuré sur tous les échantillons, nous utilisons les paramètres de $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$ qui ont été obtenus par ellipsométrie⁴ pour n_0 ($n_0 = 3.703 + i0.228$ à $\lambda = 700 \text{ nm}$), et par l'étude de l'ellipticité et la rotation Kerr avec des cycles d'hystérésis pour Q ($Q = 0.0135 + i0.0135$ à $\lambda = 700 \text{ nm}$). Encore une fois, nous allons nous intéresser au rapport en amplitude des modes de plus haute fréquences sur le mode de plus basse fréquence (A_i/A_0). Expérimentalement sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4.3}$, ce rapport est d'environ 0.4 sur la Fig. 9.10d pour la couche de référence.

En prenant en compte le modèle de couche finie, on peut constater qu'en théorie à 50 nm on devrait être en mesure d'observer un mode uniforme, un mode pair et impair. Dans les

⁴Faites par Bruno Gallas, INSP

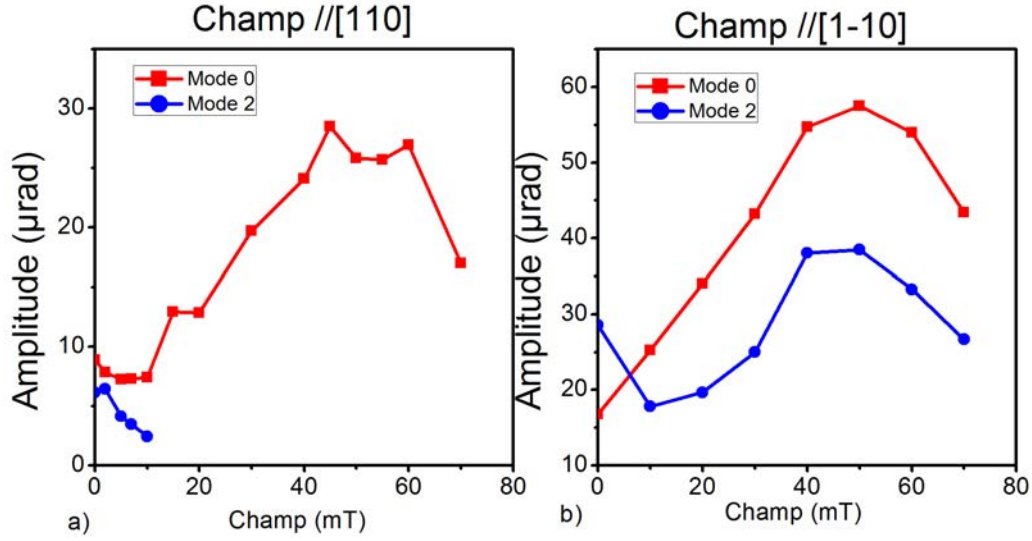


Figure 9.11: Amplitude en fonction du champ appliqué suivant **a** [110] et **b** suivant [1-10] pour les deux modes d'ondes de spin.

Echantillon $Mn_7P_{4.3}$; $T=12$ K ; $F_{pompe}=1.5 \mu J cm^{-2}$; $F_{sonde}=0.7 \mu J cm^{-2}$

faits, nous n'avons jamais observé 3 ondes de spin dans nos signaux ce qui signifie que c'est l'excitation et non la détection qui est le mécanisme déterminant. Pour pouvoir exciter uniquement le mode pair et uniforme, il faut que l'excitation possède non seulement les composantes de Fourier temporelles (pour pouvoir exciter de multiples fréquences), mais aussi spatiales ce qui signifie que son profil possède une forme se rapprochant d'un mode pair.

Sachant que nous n'avons qu'un mode uniforme et un mode pair, on peut s'intéresser au rapport des amplitudes A_2/A_0 . Expérimentalement, le rapport que l'on mesure sur $Mn_7P_{4.3}$ est proche de 0.4 pour la couche de référence⁵ Fig. 9.10d. Pour une épaisseur de 50 nm, le modèle "couche finie" permet de tenir compte d'une forte contribution de la seconde onde de spin avec un rapport $A_2/A_0 = 0.45$ pour $K_s = 0$ ce qui est en accord avec l'expérience en faisant l'hypothèse (forte) que ces deux modes sont excités de manière équivalente. Ainsi l'utilisation de ce modèle nous évite ainsi de faire appel à des grandes valeurs de K_s pour expliquer la présence du mode pair comme ce qui a été effectué par Wang *et al.*[199](Fig. 9.10c).

Cependant, la dépendance de A_0 et A_2 avec l'épaisseur n'a pas été observée dans nos expériences. Ceci est très certainement due au fait que l'on convolue plusieurs effets comme l'excitation. Comme on peut l'observer sur la Fig. 9.10d, l'amplitude des modes semblent plus dépendre de la position sur l'échantillon que de l'épaisseur de la couche et des expériences complémentaires seraient requises. Néanmoins, nous observerions bien un rapport A_2/A_0 diminuant (Fig. 9.10d) mais plus à cause de A_0 qui augmente, et non d'une diminution plus rapide de A_2 par rapport à A_0 en fonction de l'épaisseur comme le laisserait suggérer les Fig. 9.10a et b

Le modèle "couche finie" permet d'expliquer l'observation d'une seconde fréquence et en pratique, nous avons observé une seconde fréquence de précession dans tous les échantillons sauf un. Ceci laisserait à penser que le mécanisme à l'origine de l'excitation du mode pair est général dans $(Ga,Mn)(As,P)$. Toutefois, l'excitation de ce dernier s'est révélée extrêmement

⁵L=50 nm

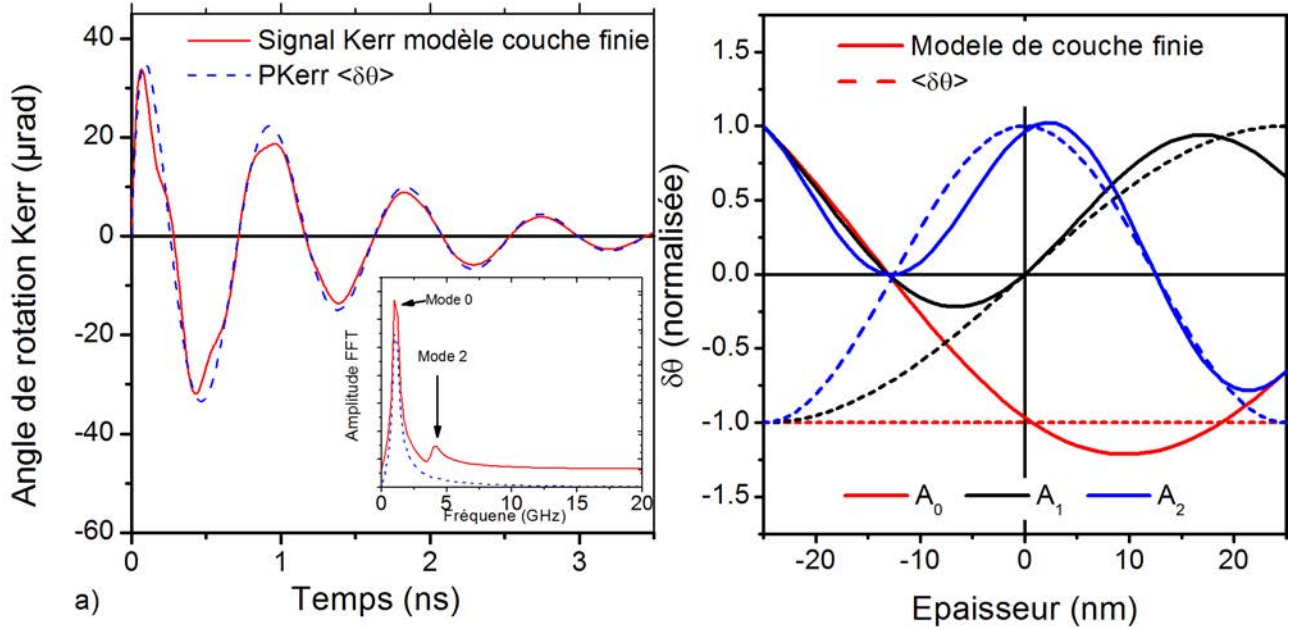


Figure 9.12: **a** Comparaison d'un signal magnéto-optique simulé avec le modèle couche finie ou en prenant une moyenne de l'aimantation dans la couche. **b** Profil apparent des ondes de spin. Les courbes en pointillés correspondent au cas où l'on observe l'aimantation moyenne, les traits plein, le cas avec le modèle couche finie.

Paramètres utilisés : échantillon $Mn_7P_{3.6}$, $n_{0r} = 3.7$, $n_{0i} = 0.23$, $Q_r = Q_i = 0.013$, $L = 50$ nm

sensible au champ magnétique, aussi bien par son intensité que par son sens d'application. Par exemple sur $Mn_7P_{4.3}$, en appliquant un champ suivant $[1-10]$ 2 ondes de spin peuvent être observées même à fort champ, tandis qu'en appliquant un champ suivant $[110]$, la deuxième onde disparaît dès 10 mT. Aucune explication à ces phénomènes n'a été trouvée et la question de l'excitation d'un mode pair et de la non excitation d'un mode impair reste une question ouverte de nos travaux.

9.3.4 Conclusion sur le modèle de couche finie

Pour conclure cette partie, nous proposons d'illustrer l'effet du modèle de couche finie en portant dans la Fig. 9.12a un signal magnéto-optique simulé à partir des K_i de $Mn_7P_{3.6}$ ⁶ selon que l'on considère le modèle de couche finie, ou $\langle \delta\theta_{moy} \rangle = 1/L \int_{-L/2}^{+L/2} \delta\theta(z) dz$. Pour simuler cette courbe, nous avons considéré une excitation ayant un profil spatial du type $1 + 0.5 \cos \frac{2\pi}{L} z$, ce qui permet de pouvoir exciter un mode uniforme et un mode 2 (pair) avec un rapport pour les amplitudes comparables à l'expérience ($A_2/A_0 = 0.23$), et $K_s^\pm = -7 \mu J cm^{-2}$. Ici K_s nous sert de paramètre d'ajustement pour faire coller la fréquence du mode quasi uniforme calculée avec celle observée. En utilisant le modèle "couche finie", un deuxième mode est clairement observable alors qu'en utilisant simplement la valeur moyenne de l'aimantation Fig. 9.12b, on ne peut observer qu'un mode uniforme.

Nous voyons donc qu'une description précise des effets magnéto-optiques permet d'expliquer l'observation d'un mode ayant une aimantation moyenne nulle dans la couche. Le modèle

⁶Cet échantillon a été choisi à fin pédagogique à cause de l'écart fréquentiel des deux modes.

présenté ici est prometteur pour expliquer la présence d'ondes de spin ayant une aimantation moyenne nulle ce qui n'enlève pas la possibilité de l'existence d'effets supplémentaires dus à une anisotropie de surface, même faible. Toutefois l'application complète de ce modèle nécessiterait des données précises des coefficients magnéto-optiques ce que nous n'avons pas pour tous les échantillons.

Chapitre 10

Determination de la constante de raideur de spin dans (Ga,Mn)(As,P)

Dès leurs débuts, nos études sur les ondes de spin ont été motivées par la mesure de la constante d'échange dans (Ga,Mn)(As,P). En effet, grâce à l'observation de plusieurs ondes de spin, nous avons été en mesure de remonter à D_{ex} et d'en étudier son évolution en fonction de la concentration en phosphore. L'échange est un paramètre au coeur de nombre de phénomènes magnétiques comme la déviation à basse température de la valeur de M_s par rapport au modèle de Weiss, ou encore la présence d'un pic dans la chaleur spécifique lorsque l'on s'approche de la T_c ou bien encore à la largeur des parois de domaines proportionnelle à la racine carrée de l'échange (plus les parois sont épaisses, plus elles se propagent rapidement sous champ magnétique donnant des vitesses de l'ordre de la centaine $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ dans Mn_7P_0 [188]).

10.1 Etat de l'art

Dans (Ga,Mn)(As,P), l'échange entre ions Mn est relié à l'interaction entre spin des porteurs et spin des Mn (J_{pd}) qui détermine les propriétés électroniques du système (splitting Zeeman, polarisation des trous, niveau de Fermi ... (voir Partie I chapitre 2.2.3)). L'échange étant un paramètre difficile à modifier, nous avons cherché à vérifier expérimentalement les premiers calculs ab-initio de Masek *et al.* [115] qui montraient une augmentation de l'échange avec le phosphore.

10.1.1 Résultats expérimentaux dans la littérature

Expérimentalement l'échange a été étudié principalement dans (Ga,Mn)As en fonction de la concentration en Mn. On peut classer les types d'expériences permettant de déterminer l'échange en deux catégories : celles qui utilisent explicitement les ondes de spins comme la TRMOKE et la FMR, et celles utilisant des propriétés magnétiques stationnaires comme les domaines magnétiques ou $M_s(T)$. Les ondes de spins ont été principalement utilisées pour déterminer D_{ex} , en FMR par Goennenwein *et al.* [62] Khazen *et al.* [86], Bihler *et al.* [17], Dreher *et al.*[47] et Liu *et al.*[105], et en TRMOKE par Wang *et al.* [199] et Nemec *et al.* [123]. La mesure de D_{ex} par des méthodes stationnaires est plus rare et a été réalisé par Potashnik *et al.* [136] qui ont extrait D_{ex} grâce à la valeur de $M_s(T)$ à basse température¹ et par Gourdon

¹Cette méthode n'est pas toujours valable car la forme de $M_s(T)$ peut différer d'une fonction de Brillouin suivant la densité de porteurs [42]

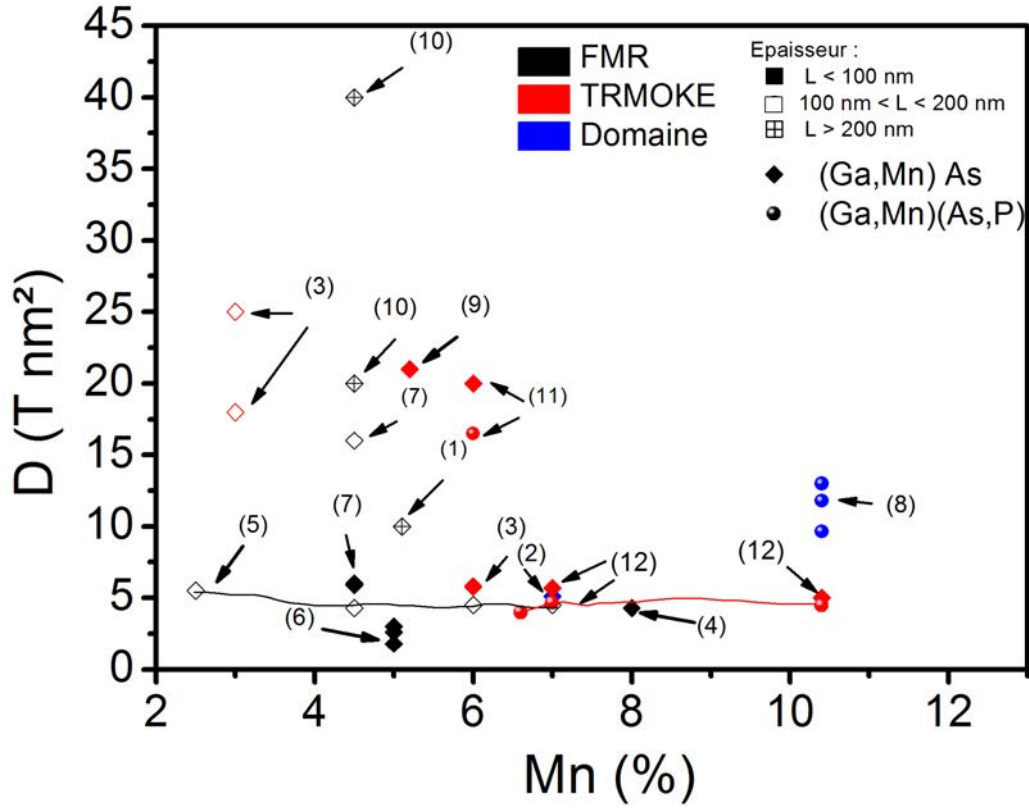


Figure 10.1: Raideur de spin en fonction de la concentration de Mn dans la littérature. Les symboles pleins sont pour des couches d'épaisseur inférieure à 100 nm, les évidés entre 100 et 200 nm, les évidés avec une croix dedans pour ceux supérieur à 200 nm. : (1) Goennenwein *et al.* [62], (2) Dourlat *et al.* [46], (3) Wang *et al.* [199], (4) Liu *et al.* [105], (5) Zhou *et al.* [218], (6) Khazen *et al.* [86], (7) Bihler *et al.* [17], (8) Haghighi *et al.* [65], (9) Nemec *et al.* [123], (10) Dreher *et al.* [47], (11) Tesarova *et al.* [181], (12) Shihab *et al.* [169].

et al.[64] à partir de l'étude des domaines magnétiques.

En comparaison de (Ga,Mn)As, (Ga,Mn)(As,P) n'a été que très peu étudié. Il n'existe actuellement que trois études (nous compris) s'intéressant à D_{ex} : la première celle de Haghighi *et al.* [65] en utilisant l'auto-organisation de domaines magnétiques sur des échantillons à forte concentration en phosphore ($\text{Mn}_x\text{P}_{>6}$) à aimantation hors-plan, celle de Tesarova *et al.* [181] sur Mn_6P_{10} ainsi que nous mêmes [169] sur une large gamme en phosphore. C'est cette dernière étude qui sera présentée ici.

Nous avons résumé les résultats dans la littérature pour (Ga,Mn)As et (Ga,Mn)(As,P) dans la Fig. 10.1 en fonction de la concentration en Mn nominale (tous les auteurs ne donnant pas systématiquement suffisamment d'information pour obtenir la concentration effective). Les valeurs montrent une certaine dispersion à cause des échantillons épais ($> 100 \text{ nm}$). Dans le cas de ce type d'échantillon, Nemec *et al.* [123] a démontré que de fortes valeurs de D_{ex} peuvent être obtenues ($D_{ex} > 60 \text{ T nm}^2$) uniquement à cause d'une aimantation très inhomogène. Nous ne prendrons donc pas en compte ces échantillons dans les prochaines discussions.

Pour les échantillons les moins épais, une tendance semble se dégager autour de la valeur de 5 T nm^2 , et ce pour différentes techniques, concentration en Mn et même épaisseur lorsque

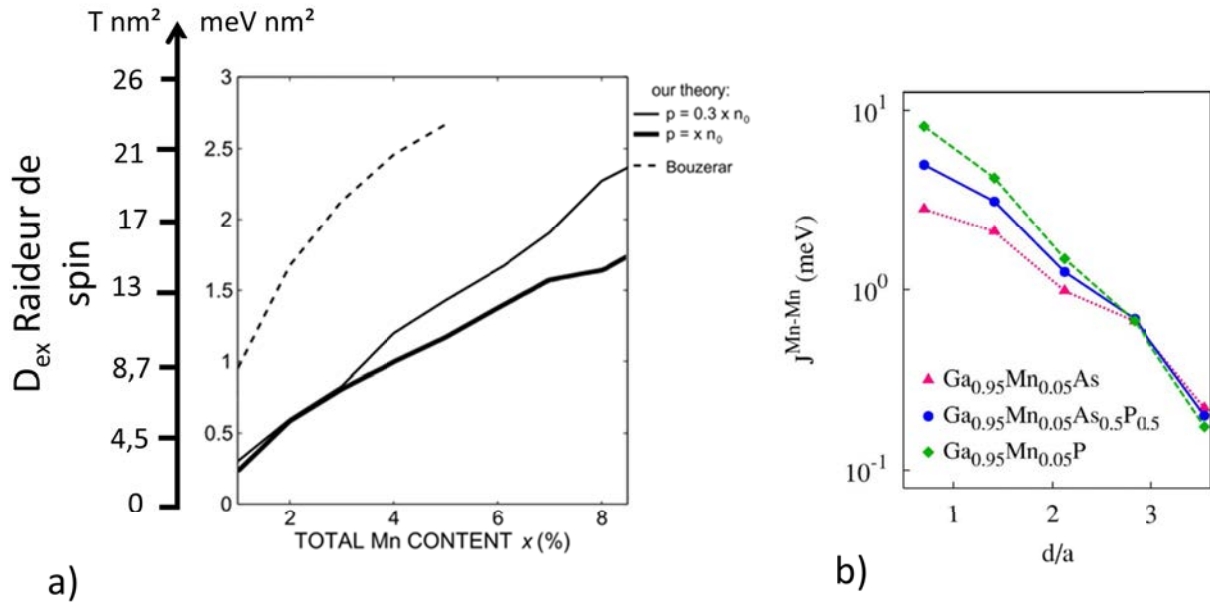


Figure 10.2: **a** : (Ref Warpachowska *et al.*[205]) évolution théorique de la raideur de spin (courbes noires) en fonction de la concentration en Mn. **b** : Effet de la concentration en P sur l'échange en fonction de la taille de la maille élémentaire (a).

celle-ci est faible (inférieure ou égale à 100 nm). En ce qui concerne $(\text{Ga},\text{Mn})(\text{As},\text{P})$, la seule valeur de Tesarova *et al.* [183] est presque 4 fois plus grande que celle de $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$, et celles de Haghgoo *et al.* [65] deux fois plus grandes.

10.1.2 Modélisation

Côté théorie, peu d'études se sont intéressées à $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$, la difficulté étant la complexité de la structure de bande, et le fait que $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ est un matériau désordonné en comparaison de métaux par exemple. Une étude a été menée par Bouzerar *et al.* [23] où les auteurs ont utilisé une méthode de champ moyen en tenant compte du désordre du système. Un des résultats de l'étude est une augmentation de D_{ex} avec la concentration en Mn. Les valeurs calculées sont relativement élevées par rapport à l'expérience, et montent jusqu'à 25 T nm^2 pour des échantillons de type Mn_4P_0 . Une contribution importante a été réalisée par Warpachowska *et al.* [205] [204] en utilisant un modèle de liaisons fortes, en repartant de l'hamiltonien du système. Encore une fois, les auteurs prédisent une augmentation avec la concentration en Mn, et les valeurs calculées sont deux fois plus fortes que celles de l'expérience.

Pour $(\text{Ga},\text{Mn})(\text{As},\text{P})$, Maseck *et al.* [115] ont suggéré un mécanisme permettant de contrôler la valeur de J_{pd} grâce à une réduction du paramètre de maille. À l'aide d'un calcul *ab-initio* pour une couche de $(\text{Ga},\text{Mn})(\text{As},\text{P})$ relaxé, celui-ci montre qu'il y aurait possibilité d'obtenir une augmentation de la constante d'échange en augmentant la concentration en phosphore. L'introduction du phosphore diminuant le paramètre de maille de $(\text{Ga},\text{Mn})(\text{As},\text{P})$, on aurait alors un renforcement de J_{pd} et donc a fortiori de l'échange. La réduction de la maille de $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ permettrait également de réduire les possibilités que les Mn se placent en position interstitielle ce qui entraînerait une augmentation de la T_c jusqu'au delà de la température ambiante.

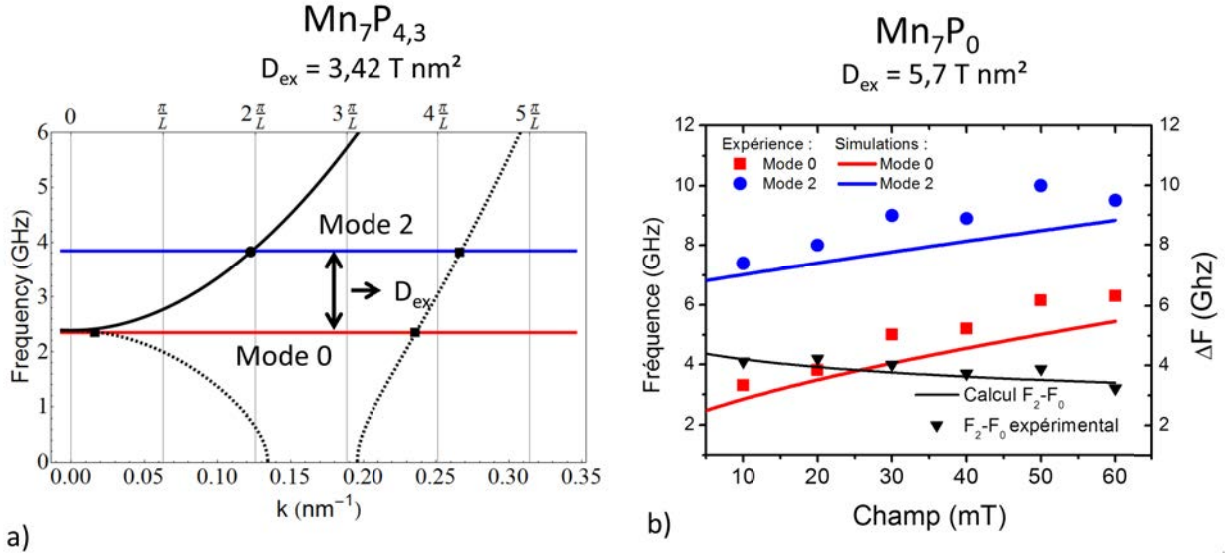


Figure 10.3: **a:** ($\text{Mn}_7\text{P}_{4,3}$) Evaluation de D_{ex} à champ nul lorsque les K_i donnent des fréquences proches de celles observées. **b:** (Mn_7P_0): Evaluation de D_{ex} lorsque l'accord FMR/pompe-sonde n'est pas respecté.

Afin de tester ces hypothèses, nos études ont porté sur un grand nombre d'échantillons avec des concentrations allant de l'échantillon de (Ga,Mn)As avec une aimantation planaire, aux échantillons de (Ga,Mn)(As,P) avec de plus fortes concentrations en phosphore (>6 %) avec une aimantation hors-plan. L'hypothèse concernant une augmentation de la T_C avec [P] a été invalidée par Cubukcu *et al.* [34] en montrant que (Ga,Mn)(As,P) possède une transition métal-isolant pour de fortes concentrations en phosphore, ce qui se traduit par une diminution de T_C .

Dans notre cas nous allons nous concentrer sur l'échange grâce aux ondes de spin. A l'exception de $\text{Mn}_{10}\text{P}_{12}$, en utilisant toute nos précédentes études, nous avons été capables d'induire une dynamique d'aimantation en lumière non polarisée et sur tous les échantillons analysé sauf un, nous avons réussi à observer plusieurs ondes de spin. Nous avons donc eu accès à D_{ex} sur une large gamme de [P] et pour quelques concentrations en Mn.

10.2 Méthode pour mesurer D_{ex}

L'obtention de D_{ex} n'est parfois pas aussi facile que dans le cas présenté précédemment sur $\text{Mn}_7\text{P}_{4,3}$ où le calcul en utilisant les constantes d'anisotropie données par la FMR donnent directement la bonne fréquence du mode fondamental. A partir de l'observation de deux fréquences de précession, les seuls paramètres à prendre en compte sont l'anisotropie de surface (K_s), permettant de faire correspondre exactement la fréquence observé avec celle attendue, et D_{ex} qui va déterminer l'écart fréquentiel entre les modes. Typiquement K_s ici nous sert de variable d'ajustement et ne peut être utilisée lorsque l'écart entre les fréquences calculées à l'aide des données FMR et les fréquences obtenues en pompe-sonde est trop grand (voir Fig. 9.5a).

Lorsque les constantes d'anisotropie et K_s ne permettent pas de reproduire les fréquences,

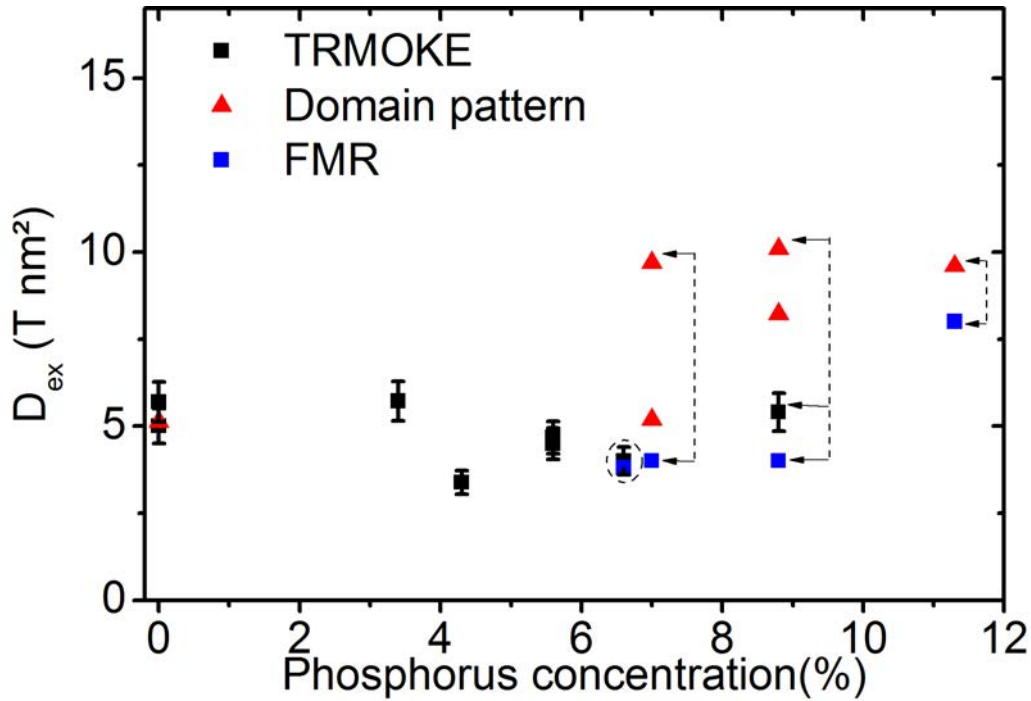


Figure 10.4: Evolution de la raideur de spin en fonction de la concentration en phosphore, évaluée soit par TRMOKE, FMR ou encore analyse de domaine. Les lignes avec des tirets relient les points correspondants à un même échantillon.

nous avons appliqué un champ magnétique de sorte à faire varier les fréquences et on s'intéresse directement à leurs écarts. On simule cet écart fréquentiel pour $K_s = 0$ en supposant un mode en $k_b = 0$ et $k_b = 2\pi/L$, et en ajustant D_{ex} de sorte à obtenir un bon accord avec les données expérimentales. Lorsqu'un champ magnétique devait être appliqué afin d'obtenir de la précession (cas des échantillons avec un axe facile hors-plan à champ nul), cette méthode a été systématiquement appliquée. Un exemple est donné dans la Fig. 10.3b sur Mn_7P_0 où le champ servait à orienter l'aimantation à une position autre que $[1-10]$. L'utilisation d'une large gamme de valeurs de champs magnétiques permet de minimiser les erreurs dues aux incertitudes quant à l'orientation exacte du champ.

10.3 Indépendance de l'échange avec [P]

Dans la Fig. 10.4, sont portés les mesures expérimentales de D_{ex} en fonction de [P] obtenues en utilisant les données issues d'expériences TRMOKE, FMR (obtenues par Cubukcu *et al.* mais analysées par nous mêmes pour D_{ex}) et l'analyse des parois des domaines (obtenues par Haghgoo *et al.* [65] et Gourdon *et al.* [64] sur des échantillons à aimantation hors-plan). Les barres d'erreur sur D_{ex} en TRMOKE sont principalement dues à l'incertitude sur l'épaisseur de la couche magnétique.

Les données obtenues en TRMOKE sur Mn_xP_y couvrent une gamme de $y = 0\%$ à $y = 9\%$. Certains échantillons ont une concentration nominale (effective) en Mn de $x = 7\%$ ($x_{eff} = 3.5\%$), d'autres $x = 10.4\%$ ($x_{eff} = 5.2\%$). Sur cette gamme, la valeur de D_{ex} semble être relativement constante autour de $4.5 \pm 1 T \text{ nm}^2$, équivalent à ce que l'on trouve dans la littérature sur $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ dans le cas de couches minces recuites. Notons que l'utilisation de D_{ex} et

non A_{ex} permet de comparer des échantillons avec des aimantations différentes. Ainsi certains échantillons comme $Mn_{10.4}P_{5.6}$ et $Mn_7P_{5.6}$, ainsi que $Mn_{10.4}P_0$ et Mn_7P_0 , ont des valeurs de D_{ex} très proches ce qui va dans le sens d'une faible dépendance de D_{ex} avec x (Fig. 10.1).

Nous avons comparé nos résultats avec les autres techniques utilisées pour obtenir D_{ex} sur nos échantillons. Les expériences de FMR et de TRMOKE présentent systématiquement un bon accord concernant D_{ex} ce qui conforte nos analyses en plus de permettre d'obtenir des points manquant en TRMOKE (notamment sur Mn_7P_7 où seul le mode uniforme a été observé). L'accord entre les expériences TRMOKE-FMR/analyse de domaine est quant à lui à nuancer. Pour les échantillons de (Ga,Mn)As, l'accord est quasi parfait, toutefois pour de fortes valeurs de y , l'analyse des domaines donnent des résultats légèrement supérieurs à ce que l'on peut obtenir en TRMOKE ou FMR. Toutefois, FMR et analyse de domaine semblent être en accord pour $y = 11\%$ ce qui irait dans le sens d'une légère augmentation de D_{ex} pour des $y > 10\%$, sans toutefois que les expériences TRMOKE aient pu confirmer cette tendance.

Dans un modèle simple, D_{ex} est censé varier comme $p^{1/3}J_{pd}^2$ [43] avec J_{pd} dépendant du volume de la maille [115]. Une indépendance de D_{ex} en fonction de y peut signifier la présence d'une concentration en porteurs variable en fonction de y (ce qui a déjà été mis en évidence par Cubukcu *et al.* [34]), ou alors d'une valeur de J_{pd} constante. Notons que Maseck *et al.* effectuent leurs calculs pour des couches complètement relaxées ce qui surestime la diminution du volume de la maille par rapport aux couches épitaxiées sur substrat de GaAs. Toutefois, nos résultats expérimentaux ne peuvent ni affirmer, ni infirmer les prédictions de Maseck *et al.*, nos études portant sur une faible gamme par rapport à celle étudiée par Maseck *et al.*.

En l'absence de données complémentaires pour des y plus élevés, nous penchons vers une faible dépendance de D_{ex} avec le phosphore.

Conclusion de la partie ondes de spin

Cette partie a été dédiée à l'étude des ondes de spin observées dans les signaux TRMOKE. Nous nous sommes intéressés à leur nature à leur détection ainsi qu'à la détermination de la raideur de spin (D_{ex}) grâce à leur observation.

Partant de l'hypothèse de Wang *et al.* [199], nous avons considéré que la possibilité d'observer des ondes de spins nécessitait forcément la présence d'une aimantation moyenne non nulle. Ceci nous a conduit à nous intéresser à l'hybridation de modes volumes et de modes de surfaces ainsi qu'à l'étude de l'anisotropie de surface en utilisant les conditions de Rado-Weertman et non les conditions de Kittel.

En utilisant le modèle développé avec les conditions de Rado-Weertman, nous avons démontré expérimentalement la présence d'une faible anisotropie de surface attestant de l'observation d'un mode 0 proche d'un mode uniforme ce qui nous a permis d'obtenir une valeur de la raideur de spin, relié à la constante d'échange. Afin d'obtenir la bonne valeur de D_{ex} , nous avons réussi à prouver la présence d'un mode pair en utilisant des valeurs de D_{ex} obtenues par l'analyse des domaines magnétiques.

En présence d'une faible anisotropie de surface, la présence d'un mode pair étant surprenante, nous avons utilisé un modèle développé dans l'équipe permettant d'obtenir la réponse magnéto-optique d'un échantillon fini avec un profil d'aimantation variable dans l'épaisseur. Nous avons ainsi pu démontrer que malgré une moyenne de l'aimantation nulle, nous sommes en théorie en mesure d'observer toutes les ondes de spin. Nous en sommes arrivés à la conclusion que l'absence du mode 1 signifiait que ce dernier n'était simplement pas excité et ce pour une raison inconnue.

Enfin, sur Mn_xP_y , nous avons été en mesure d'obtenir la constante de raideur de spin (D_{ex}) sur une gamme de concentration en phosphore y allant jusqu'à 9 %. Nous avons conclu à une faible dépendance de D_{ex} avec y ce qui semblerait en contradiction avec les prédictions faites par Maseck *et al.* par des calculs ab-initio.

Conclusion et perspectives

Au cours de cette thèse expérimentale, nous avons étudié les processus d'excitation, de relaxation et de détection de la dynamique de l'aimantation dans $(\text{Ga,Mn})(\text{As,P})$. Nos travaux se sont articulés autour de 3 axes : l'étude d'effets statiques comme les effets magnéto-optiques et les effets thermiques stationnaires, l'étude de l'excitation et la relaxation de la dynamique de l'aimantation, et enfin l'étude des ondes de spin. Chacun de ces axes nous a permis d'avoir une vision globale de la dynamique de l'aimantation dans notre système.

Après avoir séparé les effets stationnaires des effets dynamiques, nous avons montré que l'excitation optique dans la plupart de nos matériaux était d'origine thermique. La modélisation par une variation des constantes d'anisotropie magnéto-cristalline nous a permis de comprendre la présence ou non de dynamique de l'aimantation, et d'augmenter ou diminuer l'efficacité de l'excitation sans modifier de la puissance. Nous avons pu également expliquer pourquoi des échantillons à forte anisotropie étaient les seuls à montrer un mécanisme dépendant de la polarisation des porteurs (OSTT).

Après avoir compris comment induire une excitation efficace, nous avons étudié les ondes de spin dans un grand nombre d'échantillons avec une concentration en phosphore variable. Motivé par la perspective de démontrer le contrôle de D_{ex} par la concentration en phosphore, notre objectif était alors d'obtenir la constante de raideur de spin. L'identification des ondes de spin que l'on excite nous a permis de démontrer que la concentration en phosphore n'influe pas sur D_{ex} .

L'étude des ondes de spin nous a permis de mieux comprendre les mécanismes nous permettant de les observer en TRMOKE. Grâce à un modèle où l'aimantation varie continuellement dans une couche mince magnétique, nous avons démontré que le signal magnéto-optique auquel nous sommes sensibles était dû à des termes de déphasage optique.

Perspectives

Avec le développement d'un modèle sur les conditions d'excitation de la précession par variation des K_i , et du modèle de "couche finie" permettant d'expliquer l'observation d'ondes de spin, nous avons désormais une bonne vision et compréhension de notre système magnétique. Ces différents modèles formalisent mathématiquement de façon générale des interprétations réalisées sur d'autres matériaux. Même si nous avons testé ces modèles sur $(\text{Ga,Mn})\text{As}$, ces derniers peuvent être appliqués tel quels sur d'autres matériaux ferromagnétiques pour réaliser une excitation thermique efficace.

Dans nos échantillons de $(\text{Ga,Mn})\text{As}$, de nombreuses questions restent en suspens comme la raison de la non excitation d'un mode impair, l'identification du fond exponentiel dans nos sig-

naux, assimilé à $\delta M_s/M_s$, ou encore la bonne détermination du paramètre d'amortissement homogène de nos échantillons, ce dernier n'ayant pas été mesuré à cause de limitations techniques. La compréhension des mécanismes d'excitation thermique nous permet désormais d'envisager la possibilité de faire apparaître des effets dépendants de la polarisation des porteurs en appliquant un champ suivant un axe de type [1-10], annulant ainsi toute excitation purement thermique. La plupart de nos études s'étant intéressée au régime des basses fluences, la possibilité de la reconstruction de la trajectoire de l'aimantation sera un outil efficace pour comprendre les différents régimes d'excitations intervenant en fonction de la puissance de la pompe.

Les études que nous avons menées jusqu'à présent peuvent être vues comme des études préliminaires en vue de retourner l'aimantation de façon ultra-rapide dans nos échantillons. Cette voie a été ouverte par Stanciu *et al.* [174] dans des grenats, où les auteurs montrèrent qu'un retournement réversible et parfaitement contrôlé était possible, grâce à la présence d'un effet Faraday inverse géant. Dans (Ga,Mn)As le retournement de l'aimantation ne s'est fait jusqu'à présent que de manière irréversible par nucléation et propagation de parois de domaines (voir Astakov *et al.* [9] et Ramsay *et al.* [142]). Cette nucléation peut être juste d'origine thermique, ou être influencée par la polarisation des porteurs injectés.

Une autre voie possible récemment explorée par Thevenard *et al.* [187] consiste à retourner l'aimantation en induisant une amplitude de précession suffisamment grande, grâce à des ondes acoustiques. Ce même type de piste pourrait être explorée grâce à des impulsions optiques où par exemple un champ pourrait orienter l'aimantation à un endroit tel qu'une impulsion laser induise une amplitude de précession suffisamment grande pour pouvoir passer d'une vallée d'énergie à une autre. En utilisant ensuite une deuxième impulsion, on pourrait être en mesure d'arrêter la précession, figeant l'aimantation dans une nouvelle position d'équilibre.

Annexe A

Conditions aux limites asymétriques

Cette partie est dédiée aux résultats analytiques des calculs pour des ondes de spin asymétrique. Les profils dans l'épaisseur des ondes de spin sont :

$$\begin{cases} \hat{\delta}\theta(z) = A_{1\theta} \cos k_b z + A_{2\theta} \sin k_b z + B_{1\theta} \cosh k_s z + B_{2\theta} \sinh k_s z \\ \hat{\delta}\phi(z) = A_{1\phi} \cos k_b z + A_{2\phi} \sin k_b z + B_{1\phi} \cosh k_s z + B_{2\phi} \sinh k_s z \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

On rappelle également quelques autres notations : $F_B = \frac{F_{\phi\phi}}{M_s} + k_b^2 D_{ex}$, $F_S = \frac{F_{\phi\phi}}{M_s} - k_s^2 D_{ex}$ et $\frac{2K_{s\pm}}{DM_s} = \kappa_{\pm}$ en $\pm L/2$.

Le système d'équations permettant de calculer les vecteurs d'ondes autorisés est :

$$\begin{pmatrix} -k_b \sin k_b \frac{L}{2} & k_b \cos k_b \frac{L}{2} & k_s \sinh k_s \frac{L}{2} & k_s \cosh k_s \frac{L}{2} \\ k_b \sin k_b \frac{L}{2} & k_b \cos k_b \frac{L}{2} & -k_s \sinh k_s \frac{L}{2} & k_s \cosh k_s \frac{L}{2} \\ F_B \begin{bmatrix} -\kappa_s^- \cos(k_b \frac{L}{2}) \\ +k_b \sin(k_b \frac{L}{2}) \end{bmatrix} & F_B \begin{bmatrix} k_b \cos(k_b \frac{L}{2}) \\ +\kappa_s^- \sin(k_b \frac{L}{2}) \end{bmatrix} & -F_S \begin{bmatrix} \kappa_s^- \cosh(k_b \frac{L}{2}) \\ +k_s \sin(k_b \frac{L}{2}) \end{bmatrix} & F_S \begin{bmatrix} k_s \cosh(k_s L) \\ +\kappa_s^- \sinh(k_s L) \end{bmatrix} \\ F_B \begin{bmatrix} \kappa_s^+ \cos(k_b \frac{L}{2}) \\ -k_b \sin(k_b \frac{L}{2}) \end{bmatrix} & F_B \begin{bmatrix} k_b \cos(k_b \frac{L}{2}) \\ +\kappa_s^+ \sin(k_b \frac{L}{2}) \end{bmatrix} & F_S \begin{bmatrix} \kappa_s^+ \cosh(k_b \frac{L}{2}) \\ +k_s \sin(k_b \frac{L}{2}) \end{bmatrix} & F_S \begin{bmatrix} k_s \cosh(k_s L) \\ +\kappa_s^+ \sinh(k_s L) \end{bmatrix} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_{1\phi} \\ A_{2\phi} \\ B_{1\phi} \\ B_{2\phi} \end{pmatrix} = 0 \quad (\text{A.2})$$

Le déterminant étant donné dans le chapitre 9, on donne ici les amplitudes correspondantes pour les $A_{i\phi}$ et $B_{i\phi}$, normalisé par $A_{1\phi}$. On a :

$$\frac{A_{2\phi}}{A_{1\phi}} = \frac{k_b \sin(k_b \frac{L}{2}) \left\{ \sinh(2k_s \frac{L}{2}) \left[k_s^2 (F_S - F_B) + F_S \kappa_s^+ \kappa_s^- \right] + k_s \cosh(2k_s \frac{L}{2}) \left[F_S (\kappa_s^+ + \kappa_s^-) - F_B \kappa_s^+ \right] + F_B \kappa_s^- k_s \right\} + 2F_B \kappa_s^- k_s \cos(k_b \frac{L}{2}) \sinh(k_s \frac{L}{2}) \left[\kappa_s^+ \sinh(k_s \frac{L}{2}) + k_s \cosh(k_s \frac{L}{2}) \right]}{k_b \cos(k_b \frac{L}{2}) \left\{ -\sinh(2k_s \frac{L}{2}) \left[k_s^2 (F_S - F_B) + F_S \kappa_s^+ \kappa_s^- \right] + k_s \cosh(2k_s \frac{L}{2}) \left[F_B \kappa_s^+ - F_S (\kappa_s^+ + \kappa_s^-) \right] + F_B \kappa_s^- k_s \right\} + 2F_B \kappa_s^- k_s \sin(k_b \frac{L}{2}) \cosh(k_s \frac{L}{2}) (\kappa_s^+ \cosh[k_s \frac{L}{2}] + k_s \sinh(k_s \frac{L}{2}))}$$

$$\begin{aligned}
& F_B \left(k_s \cosh(k_s \frac{L}{2}) \left\{ \sin(2k_b \frac{L}{2}) \left[k_b^2 (F_B - F_S) - F_B \kappa_s^+ \kappa_s^- \right] - k_b \cos(2k_b \frac{L}{2}) \left[F_B (\kappa_s^+ + \kappa_s^-) \right. \right. \right. \\
& \left. \left. \left. - F_S \kappa_s^+ \right] + F_S k_b \kappa_s^- \right\} + F_S k_b \kappa_s^- \sinh(k_s \frac{L}{2}) \left[\kappa_s^+ \cos(2k_b \frac{L}{2}) - k_b \sin(2k_b \frac{L}{2}) + \kappa_s^+ \right] \right) \\
\frac{B_{1\phi}}{A_{1\phi}} = & \frac{F_S k_b \cos(k_b \frac{L}{2}) \left\{ -\sinh(2k_s \frac{L}{2}) \left[k_s^2 (F_S - F_B) + F_S \kappa_s^+ \kappa_s^- \right] + k_s \cosh(2k_s \frac{L}{2}) \left[F_B \kappa_s^+ \right. \right. \\
& \left. \left. - F_S (\kappa_s^+ + \kappa_s^-) \right] + F_B \kappa_s^- k_s \right\} + 2F_B F_S \kappa_s^- k_s \sin(k_b \frac{L}{2}) \cosh(k_s \frac{L}{2}) \left[\kappa_s^+ \cosh(k_s \frac{L}{2}) + k_s \sinh(k_s \frac{L}{2}) \right]}{ \\
& \left[\kappa_s^+ \cosh(2k_s \frac{L}{2}) + k_s \sinh(2k_s \frac{L}{2}) \right] \left\{ k_s \tanh(k_s \frac{L}{2}) \left[\sin(2k_b \frac{L}{2}) \left(-F_B k_b^2 + F_B \kappa_s^+ \kappa_s^- + F_S k_b^2 \right) \right. \right. \\
\frac{B_{2\phi}}{A_{1\phi}} = & \frac{F_B + k_b \cos(2k_b \frac{L}{2}) \left(F_B (\kappa_s^+ + \kappa_s^-) - F_S \kappa_s^+ \right) + F_S k_b \kappa_s^-}{F_S} \left\{ k_b \cos(k_b \frac{L}{2}) \operatorname{sech}(k_s \frac{L}{2}) \left[\kappa_s^+ \cosh(2k_s \frac{L}{2}) + k_s \sinh(2k_s \frac{L}{2}) \right] \right. \\
& \left. \left[\sinh(2k_s \frac{L}{2}) \left(k_s^2 (F_S - F_B) \right. \right. \right. \\
& \left. \left. \left. + F_S \kappa_s^+ \kappa_s^- \right) + k_s \cosh(2k_s \frac{L}{2}) \left(F_S (\kappa_s^+ + \kappa_s^-) - F_B \kappa_s^+ \right) - F_B \kappa_s^- k_s \right] - F_B \kappa_s^- k_s \sin(k_b \frac{L}{2}) \right. \\
& \left. \left[((\kappa_s^+)^2 + k_s^2) \cosh(3k_s \frac{L}{2}) + 2\kappa_s^+ k_s \sinh(3k_s \frac{L}{2}) + (\kappa_s^+ - k_s)(\kappa_s^+ + k_s) \cosh(k_s \frac{L}{2}) \right] \right\}
\end{aligned}$$

Annexe B

Liste des échantillons et caractéristiques

Cet appendice est dévoué aux caractéristiques de chacun des échantillons étudiés. La liste est présentée ci dessous, et les valeurs des constantes d'anisotropies en fonction de la température dans les pages qui vont suivre. Les K_i ont été mesurées par Cubukcu *et al.* par FMR.

Nomenclature	Echantillon	[Mn] (%)	[Mn _{eff}] (%)	[P] (%)	Lm (ppm)	ϵ_{zz} (%)	$M_s(4K)$ (kA/m)	T _C (K)	Epaisseur (nm)	Aimantation
Mn _{10.4} P _{8.8}	B8P48	10.4	4.9	8.8	-5120	-0.24	50	117	46±5	M _⊥
Mn _{10.4} P _{5.1}	B8P51	10.4	5	5.1	-1800	-0.09	51	121	47±5	M _∥
Mn _{10.4} P ₀	C8P53	10.4	4.7	0	6890	0.33	36	130	46±1	M _∥
Mn ₇ P ₀	C8P54	7	3.5	0	4990	-0.24	36	110	45±2	M _∥
Mn ₇ P ₇	C8P56	7	3.8	7	-3580	0.17	39.2	81	50±5	M _⊥
Mn ₇ P _{5.6}	C8P57	7	4.2	5.6	-2320	0.11	42.6	86	46±3	M _∥
Mn ₇ P _{4.3}	C8P59	7	4	4.3	-1200	0.06	40.75	85	50±5	M _∥
Mn ₇ P _{3.4}	C8P60	7	3.7	3.4	0	0	37.3	120	50±5	M _∥
Mn ₇ P _{2.6}	C8P61	7	3.7	2.6	280	-0.01	37.7	134.5	50±5	M _∥
Mn ₇ P _{5.6}	49P71	7	3.1	5.6	<-1100	-0.05	32	101	50±5	M _⊥
Mn _{6.64} P _{6.64}	49P73	5	4.9	6.64	1480	-0.07	50	116	46±1	M _⊥

Table B.1: Tableau des échantillons récapitulant leurs différentes caractéristiques. La concentration effective en Mn_{eff} en utilisant la formule $M_s = g\mu_B S x_{\text{eff}} N_0$ à champ nul (voir l'Eq. 2.5) où N_0 est la densité de sites de cations. L'aimantation des trous n'a pas été prise en compte.

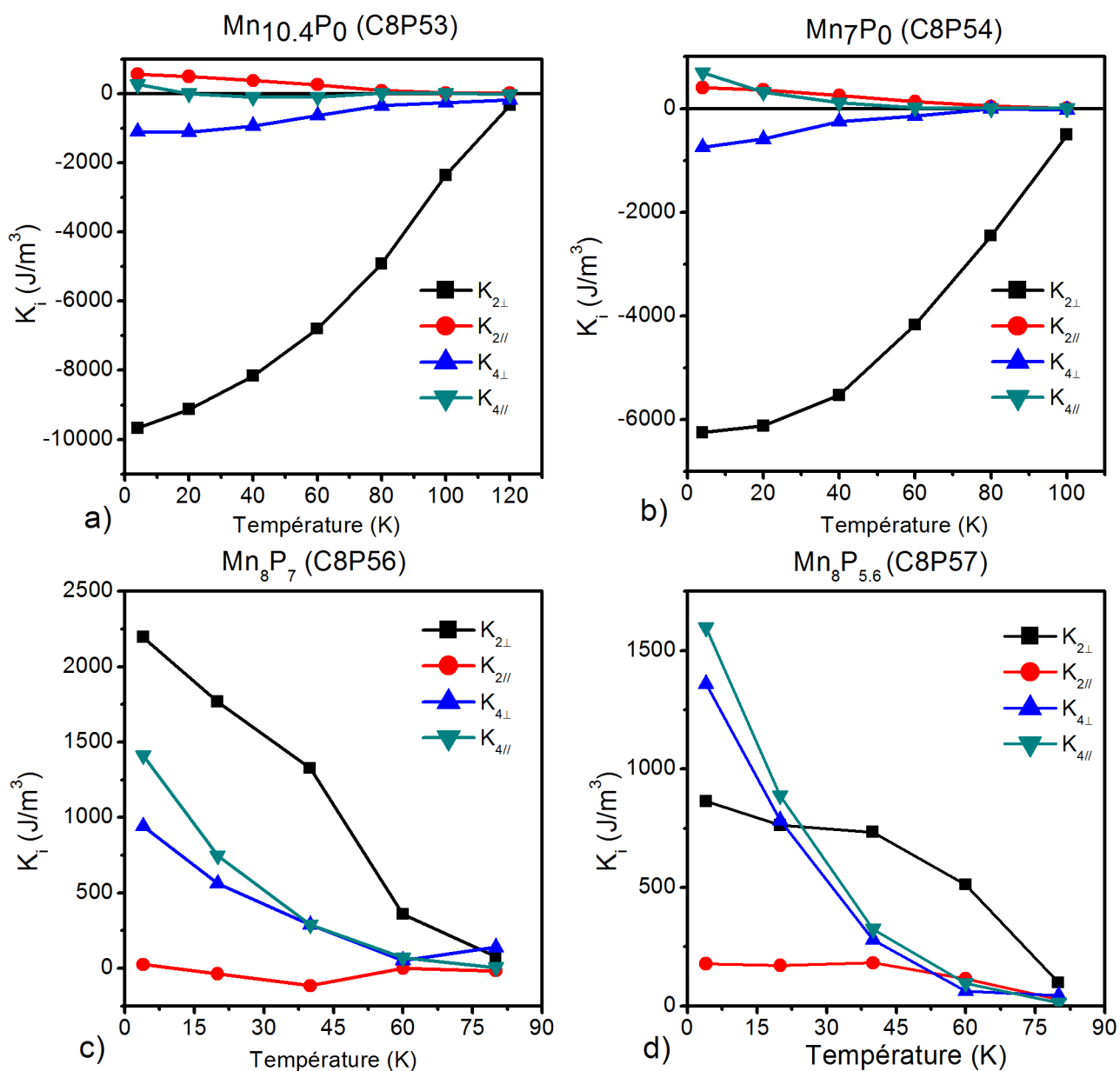


Figure B.1: Constantes d'anisotropies pour les échantillons a : $\text{Mn}_{10.4}\text{P}_0$; b : Mn_8P_0 ; c : Mn_8P_7 ; d: $\text{Mn}_8\text{P}_{5.6}$.

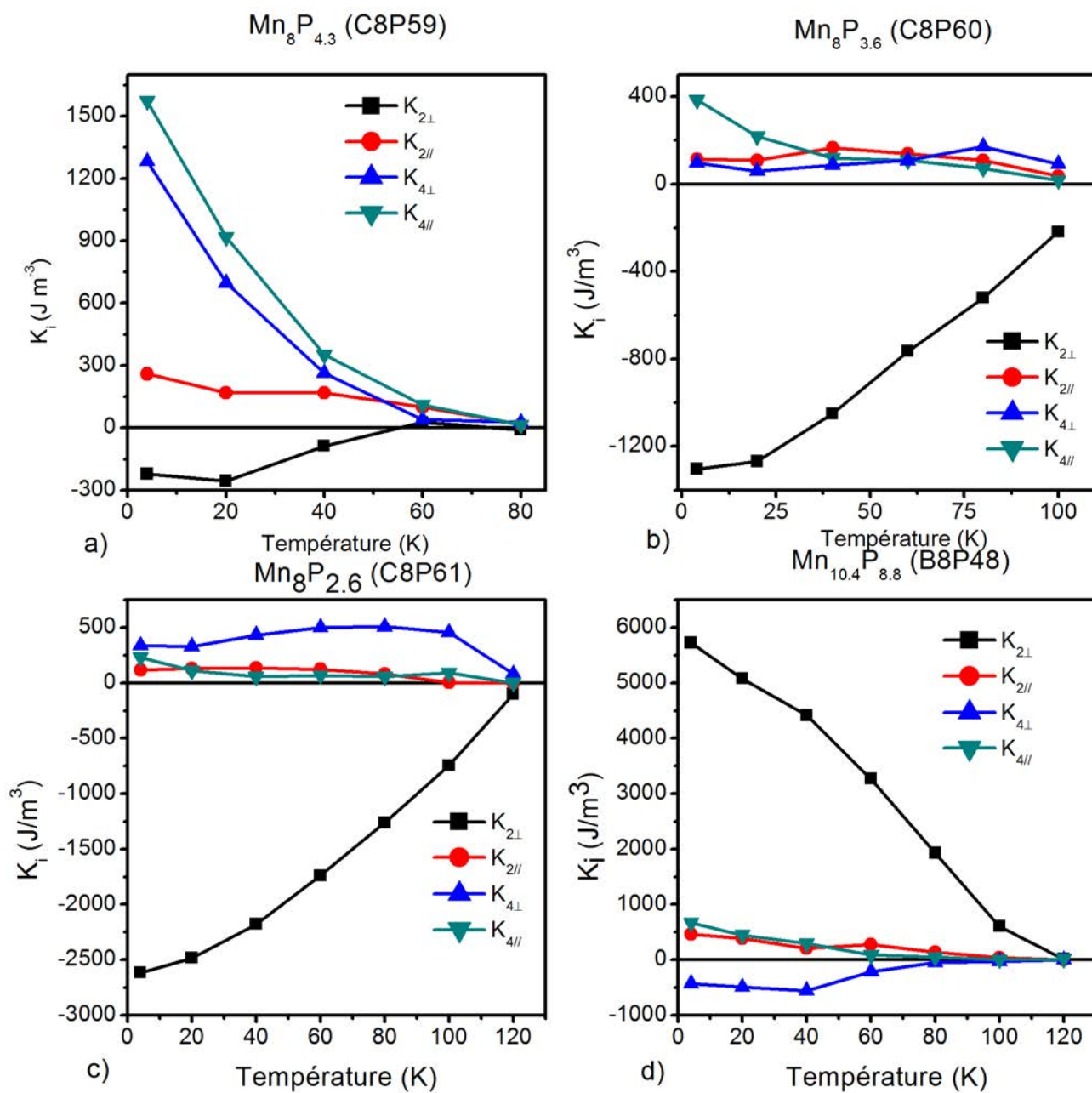


Figure B.2: Constantes d'anisotropies pour les échantillons **a** : $\text{Mn}_8\text{P}_{4.3}$; **b** : $\text{Mn}_8\text{P}_{3.6}$; **c** : $\text{Mn}_8\text{P}_{2.6}$; **d** : $\text{Mn}_{10.4}\text{P}_{8.8}$.

Références bibliographiques

- [1] *International Tables for Crystallography*.
- [2] V Kotov A. Zvezdin. *Modern magneto-optics and magneto-optical materials*. 1997.
- [3] E. Abe, F. Matsukura, H. Yasuda, Y. Ohno, and H. Ohno. Molecular beam epitaxy of III-V diluted magnetic semiconductor (Ga,Mn)Sb. *Physica E: Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, 7(3):981–985, 2000.
- [4] A.Cotton. *Annale de physique chimie*, 8:347, 1896.
- [5] H. Mouton A.Cotton. *Journal de physique (Paris)*, 1:5, 1911.
- [6] R. Schäfer A.Hubert. *Magnetic domains*. 1998.
- [7] P.N. Argyres. Theory of the Faraday and Kerr effects in ferromagnetics. *Physical Review*, 97(2):334, 1955.
- [8] Rodrigo Arias and D. Mills. Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultrathin films. *Physical Review B*, 60(10):7395–7409, 1999.
- [9] G. V. Astakhov, H. Hoffmann, V. L. Korenev, T. Kiessling, J. Schwittek, G. M. Schott, C. Gould, W. Ossau, K. Brunner, and L. W. Molenkamp. Nonthermal Photocoercivity Effect in a Low-Doped (Ga,Mn)As Ferromagnetic Semiconductor. *Physical Review Letters*, 102(18):187401, 2009.
- [10] U. Atxitia, P. Nieves, and O. Chubykalo-Fesenko. Landau-Lifshitz-Bloch equation for ferrimagnetic materials. *Physical Review B*, 86:104414, 2012.
- [11] Y Au, M Dvornik, T Davison, E Ahmad, P S Keatley, A Vansteenkiste, B. Van Waeyenberge, and V V Kruglyak. Direct excitation of propagating spin waves by focused ultra-short optical pulses. *Physical Review Letters*, 110:097201, 2013.
- [12] F. Baboux, F. Perez, C. a. Ullrich, I. D’Amico, J. Gómez, and M. Bernard. Giant collective spin-orbit field in a quantum well: Fine structure of spin plasmons. *Physical Review Letters*, 109(16):166401, 2012.
- [13] A. Ben Hamida, S. Sievers, K. Pierz, and H. W. Schumacher. Broadband ferromagnetic resonance characterization of GaMnAs thin films. *Journal of Applied Physics*, 114(12), 2013.
- [14] Jean Besbas. Thèse de doctorat Influence de la densité de trous sur la dynamique des charges et d’aimantation dans du (Ga,Mn)As en couche mince. 2012.
- [15] A.K. Bhattacharjee, G. Fishman, and B. Coqblin. Virtual bound state model for the exchange interaction in semimagnetic semiconductors such as Cd_{1-x}Mn_xTe. *Physica B+C*, 117-118:449–451, 1983.

- [16] Jean Yves Bigot and Mircea Vomir. Ultrafast magnetization dynamics of nanostructures. *Annalen der Physik*, 525(1-2):2–30, 2013.
- [17] C Bihler, W Schoch, W Limmer, S T B Goennenwein, and M S Brandt. Spin-wave resonances and surface spin pinning in Ga_{1-x}Mn_xAs thin films. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 79(4):45205, 2009.
- [18] 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.
- [19] J.F. Bisson and D. Fournier. Influence of diffraction on low thermal diffusivity measurements with infrared photothermal microscopy. *Journal of Applied Physics*, 83(2):1036–1042, 1998.
- [20] J Blakemore. Semiconducting and other major properties of gallium arsenide. *Journal of Applied Physics*, 53(10):R123–R181, 1982.
- [21] J. Blinowski and P. Kacman. Spin interactions of interstitial Mn ions in ferromagnetic GaMnAs. *Physical Review B*, 67:121204(R), 2003.
- [22] M. Bombeck, A. S. Salasyuk, B. A. Glavin, A. V. Scherbakov, C. Brüggemann, D. R. Yakovlev, V. F. Sapega, X. Liu, J. K. Furdyna, a. V. Akimov, and M. Bayer. Excitation of spin waves in ferromagnetic (Ga,Mn)As layers by picosecond strain pulses. *Physical Review B*, 85(19):195324, 2012.
- [23] Georges Bouzerar. Magnetic spin excitations in diluted ferromagnetic systems: the case of (Ga,Mn)As. 79:57007.
- [24] R.M. Bozorth. Magnetization of compounds of rare earths with platinum metals. *Phys Rev*, 115(6):1595, 1959.
- [25] R A Chapman and W G Hutchinson. Photoexcitation and photoionization of neutral manganese acceptors in gallium arsenide. *Physical Review Letters*, 18(12):443–445, 1967.
- [26] D. Cheskis, A. Porat, L. Szapiro, O. Potashnik, and S. Bar-Ad. Saturation of the ultrafast laser-induced demagnetization in nickel. *Physical Review B*, 72(1):014437, 2005.
- [27] Heng-Chieh Chien, Da-Jeng Yao, and Cheng-Ting Hsu. Measurement and evaluation of the interfacial thermal resistance between a metal and a dielectric. *Applied Physics Letters*, 93(23):231910, 2008.
- [28] A. Y. Cho. Morphology of Epitaxial Growth of GaAs by a Molecular Beam Method: The Observation of Surface Structures. *Journal of Applied Physics*, 41(7):2780, 1970.
- [29] Gyung Min Choi, R. B. Wilson, and David G. Cahill. Indirect heating of Pt by short-pulse laser irradiation of Au in a nanoscale Pt/Au bilayer. *Physical Review B*, 89(6):064307, 2014.
- [30] O. Chubykalo-Fesenko, U. Nowak, R. W. Chantrell, and D. Garanin. Dynamic approach for micromagnetics close to the Curie temperature. *Physical Review B*, 74(9):094436, 2006.
- [31] Arthur E. Clark, James B. Restorff, Marilyn Wun-Fogle, Thomas a. Lograsso, and Deborah L. Schlagel. Magnetostrictive properties of body-centered cubic Fe-Ga and Fe-Ga-Al alloys. *IEEE Transactions on Magnetics*, 36(5 I):3238–3240, 2000.

- [32] M. Cubukcu. *Manipulation of Magnetic Anisotropy in Ferromagnetic Semiconductors*. PhD thesis, 2010.
- [33] 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(4):041202, 2010.
- [34] M. Cubukcu, H.J. von Bardeleben, J.L. Cantin, I. Vickridge, and A. Lemaitre. Ferromagnetism in Ga_{0.90}Mn_{0.10}As_{1-y}Py: From the metallic to the impurity band conduction regime. *Thin Solid Films*, 519(23):8212–8214, 2011.
- [35] J Curiale, A Lemaître, G Faini, and V Jeudy. Track heating study for current-induced domain wall motion experiments. *Applied Physics Letters*, 97(24):243505, 2010.
- [36] R.W. Damon and J.R. Eshbach. Magnetostatic modes of a ferromagnet slab. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 19(3-4):308–320, 1961.
- [37] Supriyo Datta and Biswajit Das. Electronic analog of the electro-optic modulator. *Applied Physics Letters*, 56(7):665, 1990.
- [38] John E. Davey. Epitaxial GaAs Films Deposited by Vacuum Evaporation. *Journal of Applied Physics*, 39(4):1941, 1968.
- [39] J D’Alembert D.Diderot. Encyclopédie ou dictionnaire raisonné des sciences, des arts et des métiers. 9:860.
- [40] E De Ranieri, A W Rushforth, K Výborný, U Rana, E Ahmad, R P Campion, C T Foxon, B L Gallagher, A C Irvine, J Wunderlich, and T Jungwirth. Lithographically and electrically controlled strain effects on anisotropic magnetoresistance in (Ga,Mn)As. *New Journal of Physics*, 10(6):065003, 2008.
- [41] D. DeSimone, C. E C Wood, and C. A. Evans. Manganese incorporation behavior in molecular beam epitaxial gallium arsenide. *Journal of Applied Physics*, 53(7):4938–4942, 1982.
- [42] T Dietl, H Ohno, and F Matsukura. Hole-mediated ferromagnetism in tetrahedrally coordinated semiconductors. *Physical Review B*, 63:195205, 2001.
- [43] Tomasz Dietl and Hideo Ohno. Dilute ferromagnetic semiconductors: Physics and spintronic structures. *Reviews of Modern Physics*, 86(1):187–251, March 2014.
- [44] Liza Herrera Diez, Reinhard K Kremer, Axel Enders, Matthias Rössle, Erhan Arac, Jan Honolka, Klaus Kern, Ernesto Placidi, and Fabrizio Arciprete. Complex domain-wall dynamics in compressively strained Ga_{1-x}MnxAs epilayers. *Physical Review B*, 78(15):155310, 2008.
- [45] J. F. Dillon and C. E. Olsen. Ferromagnetic resonance of EuO. *Physical Review*, 135(2A):434–436, 1964.
- [46] Alexandre Dourlat. Thèse de doctorat : Propriétés magnétiques statiques et dynamiques de couches minces de (Ga,Mn)As à anisotropie perpendiculaire. 2008.
- [47] L. Dreher, C. Bihler, E. Peiner, A. Waag, W. Schoch, W. Limmer, S. T B Goennenwein, and M. S. Brandt. Angle-dependent spin-wave resonance spectroscopy of (Ga,Mn)As films. *Physical Review B*, 87(22):224422, 2013.

- [48] E. Beaupaire. Ultrafast spin dynamics in Ferromagnetic Nickel. *Physical Review Letters*, 58(10):5920–5923, 1998.
- [49] K. W. Edmonds, K. Y. Wang, R. P. Campion, A. C. Neumann, C. T. Foxon, B. L. Gallagher, and P. C. Main. Hall effect and hole densities in $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$. *Applied Physics Letters*, 81(16):3010–3012, 2002.
- [50] A J Elleman and H Wilman. The Structure and Growth of PbS Deposits on Rocksalt Substrates. *Proceedings of the Physical Society*, 61(2):164–173, 1948.
- [51] Christophe Espanet, Christophe Kieffer, Amine Mira, Stefan Giurgea, Frederic Gustin, and Christophe Kieffer. Optimal design of a special permanent magnet synchronous machine for magnetocaloric refrigeration. *2013 IEEE Energy Conversion Congress and Exposition, ECCE 2013*, pages 5019–5025, 2013.
- [52] M. Faraday. Faraday diary of experimental investigation. 4:210, 1847.
- [53] Michael Farle. Ferromagnetic resonance of ultrathin metallic layers. *Reports on Progress in Physics*, 61:755, 1999.
- [54] J. Fernández-Rossier, Alvaro S. Núñez, M. Abolfath, and A. H. MacDonald. Optical spin transfer in ferromagnetic semiconductors. <http://arxiv.org/abs/cond-mat/0304492>, page 8, 2003.
- [55] A. Fognini, G. Salvatella, R. Gort, T. Michlmayr, A. Vaterlaus, and Y. Acremann. The influence of the excitation pulse length on ultrafast magnetization dynamics in nickel. *Structural Dynamics*, 2(2):024501, 2015.
- [56] C. Frétnigny, J.-Y. Duquesne, D. Fournier, and F. Xu. Thermal insulating layer on a conducting substrate. Analysis of thermorefectance experiments. *Journal of Applied Physics*, 111(8):084313, 2012.
- [57] J. K. Furdyna. Diluted magnetic semiconductors. *Journal of Applied Physics*, 64(4):R29, 1988.
- [58] J Gaj, R R Gatazka, and M Nawrocki. Giant exciton faraday rotation in $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ mixed crystals. *Solid State Communications*, 25:193–195, 1978.
- [59] D Garanin. Fokker-Planck and Landau-Lifshitz-Bloch Equations for Classical Ferromagnets. *Phys. Rev. B*, 55(5):3050, 1998.
- [60] M. Garska and J. R. Anderson. Magnetic susceptibility and exchange in IV-VI compound diluted magnetic semiconductors. *Physical Review B*, 38(13):9120–9126, 1988.
- [61] E. Gmelin, M. Asen-Palmer, M. Reuther, and R. Villar. Thermal boundary resistance of mechanical contacts between solids at sub-ambient temperatures. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 32(6):R19–R43, 1999.
- [62] Sebastian. 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. Spin wave resonance in $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$. *Applied Physics Letters*, 82(5):730, 2003.

- [63] Sebastian T B Goennenwein, Thomas A. Wassner, Hans Huebl, Martin S. Brandt, Jan B. Philipp, Matthias Opel, Rudolf Gross, Achim Koeder, Wladimir Schoch, and Andreas Waag. Hydrogen control of ferromagnetism in a dilute magnetic semiconductor. *Physical Review Letters*, 92(22):227202–1, 2004.
- [64] C. Gourdon, A. Dourlat, V. Jeudy, K. Khazen, H. von Bardeleben, L. Thevenard, and A. Lemaître. Determination of the micromagnetic parameters in (Ga,Mn)As using domain theory. *Physical Review B*, 76(24):241301, December 2007.
- [65] S. Haghighoo, M. Cubukcu, H. J. von Bardeleben, L. Thevenard, A. Lemaître, and C. Gourdon. Exchange constant and domain wall width in (Ga,Mn)(As,P) films with self-organization of magnetic domains. *Physical Review B*, 82(4):041301, July 2010.
- [66] K. C. Hall, J. P. Zahn, A. Gamouras, S. March, J. L. Robb, X. Liu, and J. K. Furdyna. Ultrafast optical control of coercivity in GaMnAs. *Applied Physics Letters*, 93(3):032504, 2008.
- [67] J. Hamrle, S. Blomeier, O. Gaier, B. Hillebrands, H. Schneider, G. Jakob, K. Postava, and C. Felser. Huge quadratic magneto-optical Kerr effect and magnetization reversal in the Co₂FeSi Heusler compound. 1563, 2006.
- [68] Kang-Jeon Han, Ji-Hee Kim, Ki-Ju Yee, X. Liu, J. K. Furdyna, and F. Hache. Magnetization-induced optical nonlinearity in ferromagnetic GaMnAs. *Journal of Applied Physics*, 101(6):063519, 2007.
- [69] Jean Christophe Harmand, Toshinobu Matsuno, and Kaoru Inoue. Lattice-Mismatched Growth and Transport Properties of InAlAs/InGaAs Heterostructures on GaAs Substrates. *Japanese Journal of Applied Physics*, 28(Part 2, No. 7):L1101–L1103, 1989.
- [70] Y. Hashimoto, S. Kobayashi, and H. Munekata. Photoinduced Precession of Magnetization in Ferromagnetic (Ga,Mn)As. *Physical Review Letters*, 100(6):067202, 2008.
- [71] Y. Hashimoto and H. Munekata. *Applied Physics Letters*, (20):202506.
- [72] W. Heisenberg. Zur Theorie des Ferromagnetismus. *Zeitschrift Für Physik*, 49(9-10):619–636, 1928.
- [73] Y. Hirschberger and P. A. Hervieux. Classical modeling of ultrafast coherent magneto-optical experiments. *Physical Review B*, 88(13):134413, 2013.
- [74] C. Y. Ho, R. W. Powell, and P. E. Liley. Thermal Conductivity of the Elements. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 1(2):279, 1972.
- [75] H. R. Hulme. The Faraday Effect in Ferromagnetics. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 135(826):237–257, 1932.
- [76] C. M. Jaworski, J. Yang, S. MacK, D. D. Awschalom, R. C. Myers, and J. P. Heremans. Spin-seebeck effect: A phonon driven spin distribution. *Physical Review Letters*, 106(18), 2011.
- [77] H.G. Beljers J.Smit. *Philips Res. Rep.*, 10.
- [78] T. Jungwirth, J. Wunderlich, V. Novák, K. Olejník, B. L. Gallagher, R. P. Campion, K. W. Edmonds, A. W. Rushforth, A. J. Ferguson, and P. Němec. Spin-dependent phenomena and device concepts explored in (Ga,Mn)As. *Reviews of Modern Physics*, 86(3):855–896, 2014.

- [79] M D Kapetanakis and I E Perakis. Magnetization relaxation and collective spin excitations in correlated double-exchange ferromagnets. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 78:155110, 2008.
- [80] Myron D. Kapetanakis, Jigang Wang, and Ilias E. Perakis. Femtosecond all-optical modulation of collective spin in the (Ga,Mn)As ferromagnet. *Journal of the Optical Society of America B*, 29(2):A95, January 2012.
- [81] Harvey Kaplan. The exchange integral in the 3d shell. *Physical Review*, 85(6):1038, 1952.
- [82] G. Karczewski, J. Jaroszyński, A. Barcz, M. Kutrowski, T. Wojtowicz, and J. Kossut. High mobility 2D electron gas in iodine modulation doped CdTe/CdMgTe heterostructures. *Journal of Crystal Growth*, 184-185:814–817, 1998.
- [83] Tadao Kasuya. A Theory of Metallic Ferro- and Antiferromagnetism on Zener’s Model . *Progress of Theoretical Physics*, 16(1):45–57, 1956.
- [84] J. Kerr, 1877.
- [85] 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.
- [86] Khashayar Khazen. *Ferromagnetic Resonance Investigation of GaMnAs Nanometric Layers*. PhD thesis, 2008.
- [87] A. Kimel, G. Astakhov, a. Kirilyuk, G. Schott, G. Karczewski, W. Ossau, G. Schmidt, L. Molenkamp, and Th. Rasing. Observation of Giant Magnetic Linear Dichroism in (Ga,Mn)As. *Physical Review Letters*, 94(22):227203, June 2005.
- [88] C. Kittel. Excitation of spin waves in an antiferromagnet by a uniform rf field. *Physical Review*, 110(6):1295–1297, 1958.
- [89] Masaki Kobayashi, Iriya Muneta, Yukiharu Takeda, Yoshihisa Harada, Atsushi Fujimori, Juraj Krempaský, Thorsten Schmitt, Shinobu Ohya, Masaaki Tanaka, Masaharu Oshima, and Vladimir N. Strocov. Unveiling the impurity band induced ferromagnetism in the magnetic semiconductor (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 89:205204, 2014.
- [90] S. Kobayashi, Y. Hashimoto, and H. Munekata. Investigation of an effective anisotropy field involved in photoinduced precession of magnetization in (Ga,Mn)As. *Journal of Applied Physics*, 105(7):07C519, 2009.
- [91] S Kobayashi, K Suda, J Aoyama, D Nakahara, and H Munekata. Photo-Induced Precession of Magnetization in Metal /(Ga,Mn)As Systems. *IEEE Transactions on Magnetics*, 46(6):2470–2473, 2010.
- [92] E. Kojima, R. Shimano, Y. Hashimoto, S. Katsumoto, Y. Iye, and M. Kuwata-Gonokami. Observation of the spin-charge thermal isolation of ferromagnetic Ga_{0.94}Mn_{0.06}As by time-resolved magneto-optical measurements. *Physical Review B*, 68(19):193203, 2003.
- [93] B. Koopmans, M. Van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J M De Jonge. Ultrafast magneto-optics in nickel: magnetism or optics? *Physical Review Letters*, 85(4):844–847, 2000.

- [94] M. Kopecky, J. Kub, F. MacA, J. Mazek, O. Pacherova, A. W. Rushforth, B. L. Gallagher, R. P. Champion, V. Novak, 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.
- [95] H. Krenn, W. Zawadzki, and G. Bauer. Optically induced magnetization in a dilute magnetic semiconductor: $\text{Hg}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$. *Physical Review Letters*, 55(14):1510–1513, 1985.
- [96] V V Kruglyak, S O Demokritov, and D Grundler. Magnonics. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 43(26):264001, July 2010.
- [97] S.-M. Lee, D G Cahill, and T H Allen. Thermal conductivity. *Phys. Rev. B*, 52(1):253, 1995.
- [98] H. W. Lehmann. Semiconducting Properties of Ferromagnetic CdCr_2Se_4 . *Physical Review*, 163(2):488–496, 1967.
- [99] 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.
- [100] K. Lenz, H. Wende, W. Kuch, K. Baberschke, K. Nagy, and A. Jánossy. Two-magnon scattering and viscous Gilbert damping in ultrathin ferromagnets. *Physical Review B*, 73(14):144424, 2006.
- [101] A I Liechtenstein, M I Katsnelson, and V A Gubanov. Exchange interactions and spin-wave stiffness in ferromagnetic metals. *J. Phys. F: Metal Phys.*, 14(7):L125–L128, 1984.
- [102] Chuangang Lin and D.D.L. Chung. Nanoclay Paste as a Thermal Interface Material for Smooth Surfaces. *Journal of Electronic Materials*, 37(11):1698–1709, 2008.
- [103] 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(21):214432, December 2011.
- [104] X. Liu, A. Prasad, J. Nishio, E. R. Weber, Z. Liliental-Weber, and W. Walukiewicz. Native point defects in low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 67(2):279, 1995.
- [105] X. Liu, Y. Zhou, and J. Furdyna. Angular dependence of spin-wave resonances and surface spin pinning in ferromagnetic (Ga,Mn) As films. *Physical Review B*, 75(19):195220, May 2007.
- [106] X. D. Liu, Z. Xu, R. X. Gao, Z. F. Chen, T. S. Lai, J. Du, and S. M. Zhou. Single laser pulse induced dynamic magnetization reversal mechanism of perpendicularly magnetized L 10 FePt films. *Journal of Applied Physics*, 106(5):053907, 2009.
- [107] Y. Liu, L. R. Shelford, V. V. Kruglyak, R. J. Hicken, Y. Sakuraba, M. Oogane, and Y. Ando. Optically induced magnetization dynamics and variation of damping parameter in epitaxial Co_2MnSi Heusler alloy films. *Physical Review B*, 81(9):094402, 2010.
- [108] A. J. Lochtefeld, M. R. Melloch, J. C. P. Chang, and E. S. Harmon. The role of point defects and arsenic precipitates in carrier trapping and recombination in low-temperature grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 69(10):1465, 1996.

- [109] David C. Look. Molecular beam epitaxial GaAs grown at low temperatures. *Thin Solid Films*, 231(1-2):61–73, 1993.
- [110] EDP science (1999) Magnétisme, E. du Trémolet de Lacheisserie.
- [111] Meghmahar Manekar and S B Roy. Reproducible room temperature giant magnetocaloric effect in Fe–Rh. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 41(19):192004, 2008.
- [112] S Mangin, M Gottwald, C-h Lambert, D Steil, V Uhlř, L Pang, M Hehn, S Alebrand, M Cinchetti, G Malinowski, Y Fainman, M Aeschlimann, and E E Fullerton. Engineered materials for all-optical helicity-dependent magnetic switching. *Nature materials*, 13(February):286–292, 2014.
- [113] B. T. Matthias, R. M. Bozorth, and J. H. Van Vleck. Ferromagnetic interaction in EuO. *Physical Review Letters*, 7(5):160–161, 1961.
- [114] B. T. Matthias, H. Suhl, and E. Corenzwit. Spin exchange in superconductors. *Physical Review Letters*, 1(3):92–94, 1958.
- [115] J. Mašek, J. Kudrnovský, F. Máca, Jairo Sinova, A. MacDonald, R. Campion, B. Gallagher, and T. Jungwirth. Mn-doped Ga(As,P) and (Al,Ga)As ferromagnetic semiconductors: Electronic structure calculations. *Physical Review B*, 75(4):045202, 2007.
- [116] T. R. McGuire, B. E. Argyle, M. W. Shafer, and J. S. Smart. Magnetic properties of some divalent europium compounds. *Journal of Applied Physics*, 34(4):1345–1346, 1963.
- [117] Romain Bernard Mignot, Frederic Dubas, Christophe Espanet, Cecile Cuchet, and Didier Chamagne. Original design of axial flux PM motor and modeling of the magnetic leakage using a magnetic equivalent circuit. *2012 IEEE Vehicle Power and Propulsion Conference, VPPC 2012*, pages 138–141, 2012.
- [118] Y. Mitsumori, A. Oiwa, T. Shupinski, H. Maruki, Y. Kashimura, F. Minami, and H. Munekata. Dynamics of photoinduced magnetization rotation in ferromagnetic semiconductor p-(Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 69(3):033203, January 2004.
- [119] Graeme P Moore, Jacques Ferré, Alexandra Mougin, Maria Moreno, and Lutz Däweritz. Magnetic anisotropy and switching process in diluted (Ga,Mn)As magnetic semiconductor films. *Journal of Applied Physics*, 94(7):4530, 2003.
- [120] A Mougin, C Dufour, K Dumesnil, and Ph Mangin. Strain-induced magnetic anisotropy in single-crystal R Fe₂ (110) thin films. *Physical Review B*, 62(14):9517–9531, 2000.
- [121] B. Y. Mueller and B. Rethfeld. Thermodynamic micro-temperature model of ultrafast magnetization dynamics. *Physical Review B*, 90(14):144420, 2014.
- [122] H. Munekata, H. Ohno, S. Von Molnar, Armin Segmüller, L. L. Chang, and L. Esaki. Diluted magnetic III-V semiconductors. *Physical Review Letters*, 63(17):1849–1852, 1989.
- [123] P Němec, V Novák, N Tesařová, E Rozkotová, H Reichlová, D Butkovičová, F Trojánek, K Olejník, P Malý, R P Campion, B L Gallagher, Jairo Sinova, and T Jungwirth. The essential role of carefully optimized synthesis for elucidating intrinsic material properties of (Ga,Mn)As. *Nature communications*, 4:1422, 2013.
- [124] Alvaro S. Núñez, J. Fernández-Rossier, M. Abolfath, and a. H. MacDonald. Optical control of the magnetization damping in ferromagnetic semiconductors. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 272-276(III):1913–1914, 2004.

- [125] P. Němec, E. Rozkotová, N. Tesařová, F. Trojánek, E. De Ranieri, K. Olejník, J. Zemen, V. Novák, M. Cukr, P. Malý, and T. Jungwirth. Experimental observation of the optical spin transfer torque. *Nature Physics*, 8(5):411–415, 2012.
- [126] 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. *Appl. Phys. Lett.*, 69(3):363–365, 1996.
- [127] A. Oiwa, Y. Mitsumori, R. Moriya, T. Shupinski, and H. Munekata. Effect of optical spin injection on ferromagnetically coupled Mn spins in the III-V magnetic alloy semiconductor (Ga,Mn)As. *Physical review letters*, 88(13):137202, 2002.
- [128] A. Oiwa, T. Shupinski, and H. Munekata. Control of magnetization reversal process by light illumination in ferromagnetic semiconductor heterostructure p-(In, Mn)As/GaSb. *Applied Physics Letters*, 78(4):518–520, 2001.
- [129] A. Oiwa, H. Takechi, and H. Munekata. Photoinduced magnetization rotation and precessional motion of magnetization in ferromagnetic (Ga,Mn)As. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 18(1):9–13, 2005.
- [130] J. Okabayashi, J. Okabayashi, a. Kimura, a. Kimura, O. Rader, O. Rader, T. Mizokawa, T. Mizokawa, a. Fujimori, a. Fujimori, T. Hayashi, T. Hayashi, M. Tanaka, and M. Tanaka. Core-level photoemission study of Ga. *Physical Review B*, 58(8):4211–4214, 1998.
- [131] M. R. Oliver, J. O. Dimmock, a. L. McWhorter, and T. B. Reed. Conductivity studies in europium oxide. *Physical Review B*, 5(3):1078–1098, 1972.
- [132] M. Ordal, L. L. Long, R. J. Bell, S. E. Bell, R. R. Bell, R. W. Alexander, and C. Ward. Optical properties of the metals Al, Co, Cu, Au, Fe, Pb, Ni, Pd, Pt, Ag, Ti, and W in the infrared and far infrared. *Applied optics*, 22(7):1099–1020, 1983.
- [133] H. Ott, S. J. Heise, R. Sutarto, Z. Hu, C. F. Chang, H. H. Hsieh, H. J. Lin, C. T. Chen, and L. H. Tjeng. Soft x-ray magnetic circular dichroism study on Gd-doped EuO thin films. *Physical Review B*, 73(9):094407, 2006.
- [134] Carl E. Patton, Charles H. Wilts, and Floyd B. Humphrey. Relaxation processes for ferromagnetic resonance in thin films. *Journal of Applied Physics*, 38(3):1358–1359, 1967.
- [135] Aaron Patz, Tianqi Li, Xinyu Liu, Jacek K. Furdyna, Ilias E. Perakis, and Jigang Wang. Ultrafast probes of nonequilibrium hole spin relaxation in the ferromagnetic semiconductor GaMnAs. *Physical Review B*, 91(15):155108, 2015.
- [136] S. Potashnik, K. Ku, R. Mahendiran, S. Chun, R. Wang, N. Samarth, and P. Schiffer. Saturated ferromagnetism and magnetization deficit in optimally annealed Ga_{1-x}Mn_xAs epilayers. *Physical Review B*, 66(1):012408, 2002.
- [137] 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 Ga_{1-x}Mn_xAs. *Applied Physics Letters*, 79(10):1495–1497, 2001.
- [138] 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 (Ga,Mn)As/GaAs structures. *Physical Review B*, 79:085304, 2009.

- [139] J. Qi, Y. Xu, N. H. Tolk, X. Liu, J. K. Furdyna, and I. E. Perakis. Coherent magnetization precession in GaMnAs induced by ultrafast optical excitation. *Applied Physics Letters*, 91(11):2005–2008, 2007.
- [140] R.B Woolsey R. M. White. Magnon corrections to the effective mass of an electron in a magnetic semiconductor. *Phys Rev*, 176(3):908–911, 1968.
- [141] G T Rado and J R Weertman. Spin-Wave resonance in a ferromagnetic metal. *Journal of Physics and chemistry of solids*, 11:315–333, 1959.
- [142] A. J. Ramsay, P. E. Roy, J. A. Haigh, R. M. Otxoa, A. C. Irvine, T. Janda, R. P. Campion, B. L. Gallagher, and J. Wunderlich. Optical Spin-Transfer-Torque-Driven Domain-Wall Motion in a Ferromagnetic Semiconductor. *Physical Review Letters*, 114(6):067202, 2015.
- [143] M. Reichling and H. Grönbeck. Harmonic heat flow in isotropic layered systems and its use for thin film thermal conductivity measurements. *Journal of Applied Physics*, 75(4):1914–1922, 1994.
- [144] S. G. Reidy, L. Cheng, and W. E. Bailey. Dopants for independent control of precessional frequency and damping in Ni₈₁Fe₁₉ (50 nm) thin films. *Applied Physics Letters*, 82(8):1254–1256, 2003.
- [145] Allan Rosencwaig, Jon Opsal, W. L. Smith, and D. L. Willenborg. Detection of thermal waves through optical reflectance. *Applied Physics Letters*, 46(11):1013–1015, 1985.
- [146] T Roth, D Steil, D Hoffmann, M Bauer, M Cinchetti, and M Aeschlimann. Dynamics of the coercivity in ultrafast pump–probe experiments. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 41(16):164001, 2008.
- [147] E. Rozkotova, P. Nemec, P. Horodyska, D. Sprinzl, F. Trojanek, P. Maly, V. Novak, K. Olejnik, M. Cukr, and T. Jungwirth. Light-induced magnetization precession in GaMnAs. *Applied Physics Letters*, 92(12):122507, 2008.
- [148] W.Marshall R.Stuart. Direct exchange in ferromagnets. *Phys Rev*, 120(2):353, 1960.
- [149] M. Ruderman and C. Kittel. Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons. *Physical Review*, 96(1):99–102, 1954.
- [150] R. Rungsawang, F. Perez, D. Oustinov, J. Gómez, V. Kolkovsky, G. Karczewski, T. Wojtowicz, J. Madéo, N. Jukam, S. Dhillon, and J. Tignon. Terahertz radiation from magnetic excitations in diluted magnetic semiconductors. *Physical Review Letters*, 110(17):177203, 2013.
- [151] A. A. Rzhevsky, B. B. Krichevtsov, D. E. Bürgler, and C. M. Schneider. Magnetization dynamics induced by ultrashort optical pulses in Fe/Cr thin films. 75:224434, 2007.
- [152] Nitin Samarth. Ferromagnetic semiconductors: Battle of the bands. *Nature Materials*, 11(May):360–361, 2012.
- [153] L. M. Sandratskii and P. Bruno. Exchange interactions and Curie temperature in (GaMn)As. *Physical Review B*, 66:1–7, 2002.
- [154] E. Sarigiannidou, F. Wilhelm, E. Monroy, R. M. Galera, E. Bellet-Amalric, a. Rogalev, J. Goulon, J. Cibert, and H. Mariette. Intrinsic ferromagnetism in wurtzite (Ga,Mn)N semiconductor. *Physical Review B*, 74(4):041306, 2006.

- [155] W M Saslow. Landau – Lifshitz or Gilbert damping ? *Journal of Applied Physics*, 105:07D315, 2009.
- [156] M. Sawicki, T. Devillers, S. Gałęski, C. Simserides, S. Dobkowska, B. Faina, a. Grois, a. Navarro-Quezada, K. N. Trohidou, J. a. Majewski, T. Dietl, and a. Bonanni. Origin of low-temperature magnetic ordering in Ga 1-xMn xN. *Physical Review B*, 85(20):205204, 2012.
- [157] M. Sawicki, F. Matsukura, a. Idziaszek, T. Dietl, G. Schott, C. Ruester, C. Gould, G. Karczewski, G. Schmidt, and L. Molenkamp. Temperature dependent magnetic anisotropy in (Ga,Mn)As layers. *Physical Review B*, 70(24):245325, 2004.
- [158] M. Scarpulla, B. L. Cardozo, R. Farshchi, W. M Hlaing Oo, M. D. McCluskey, K. M. Yu, and O. D. Dubon. Ferromagnetism in Ga1-xMnxP: Evidence for inter-Mn exchange mediated by localized holes within a detached impurity band. *Physical Review Letters*, 95(20):207204, 2005.
- [159] Rudolf Schäfer and Alex Hubert. A new magnetooptic effect related to non-uniform magnetization on the surface of a ferromagnet. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 118(1):271–288, 1990.
- [160] 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(11):117204, 2010.
- [161] E. Schlömann. Spin-Wave Resonance Analysis of Ferromagnetic resonance in polycrystalline ferrite. *Journal of Physics and chemistry of solids*, 6:242–256, 1958.
- [162] Andreas Schmehl, Venu Vaithyanathan, Alexander Herrnberger, Stefan Thiel, Christoph Richter, Marco Liberati, Tassilo Heeg, Martin Röckerath, Lena Fitting Kourkoutis, Sebastian Mühlbauer, Peter Böni, David a Muller, Yuri Barash, Jürgen Schubert, Yves Idzerda, Jochen Mannhart, and Darrell G Schlom. Epitaxial integration of the highly spin-polarized ferromagnetic semiconductor EuO with silicon and GaN. *Nature materials*, 6(11):882–887, 2007.
- [163] J. Schneider, U. Kaufmann, W. Wilkening, M. Baeumler, and F. Köhl. Electronic structure of the neutral manganese acceptor in gallium arsenide. *Physical Review Letters*, 59(2):240–243, 1987.
- [164] P.C. Scholten. Which SI? *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 149(1-2):57–59, 1995.
- [165] R. B. Schoolar and J. N. Zemel. Preparation of Single-Crystal Films of PbS. *Journal of Applied Physics*, 35(6):1848, 1964.
- [166] J. R. Schrieffer and P. Wolff. Relation between the Anderson and Kondo Hamiltonians. *Physical Review*, 149(2):491–492, 1966.
- [167] M. H. Seavey and P. E. Tannenwald. Direct observation of spin-wave resonance. *Physical Review Letters*, 1(5):168–169, 1958.
- [168] A. Shen, H. Ohno, F. Matsukura, Y. Sugawara, N. Akiba, T. Kuroiwa, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto, and Y. Iye. Epitaxy of (Ga, Mn)As, a new diluted magnetic semiconductor based on GaAs. *Journal of Crystal Growth*, 175-176:1069–1074, 1997.

- [169] S. Shihab, H. Riahi, L. Thevenard, H. J. von Bardeleben, A. Lemaître, and C. Gourdon. Systematic study of the spin stiffness dependence on phosphorus alloying in the ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)As. *Applied Physics Letters*, 106(14):142408, 2015.
- [170] Jairo Sinova, T. Jungwirth, J. Kucera, and A. H. MacDonald. Infrared magneto-optical properties of (III,Mn)V ferromagnetic semiconductors. page 11, 2003.
- [171] C. Śliwa and T. Dietl. Magnitude and crystalline anisotropy of hole magnetization in (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 74(24):245215, 2006.
- [172] J.C. Slonczewski. Current-driven excitation of magnetic multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 159(1-2):L1–L7, 1996.
- [173] Saki Sonoda, Saburo Shimizu, Takahiko Sasaki, Yoshiyuki Yamamoto, and Hidenobu Hori. Molecular beam epitaxy of wurtzite (Ga,Mn)N films on sapphire(0 0 0 1) showing the ferromagnetic behaviour at room temperature. *Journal of Crystal Growth*, 237-239(1-4 II):1358–1362, 2002.
- [174] 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*, 99:047601, 2007.
- [175] Peter R. Stone, Jeffrey W. Beeman, Kin M. Yu, and Oscar D. Dubon. Tuning of ferromagnetism through anion substitution in Ga-Mn-pnictide ferromagnetic semiconductors. *Physica B: Condensed Matter*, 401-402:454–457, 2007.
- [176] C. Sun, J. Kono, Y.-H. Cho, A. Wójcik, A. Belyanin, and H. Munekata. Above-bandgap magneto-optical Kerr effect in ferromagnetic (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 83(12):125206, March 2011.
- [177] A. G. Swartz, J. Ciraldo, J. J I Wong, Yan Li, Wei Han, Tao Lin, S. MacK, J. Shi, D. D. Awschalom, and R. K. Kawakami. Epitaxial EuO thin films on GaAs. *Applied Physics Letters*, 97(11):2013–2016, 2010.
- [178] D. Talbayev, H. Zhao, G. Lüpke, A. Venimadhav, and Qi Li. Photoinduced coherent magnetization precession in epitaxial La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃ films. *Physical Review B*, 73(1):014417, 2006.
- [179] M. Tanaka and Y. Higo. Large Tunneling Magnetoresistance in GaMnAs/AlAs/GaMnAs Ferromagnetic Semiconductor Tunnel Junctions. *Physical Review Letters*, 87(2):026602, 2001.
- [180] H X Tang, R K Kawakami, D D Awschalom, and M L Roukes. Giant planar Hall effect in epitaxial (Ga,Mn)as devices. *Physical review letters*, 90(10):107201, 2003.
- [181] N. Tesařová, D. Butkovičová, R. P. Campion, a. W. Rushforth, K. W. Edmonds, P. Wadley, B. L. Gallagher, E. Schmoranzarová, F. Trojánek, P. Malý, P. Motloch, V. Novák, T. Jungwirth, and P. Němec. Comparison of micromagnetic parameters of the ferromagnetic semiconductors (Ga,Mn)(As,P) and (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 90(15):155203, 2014.
- [182] N. Tesařová, P. Němec, E. Rozkotová, J. Zemen, T. Janda, D. Butkovičová, F. Trojánek, K. Olejník, V. Novák, P. Malý, and T. Jungwirth. Experimental observation of the optical spin-orbit torque. *Nature Photonics*, 7(6):492–498, 2013.

- [183] N. Tesařová, T. Ostatnický, V. Novák, K. Olejník, J. Šubrt, H. Reichlová, C. T. Ellis, a. Mukherjee, J. Lee, G. M. Sipahi, J. Sinova, J. Hamrle, T. Jungwirth, P. Němec, J. Černe, and K. Výborný. Systematic study of magnetic linear dichroism and birefringence in (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 89(8):085203, February 2014.
- [184] N. Tesarova, P. Nemec, E. Rozkotova, J. Subrt, H. Reichlova, D. Butkovicova, F. Trojanek, P. Maly, V. Novak, and T. Jungwirth. Direct measurement of the three-dimensional magnetization vector trajectory in GaMnAs by a magneto-optical pump-and-probe method. *Applied Physics Letters*, 100(10):102403, 2012.
- [185] A Teviotdale. Zener’s Treatment of Ferromagnetism. *Proceedings of the Physical Society. Section A*, 65(11):957–958, 1952.
- [186] L. Thevenard. Phd thesis : Etude des propriétés ferromagnétiques de (ga,mn)as au moyen de l’hydrogénation.
- [187] 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, April 2013.
- [188] L. Thevenard, S. Hussain, H. von Bardeleben, M. Bernard, a. Lemaître, and C. Gourdon. High domain wall velocities in in-plane magnetized (Ga,Mn)(As,P) layers. *Physical Review B*, 85(6):064419, 2012.
- [189] L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, and A. Lemaître. Evolution of the magnetic anisotropy with carrier density in hydrogenated (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 75(19):195218, May 2007.
- [190] L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, G. Patriarche, a. Lemaître, N. Vernier, and J. Ferré. Magnetic properties and domain structure of (Ga,Mn)As films with perpendicular anisotropy. *Physical Review B*, 73(19):195331, 2006.
- [191] L. Thevenard, A. Miard, L. Vila, G. Faini, A. Lemaître, N. Vernier, J. Ferré, and S. Fusil. Magnetic patterning of (Ga,Mn)As by hydrogen passivation. *Applied Physics Letters*, 91(14):142511, 2007.
- [192] A Thiaville, Y Nakatani, J Miltat, and Y Suzuki. Micromagnetic understanding of current-driven domain wall motion in patterned nanowires. *Europhysics Letters (EPL)*, 69(6):990–996, March 2005.
- [193] G. Traeger, L. Wenzel, and A. Hubert. Computer experiments on the information depth and the figure of merit in magnetooptics. *Physica Status Solidi (a)*, 131(1):201–227, 1992.
- [194] Yaroslav Tserkovnyak, Gregory a. Fiete, and Bertrand I. Halperin. Mean-field magnetization relaxation in conducting ferromagnets. *Applied Physics Letters*, 84(25):5234–5236, 2004.
- [195] S. Van Houten. Magnetic interaction in EuS, EuSe, and EuTe. *Physics Letters*, 2(5):215–216, 1962.
- [196] M. van Kampen, C. Jozsa, J. Kohlhepp, P. LeClair, L. Lagae, W. de Jonge, and B. Koopmans. All-Optical Probe of Coherent Spin Waves. *Physical Review Letters*, 88(22):227201, May 2002.

- [197] W. Walukiewicz. Amphoteric native defects in semiconductors. *Applied Physics Letters*, 54(21):2094, 1989.
- [198] W. Walukiewicz. Intrinsic limitations to the doping of wide-gap semiconductors. *Physica B: Condensed Matter*, 302-303:123–134, 2001.
- [199] D. Wang, Y. Ren, X. Liu, J. Furdyna, M. Grimsditch, and R. Merlin. Light-induced magnetic precession in (Ga,Mn)As slabs: Hybrid standing-wave Damon-Eshbach modes. *Physical Review B*, 75(23):233308, June 2007.
- [200] D.M. Wang, Y.H. Ren, R. Merlin, X. Liu, J.K. Furdyna, and M.H. Grimsditch. Coherent spin waves in thin-film GaMnAs. *2005 Quantum Electronics and Laser Science Conference*, 1:604–606, 2005.
- [201] J. Wang, Cywiński, C. Sun, J. Kono, H. Munekata, and L. J. Sham. Femtosecond demagnetization and hot-hole relaxation in ferromagnetic (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 77(23):235308, 2008.
- [202] M. Wang, K. W. Edmonds, B. L. Gallagher, a. W. Rushforth, O. Makarovskiy, a. Patané, R. P. Campion, C. T. Foxon, V. Novak, and T. Jungwirth. High Curie temperatures at low compensation in the ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 87(12):121301(R), 2013.
- [203] U. Welp, V. K. Vlasko-Vlasov, and T. Wojtowicz. Magnetic Domain Structure and Magnetic Anisotropy in (Ga,Mn)As. *Physical Review Letters*, 90(16):167206, 2003.
- [204] Agnieszka Werpachowska. Phd Thesis Loewdin calculus for multiband Hamiltonians. January 2011.
- [205] Agnieszka Werpachowska and Tomasz Dietl. Theory of spin waves in ferromagnetic (Ga,Mn)As. *Physical Review B*, 82(8):085204, August 2010.
- [206] K. J. Wickey, M. D. Kapetanakis, I. E. Perakis, C. Piermarocchi, and J. Wang. Femtosecond coherent control of spins in (Ga,Mn)as ferromagnetic semiconductors using light. *Physical Review Letters*, 103(4):1–4, 2009.
- [207] G. Woltersdorf and B. Heinrich. Two-magnon scattering in a self-assembled nanoscale network of misfit dislocations. *Physical Review B*, 69(18):184417, 2004.
- [208] G. Woltersdorf, F. Hoffmann, H. G. Bauer, and C. H. Back. Magnetic homogeneity of the dynamic properties of (Ga,Mn)As films from the submicrometer to millimeter length scale. *Physical Review B*, 87(5):054422, February 2013.
- [209] Lei Xu and Shufeng Zhang. Magnetization dynamics at elevated temperatures. *Physica E: Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, 45:72–76, 2012.
- [210] Lei Xu and Shufeng Zhang. Self-consistent Bloch equation and Landau-Lifshitz-Bloch equation of ferromagnets: A comparison. *Journal of Applied Physics*, 113(16):163911, 2013.
- [211] M Yamanouchi, D Chiba, F Matsukura, T Dietl, and H Ohno. Velocity of Domain-Wall Motion Induced by Electrical Current in the Ferromagnetic Semiconductor (Ga,Mn)As. *Physical Review Letters*, 96(9):96601, 2006.
- [212] Kei Yosida. Magnetic properties of Cu-Mn alloys. *Physical Review*, 106(5):893, 1957.

- [213] Shavkat Yuldashev, Khusan Igamberdiev, Sejoon Lee, Younghae Kwon, Yongmin Kim, Hyunsik Im, Anatoly Shashkov, and Tae Won Kang. Specific heat study of GaMnAs. *Applied Physics Express*, 3(7):8–11, 2010.
- [214] J. P. Zahn, A. Gamouras, S. March, X. Liu, J. K. Furdyna, and K. C. Hall. Ultrafast studies of carrier and magnetization dynamics in GaMnAs. *Journal of Applied Physics*, 107(3):033908, 2010.
- [215] Clarence Zener. Interaction between the d shells in the transition metals. *Physical Review*, 619(1939):440, 1951.
- [216] Clarence Zener. Interaction between the d-shells in the transition metals. III. Calculation of the Weiss factors in Fe, Co, and Ni. *Physical Review*, 83(2):1939–1941, 1951.
- [217] H. B. Zhao, D. Talbayev, Q. G. Yang, G. Lüpke, a. T. Hanbicki, C. H. Li, O. M J Van'T Erve, G. Kioseoglou, and B. T. Jonker. Ultrafast magnetization dynamics of epitaxial Fe films on AlGaAs (001). *Applied Physics Letters*, 86(15):152512, 2005.
- [218] Y Zhou. Magnetic anisotropy, spin pinning and exchange constants of (Ga,Mn)As films. *IEEE Transactions on Magnetism*, 43(6):3019–3021, 2007.
- [219] Yonggang Zhu, Xinhui Zhang, Tao Li, Lin Chen, Jun Lu, and Jianhua Zhao. Spin relaxation and dephasing mechanism in (Ga,Mn)As studied by time-resolved Kerr rotation. *Applied Physics Letters*, 94(14):142109, 2009.
- [220] Yonggang Zhu, Xinhui Zhang, Tao Li, Xia Huang, Lifan Han, and Jianhua Zhao. Ultrafast dynamics of four-state magnetization reversal in (Ga,Mn)As. *Applied Physics Letters*, 95(5):052108, 2009.