UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA

ESTUDO DO FERRO, FERRI E SPERIMAGNETISMO EM BICAMADAS E FILMES AMORFOS DE R-Co (R = Y, Gd, Tb)

SBI-IFUSP
305M810T3408

Taeko Yonamine

Tese apresentada ao Instituto de Física da Universidade de São Paulo para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Orientador: Prof. Dr. Antonio D. Santos

Comissão examinadora:
Prof. Dr. Antonio D. Santos - IFUSP
Profa. Dra. Marcia C. A. Fantini - IFUSP
Prof. Dr. Fernando J. G. Landgraf – IPT
Prof. Dr. Miguel Novak – UFRJ
Prof. Dr. Luiz Gustavo Pereira - UFRGS

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
ex. 1
SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO
3408
INSTITUTO DE FÍSICA

Trabalho financiado por
FAPESP, CNPq, FINEP

São Paulo
2000

530.417
Y55e
D
ex.1

FICHA CATALOGRÁFICA
Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação do Instituto de Física da Universidade de São Paulo

Yonamine, Taeko

Estudo do Ferro, Ferri e Sperimagnetismo em Bicamadas e Filmes Amorfos de R-Co (R= Y, Gd, Tb) São Paulo, 2000.

Tese (Doutoramento) - Universidade de São Paulo. Instituto de Física – Departamento de Física dos Materiais e Mecânica

Orientador: Prof. Dr. Antonio Domingues dos Santos
Área de Concentração: Física do Estado Sólido

Unitermos: 1. Filmes Finos Amorfos de Terra-Rara-Cobalto; 2. Parede de Domínios;
3. Teoria de Campo Médio;
4. Efeitos Kerr Magneto-Ópticos.

USP/IF/SBI-055/2000

Ao meu marido Marcos e aos meus filhos Yuji e Lidia, os meus tesouros mais preciosos

AGRADECIMENTOS

Como se sabe, um trabalho de doutorado conta com a participação de muitas pessoas. Neste espaço, eu espero conseguir demonstrar a minha gratidão a todos que contribuíram para a conclusão de mais uma etapa da minha vida.

Aos amigos do LMM:

Toninho, meu orientador e amigo, com quem eu aprendi muito.
Frank P. Missell, chefe do laboratório e primeiro orientador (1989).
Renato Cohen
Sérgio Romero
Iran M.Amorim
Marcelo S. Lancarotte
Adriana, Carlos, Jeroen
Val, Regina, Angela
Paulo, Marcos
Rui, Wagner, Zé Dada
Marília, Daniel, Fernando, Cezar
José Antonio, Shintaro, Gerardo

Aos amigos do LAMFI:

Manfredo, Marcos, Rodrigo, Cristina

Aos meus familiares:

meus pais: Toki e Kagenobu Yonamine
minhas irmãs: Satsuki (Ana) e Satoko (Cia)
meus sogros: Sr. Luiz e D. Tereza

Aos amigos da Faculdade e demais colaboradores...

MUITO OBRIGADA

ABSTRACT

In this work we present the magnetic and magneto-optical study of thin films of R-Co and Y-Co/R-Co bilayer, R=Gd, Tb. Three different kinds of magnetism are found in these films: ferromagnetism (Y-Co), ferrimagnetism (Gd-Co) and sperimagnetism (Tb-Co).

The samples were deposited by DC magnetron sputtering on glass substrate, and were protected from oxidation by 30nm thick Si_3N_4 layers. Magnetic characterization of the samples was done using SQUID, VSM and transverse magneto-optical Kerr effect (TMOKE) magnetometers.

A large domain wall (DW), localized at the $YCo_2/GdCo_2$ amorphous bilayer interface, is formed during a macroscopic ferri-ferromagnetic transition. A model to analyze the DW is based on Zeeman, anisotropy and exchange energies. As a result, we obtained three interdependent equations, relating the DW thickness δ, the relative position of the wall Δ, and the exchange constant A.

In this PhD thesis we present the temperature dependence of δ, Δ, and A. The model was improved to account for the unusual DW present at the bilayer interface. About 60% of the DW was inside the Y-Co layer, and the DW was found to be quite large, occupying ~64% of the volume of the bilayer. The exchange constant A presents a monotonically decreasing value, ranging from ~3.1 $\times 10^{-7}$ erg/cm at 25K to ~2.0 $\times 10^{-7}$ erg/cm at room temperature.

Gd was replaced by Tb and a study of the DW in amorphous $YCo_2/TbCo_2$ bilayer is presented. The main difference between Gd-Co and Tb-Co films is the kind of magnetism they present, the first is ferrimagnetic and the second is sperimagnetic. As a consequence, the Tb based film shows a much higher anisotropy field than the Gd-Co film, at room temperature. The high Tb-Co anisotropy effect on the bilayer is a DW almost totally localized in the Y-Co layer. This behavior was used to determine the δ dependence on the magnetic field and the exchange constant A for different temperatures. A

ranged from 1.8×10^{-7} erg/cm at 150K to 1.4×10^{-7} erg/cm at 300K and, for all temperatures, δ decreases from ~100nm, at the transition field (H_t), to ~20nm at 1kOe.

In order to increase the understanding of the Gd and Tb based bilayers, the temperature dependence of the saturation magnetization of R-Co (R=Gd, Tb) films was simulated by the mean field theory. The values of exchange integrals $J_{R\text{-}Co}$ between R and Co atoms are in agreement to the literature.

We also studied some ternary films, but in less detail. The magnetic and magneto-optical characterization of R-FeCo (R=Gd, Tb) films and Gd-FeCo/Tb-FeCo bilayer revealed an in-plane and perpendicular anisotropy in Gd and in Tb based films, respectively.

RESUMO

Neste trabalho, apresentamos o estudo magnético e magneto-óptico de filmes de R-Co e bicamada Y-Co/R-Co, R=Gd, Tb. Nesses filmes, três tipos de magnetismo são observados: ferromagnetismo (Y-Co), ferrimagnetismo (Gd-Co), e sperimagnetismo (Tb-Co).

As amostras foram depositadas por *DC magnetron sputtering* sobre substrato de vidro e protegidas da oxidação por camadas de 30nm de espessura de Si_3N_4. A caracterização magnética das amostras foi feita com a utilização dos magnetômetros SQUID, MAV e MEK-bt.

Uma grande parede de domínios, localizada na interface da bicamada amorfa $YCo_2/GdCo_2$, é formada durante uma transição ferri-ferromagnética macroscópica. O modelo para analisar a parede de domínios é baseado nas energias Zeeman, anisotropia e troca. Como resultado, nós obtivemos três equações interdependentes, relacionando a espessura da parede de domínios δ, a posição relativa da parede Δ e a constante de troca A, para os pares atômicos Co-Co.

Nesta tese, apresentamos a dependência térmica de δ, Δ e A. O modelo foi aperfeiçoado para levar em conta a forma não usual da parede de domínios presente na interface da bicamada. A parede de domínios ocupa ~64% do volume da bicamada e está localizada, em sua maior parte (~60%), na camada Y-Co. A constante de troca A apresentou um decréscimo monotônico, com os valores variando de $\sim 3.1 \times 10^{-7}$ erg/cm a 25K para $\sim 2.0 \times 10^{-7}$ erg/cm à temperatura ambiente.

O Gd foi substituído por Tb e o estudo da parede de domínios na bicamada amorfa $YCo_2/TbCo_2$ é apresentado. A principal diferença entre os filmes de Gd-Co e de Tb-Co é o tipo de magnetismo que eles apresentam: o primeiro é ferrimagnético e o segundo é sperimagnético. Como conseqüência, o filme de Tb-Co apresenta um campo de anisotropia muito maior que o filme de Gd-Co, à temperatura ambiente. O efeito da alta anisotropia sobre a bicamada é uma parede de domínios quase que totalmente localizada na

camada Y-Co. Este comportamento foi usado para determinar a dependência de δ com o campo magnético aplicado, e o valor da constante de troca A, para as diferentes temperaturas. O valor de A variou de 1.8×10^{-7} erg/cm a 150K para 1.4×10^{-7} erg/cm a 300K e, para todas as temperaturas, δ decresceu de ~100nm, no campo de transição (H_t), para ~20nm para 1kOe.

Para aumentar o entendimento sobre as bicamadas à base de Gd e Tb, a dependência térmica da magnetização de saturação de filmes de R-Co (R=Gd, Tb) foi simulada com a teoria de campo médio.

Nós fizemos também o estudo introdutório de filmes ternários. As caracterizações magnética e magneto-óptica dos filmes de R-FeCo (R=Gd, Tb) e da bicamada de Gd-FeCo/Tb-FeCo revelaram anisotropia planar e perpendicular nos filmes à base de Gd e Tb, respectivamente.

ÍNDICE

1. INTRODUÇÃO.....1

2. TÉCNICAS EXPERIMENTAIS

2.1. MAGNETRON SPUTTERING.....8

2.2. MAGNETÔMETRO SQUID.....11

2.3. MAGNETÔMETRO A EFEITO KERR EM BAIXAS TEMPERATURAS (MEK-bt).....14

3. TEORIA

3.1 INTRODUÇÃO.....17

3.2 MODELO TEÓRICO PARA A PAREDE DE DOMÍNIOS.....17

3.3 TEORIA DE CAMPO MÉDIO (TCM).....25

3.4. EFEITOS MAGNETO-ÓPTICOS.....29

3.4.1. EFEITOS KERR MAGNETO-ÓPTICOS.....30

4. LIGAS BINÁRIAS: R-Co (R=Y, Gd, Tb)

4.1. INTRODUÇÃO.....38

4.1.1. ORDEM DE CURTO ALCANCE.....38

4.1.2. COMPOSTOS Y-M (M=Fe, Co, Ni).....40

4.1.3. COMPOSTOS R-M (R=Gd, Tb – M=Fe, Ni, Co).....42

4.2. PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS.....45

4.3. CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS.....46

4.3.1. DETERMINAÇÃO DE ESPESSURA E COMPOSIÇÃO.....46

4.3.2. CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA E MAGNETO-ÓPTICA.....47

A. Y-Co.....47

B. Gd-Co.....50

C. Tb-Co.....56

4.3.3. CÁLCULO DA CONSTANTE DE TROCA (A) DE FILMES AMORFOS DE R-Co (R=Gd, Tb).....63

4.4. CONCLUSÕES.....66

5. BICAMADAS: Y-Co/R-Co (R=Gd, Tb)

5.1. INTRODUÇÃO....69

5.2. PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS....70

5.3. CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS....70

5.3.1. DETERMINAÇÃO DE ESPESSURA E COMPOSIÇÃO....71

5.3.2. CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA E MAGNETO-ÓPTICA....71

5.3.2.1. BICAMADA Y-Co/Gd-Co....71

5.3.2.2. BICAMADA Y-Co/Tb-Co....77

5.4. CONCLUSÕES....85

6. LIGAS TERNÁRIAS: Gd-FeCo, Tb-FeCo, Gd-FeCo/Tb-FeCo

6.1. INTRODUÇÃO....87

6.2. PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS....88

6.3. CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS....88

6.3.1. DETERMINAÇÃO DE ESPESSURA E COMPOSIÇÃO....88

6.3.2. DEPENDÊNCIA TÉRMICA DA MAGNETIZAÇÃO DE FILMES SIMPLES DE R-FeCo (R=Gd, Tb)....89

A. Gd-FeCo....89

B. Tb-FeCo....96

6.3.3. CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA À TEMPERATURA AMBIENTE (MAV)....99

6.3.4. CARACTERIZAÇÃO MAGNETO-ÓPTICA À TEMPERATURA AMBIENTE (MEK-bt)....101

6.4. CONCLUSÕES....107

7. CONCLUSÕES....109

SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS....113

REFERÊNCIAS....114

ANEXO 1: SUSCEPTIBILIDADE TRANSVERSAL MAGNETO-ÓPTICA (χ_t)....118

Capítulo 1

INTRODUÇÃO

O interesse no estudo de filmes amorfos de R-M (R=terra-rara, M=metal de transição) cresceu muito com a descoberta de anisotropia uniaxial perpendicular em filmes amorfos de Gd-Co, em 1973 [CHA73]. De acordo com Chaudhari *et al.*, a vantagem do filme amorfo sobre o filme policristalino orientado está na grande razão sinal/ruído, que é obtida na ausência de ruído de contorno de grão, sendo o tamanho de grão em filmes amorfos, se existir, menor que 25Å, que é ordens de magnitude menor que o comprimento de onda de lasers ópticos. Outra vantagem de materiais magnéticos amorfos para aplicação tecnológica é a possibilidade de variar a composição sem as limitações de fases de equilíbrio. É possível selecionar uma composição com qualquer ponto de compensação (T_{comp}).

Nas ligas amorfas ferrimagnéticas de Gd-Co, os átomos de cobalto se acoplam ferromagneticamente uns aos outros por uma forte interação de troca e a sub-rede do Gd se acopla antiparalelamente à do Co por uma interação de troca mais fraca. A sub-rede do Gd tem um momento maior que o do Co para T=0K, mas que decresce mais rapidamente com a temperatura, produzindo um ponto de compensação em torno de 390K, no caso do $GdCo_3$ [CHA73]. Esse ponto de compensação (T_{comp}) corresponde ao ponto de mínimo na curva de MxT da liga (Figura 1.1), quando $N_{Co}\,\mu_{Co} + N_{Gd}\,\mu_{Gd} = 0$, onde N_i é o número de átomos com momento μ_i [O'HA87].

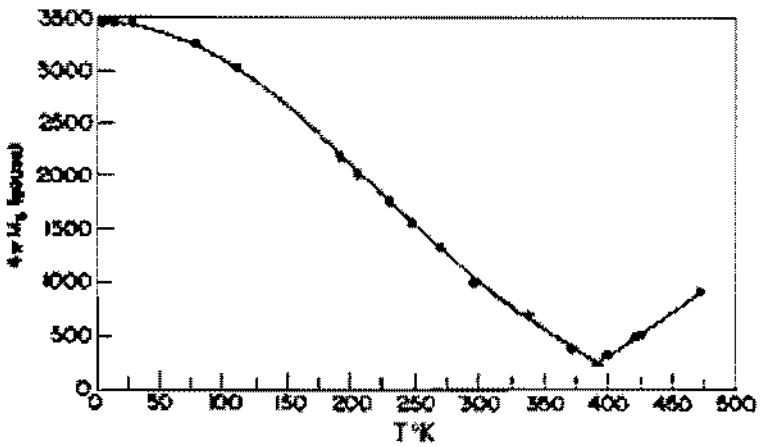


Figura 1.1. Magnetização vs. temperatura de um filme amorfo de $Gd_{0.215}\,Co_{0.785}$ [CHA73].

Metais de terra-rara (R) que possuem momento orbital não nulo, são conhecidos pela grande anisotropia aleatória em ligas amorfas [HAR73]. No caso de ligas amorfas de Gd, os efeitos da anisotropia magnética aleatória são desprezíveis devido à não existência de momento orbital do átomo de Gd. As estruturas magnéticas nessas ligas são fortemente influenciadas pelo campo de anisotropia local para os sítios de terra-rara, mesmo no estado cristalino [COE76]. Esse campo, determinado pela configuração espacial dos átomos vizinhos, será aleatório em direção e comparável em magnitude ao campo de troca experimentado pelos íons de terra-rara [HAR73]. Historicamente, o primeiro relato sobre estruturas magnéticas não colineares foi feito em 1973, quando Coey e Readman [COE73] observaram uma nova estrutura de spin ao estudar um gel férrico amorfo por espectroscopia Mössbauer. A essa configuração, em que os spins estão orientados de forma a não possuir uma direção preferencial global, eles deram o nome de speromagnética. O prefixo grego significa "espalhado em direção". No mesmo ano, Harris, Plischke e Zuckermann [HAR73] publicaram um trabalho em que apresentaram um novo modelo para magnetismo em ligas amorfas de terra-rara e metal de transição. Esse modelo é um modelo de Heisenberg em que cada spin iônico está sujeito a um campo de anisotropia local de orientação aleatória. Continuando o estudo de estruturas magnéticas, mas agora em ligas amorfas de R-M, Coey *et al.* [COE76] mostraram que a estrutura magnética da liga amorfa $DyCo_{3.4}$ é sperimagnética, com as direções dos momentos do Dy uniformemente distribuídas dentro de um cone de meio ângulo $\psi_0 = 70°$; cujo eixo é antiparalelo ao da sub-rede do Co colinear (figura 1.2 (c)). A estrutura sperimagnética, que é observada em compostos amorfos de R-M, onde ambos são magnéticos, é definida como sendo aquela em que os momentos de pelo menos uma das sub-redes estão congelados em orientações aleatórias [COE76]. Além do sperimagnetismo, são possíveis outras estruturas magnéticas não colineares, quando somente uma das sub-redes é magnética: speromagnetismo e asperomagnetismo [COE78]. O análogo colinear de um composto speromagnético é o antiferromagnético, no sentido de que a magnetização espontânea é nula e, o análogo colinear de

um composto asperomagnético é o ferromagnético, pois ambos possuem magnetização espontânea não nula (Figura 1.2).

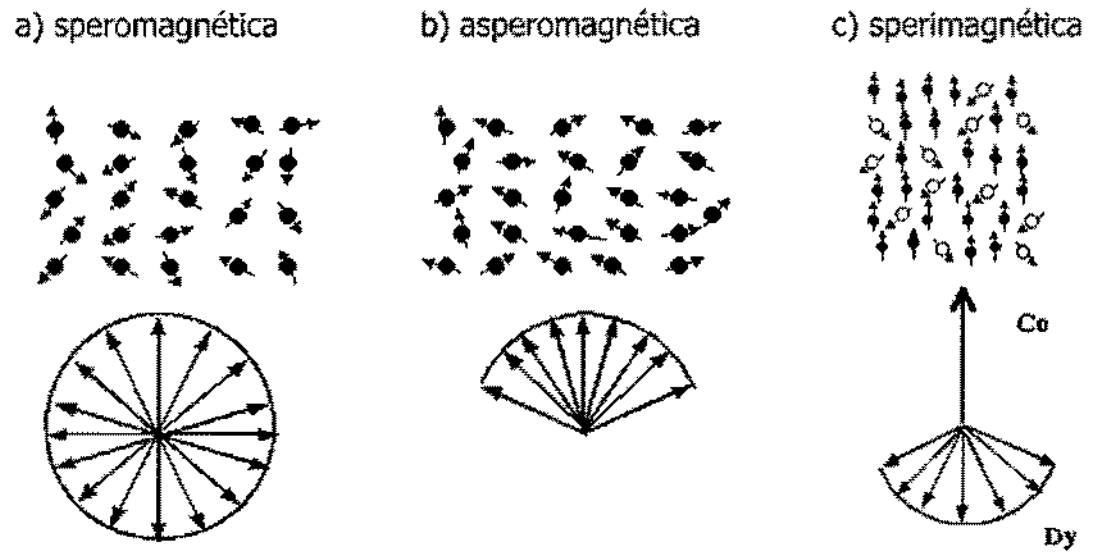


Figura 1.2. Estruturas magnéticas amorfas: a) speromagnética, b) asperomagnética c) sperimagnética (Dy-Co) [COE78].

Durante o meu mestrado [YON95], a formação de uma parede de domínios, na região da interface da bicamada amorfa $YCo_2/GdCo_2$, foi estudada. Essa parede de domínios, que se forma durante uma transição ferri-ferromagnética, serve para minimizar a interação de troca entre os átomos de cobalto. Do modelo para analisar a parede de domínios, determinamos três equações interdependentes, relacionando a espessura da parede de domínios (δ), a posição relativa da parede (Δ) e a constante de troca (A). Os valores de δ, Δ e A foram especificados à temperatura ambiente.

No doutorado, nós demos continuidade ao estudo das bicamadas à base de Gd, analisando o comportamento térmico dos parâmetros A, Δ e δ, extraídos do nosso modelo. Durante o processo de análise, percebemos a necessidade de fazer modificações no modelo, para levar em conta a forma não usual da parede de domínios. Verificamos o efeito da substituição de Gd por Tb, sobre a parede domínios, em filmes amorfos de Y-Co/Tb-Co. Considerando que os filmes de Gd-Co são ferrimagnéticos e os de Tb-Co são sperimagnéticos, mudanças significativas são observadas. Para aumentar a

compreensão a respeito das diferentes bicamadas estudadas, filmes simples de R-Co (R=Gd, Tb) foram analisados. As curvas de magnetização em função da temperatura dos filmes de R-Co foram simuladas, utilizando a teoria de campo médio (TCM). Para simular as curvas de magnetização em função da temperatura, nós desenvolvemos um programa em linguagem C, que faz o ajuste dos dados experimentais. O método de ajuste não linear, chamado de Método de Marquardt, corresponde a uma rotina em linguagem C do *Numerical Recipes*. A função a ser ajustada (FMXT) foi montada a partir das equações utilizadas na TCM.

Na bicamada $YCo_2/GdCo_2$ [DIE90, GIV93], devido a fortes interações de troca entre os momentos do cobalto ao longo de toda a espessura da amostra, a direção da magnetização alterna de uma camada a outra, levando a um arranjo ferrimagnético macroscópico, em campo zero. Quando um campo magnético é aplicado, verifica-se uma competição entre as interações de troca Co-Co e a energia Zeeman. A um certo valor crítico de campo H_t, associado à formação de parede de domínios, a camada de menor momento inverte. Em $H=H_t$, ocorre a transição de um arranjo ferrimagnético para um arranjo ferromagnético macroscópico. A parede de domínios é criada para minimizar as interações de troca entre os átomos de cobalto das duas camadas. A curva de magnetização resultante, para o caso em que a camada de menor momento corresponde à camada $GdCo_2$, está esquematicamente representada na figura 1.3(A). Nessa figura, os momentos magnéticos dos átomos de Co estão orientados paralelamente entre si para $-H_t<H<H_t$. Na condição sem parede ($-H_t<H<H_t$), a magnetização resultante da camada $GdCo_2$ é sempre antiparalela ao campo H. Quando a parede é criada ($-H_t\geq H$ ou $H\geq H_t$), a camada $GdCo_2$ inverte de sentido. Essa parede de domínios, que serve para minimizar a interação de troca entre os átomos de Co das duas camadas, está localizada na região da interface da bicamada (figura 1.3(B)).

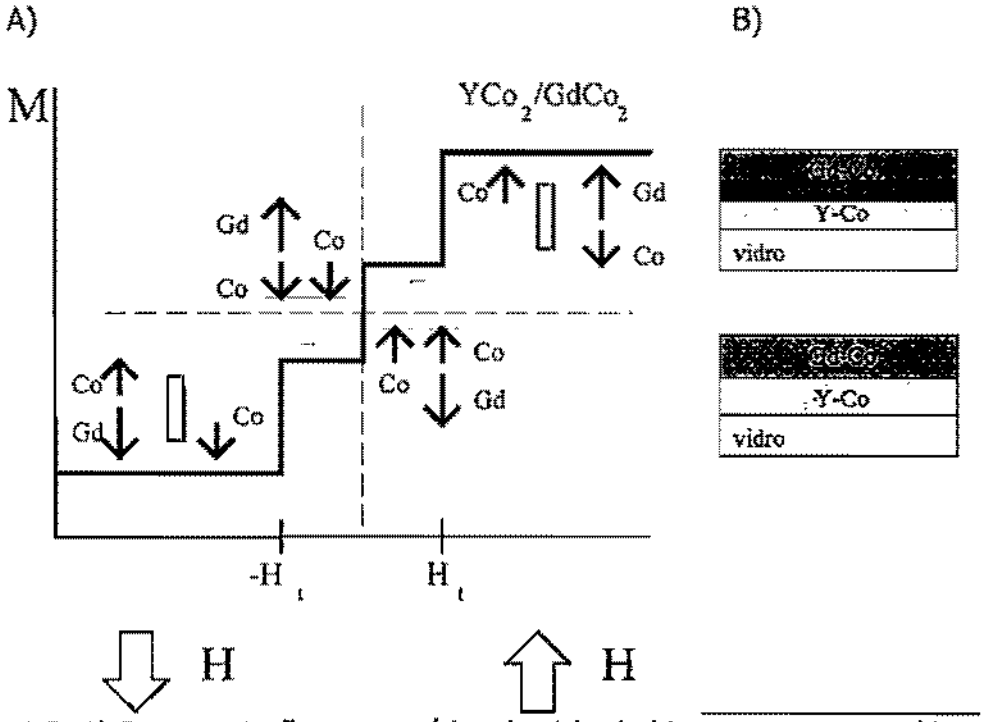


Figura 1.3. A) Representação esquemática do ciclo de histerese para uma bicamada $YCo_2/GdCo_2$, onde a camada $GdCo_2$ corresponde à camada de menor magnetização resultante [DIE90]. B) Bicamada depositada sobre substrato de vidro, antes da transição e após a transição, com a parede de domínios localizada na região da interface da bicamada.

O efeito Kerr magneto-óptico transversal é utilizado para a caracterização de filmes de R-Co e de bicamadas de Y-Co/R-Co (R=Gd,Tb), com anisotropia planar. Devido à energia associada ao laser (λ=670nm $\Rightarrow$ E=1.85eV) do Magnetômetro a Efeito Kerr em baixas temperaturas (MEK-bt), o sinal magneto-óptico (MO) é atribuído, principalmente, aos átomos de Co, nos filmes de R-Co [CUG92]. Outra característica interessante do laser está relacionada à profundidade de penetração da luz, que é de algumas centenas de angstrons [YON95]. Como a espessura por camada é maior que a profundidade de penetração da luz e, como o filme foi depositado sobre substrato de vidro, essa característica do laser permite a caracterização das duas camadas independentemente. As curvas de histerese MO dos dois lados da bicamada $YCo_2/GdCo_2$ estão esquematicamente representadas na figura 1.4. Através das curvas MO, podemos determinar o sentido do Co em cada camada. Na camada Y-Co, onde o Co está alinhado ao campo magnético aplicado, o resultado é uma curva de histerese "normal", semelhante às que

são obtidas no Magnetômetro de Amostra Vibrante (MAV) e no magnetômetro SQUID (Superconducting QUantum Interference Device). Na camada Gd-Co, a curva de histerese MO é "normal", antes da transição ferri-ferromagnética ($-H_t<H<H_t$) e, invertida, após a transição ($-H_t \geq H$ ou $H \geq H_t$). A dupla inversão, observada na camada Gd-Co (figura 1.4), ocorre devido aos campos coercivo (H_c) e de transição (H_t).

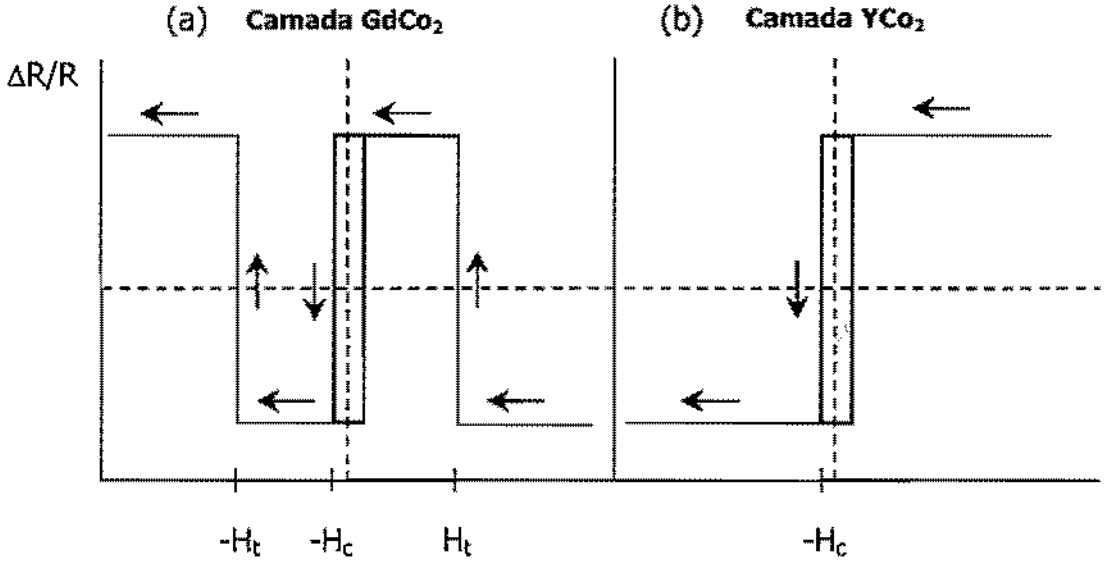


Figura 1.4. Representação esquemática das curvas de histerese MO da bicamada $YCo_2/GdCo_2$, (a) do lado do $GdCo_2$ e (b) do lado do YCo_2, à temperatura ambiente.

Esta tese está dividida em 7 capítulos, sendo que os equipamentos utilizados para a confecção e caracterização das amostras são descritos no capítulo 2. O equipamento de *sputtering* adquirido pelo LMM (Laboratório de Materiais Magnéticos), em 1998, possibilitou a produção de filmes de melhor qualidade e com boa reprodutibilidade. No segundo semestre do mesmo ano, um magnetômetro SQUID foi adquirido pelo Depto. de Física dos Materiais e Mecânica do IFUSP. Os filmes simples, analisados no capítulo 4, a bicamada à base de Tb, analisada no capítulo 5, e os filmes ternários à base de Gd e à base de Tb, analisados no capítulo 6, foram produzidos e caracterizados nessas novas condições.

No capítulo 3, são detalhados os modelos teóricos, incluindo o modelo teórico para a parede de domínios, que foi desenvolvido durante o mestrado e aperfeiçoado durante o doutorado [YON97].

As ligas binárias R-M (R=Y, Gd, Tb) são analisadas no capítulo 4. No início do capítulo, damos uma introdução a esses compostos intermetálicos, apresentando as suas principais características. Ao longo desse capítulo, falamos sobre a produção das amostras por *magnetron sputtering*, sua caracterização magnética com a utilização do MAV e do magnetômetro SQUID e caracterização magneto-óptica obtida com a utilização do MEK-bt. A Teoria de Campo Médio (TCM) foi usada para explicar a dependência térmica da magnetização nas ligas amorfas de R-Co. As interações de troca entre os pares atômicos Co-Co, R-R e R-Co foram avaliadas e comparadas aos valores da literatura.

No capítulo 5, analisamos bicamadas amorfas formadas a partir de ligas de Y-Co e R-Co (R=Gd, Tb). As bicamadas de $YCo_2/GdCo_2$ foram estudadas, à temperatura ambiente, durante o mestrado [YON95], e os resultados foram publicados no ano seguinte [YON96]. No doutorado, demos continuidade ao estudo de bicamadas à base de Gd, determinando o comportamento térmico dos parâmetros A, Δ e δ extraídos do nosso modelo. Os resultados já foram publicados [YON97]. A substituição de Gd por Tb levou a mudanças significativas no comportamento magnético das bicamadas. Os resultados para a bicamada à base de Tb foram apresentados no ICM 2000, realizado em Recife, e o artigo com os resultados foi aceito para publicação.

Com o intuito de induzir uma anisotropia perpendicular ao plano do filme, mais um elemento foi incorporado à liga, o Fe. O estudo de ligas ternárias, com anisotropia fora do plano, é apresentado no capítulo 6.

No capítulo 7, apresentamos as conclusões gerais desta tese. O capítulo é formado a partir das conclusões de cada capítulo de análise de dados (cap. 4, 5 e 6).

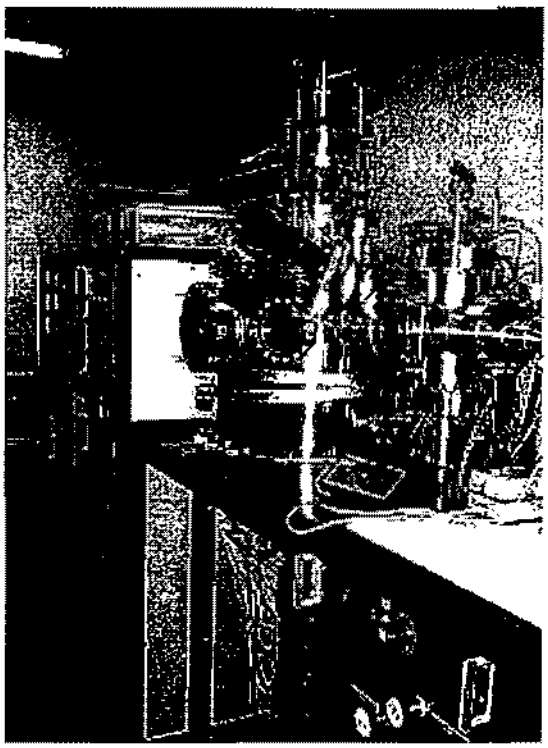
Para facilitar a comparação entre os resultados obtidos nesta tese com os da literatura, optamos por utilizar, como sistema de unidades, o CGS.

Capítulo 2

TÉCNICAS EXPERIMENTAIS

2.1. MAGNETRON SPUTTERING

O equipamento utilizado para a deposição dos filmes é um ATC-2000 *Sputtering System* da AJA *International* (figura abaixo), que inclui uma câmara de vácuo de 17" de altura por 20" de diâmetro. Dentro da câmara existem quatro fontes de *magnetron sputtering* (figura 2.1), localizadas na parte inferior, o que permite a deposição simultânea de quatro alvos diferentes. Existem dois módulos removíveis, os quais correspondem às "tampas" da câmara, onde são fixados os porta-substratos. Um dos módulos, utilizado para a confecção de filmes cristalinos, permite o aquecimento do substrato, durante a deposição. O outro módulo, usado para a confecção de filmes amorfos, permite o resfriamento do substrato com nitrogênio líquido. Para as medidas de espessura e taxa de deposição, há um sensor de quartzo, localizado próximo ao porta-substrato. A separação entre os alvos (~20cm) é comparável à distância entre os alvos e o substrato, de forma que a rotação do porta-substrato (20rpm), durante a deposição, propicia a obtenção de filmes mais homogêneos. Existe também uma pré-câmara localizada ao lado da câmara de *sputtering*. A troca de substrato se dá através dessa pré-câmara, sem a necessidade de arejar a câmara principal, o que agiliza a produção dos filmes. Os canhões de *magnetron sputtering* são alimentados por fontes de tensão, com capacidade para até 500W, duas das quais são fontes DC, utilizadas para depositar terra-rara e cobalto. As outras duas são fontes RF, usadas para depositar materiais que se comportam como isolantes (Si). No processo de *sputtering*, o alvo é bombardeado pelos íons energéticos de Ar. Esses íons transferem sua energia cinética para o alvo e liberam os átomos constituintes, que são coletados sobre um substrato.



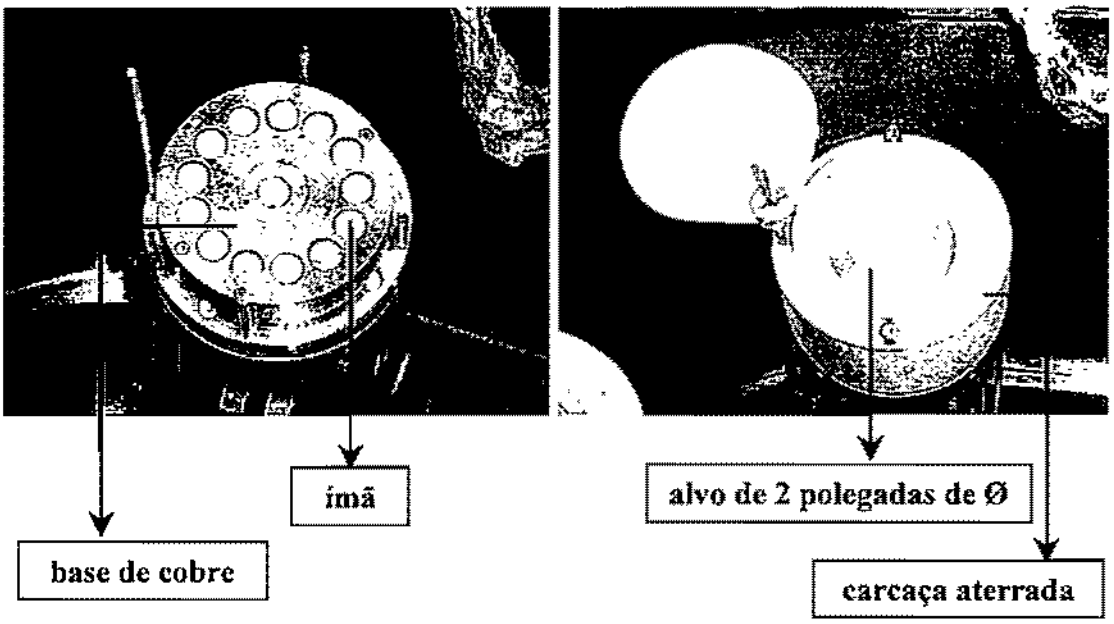
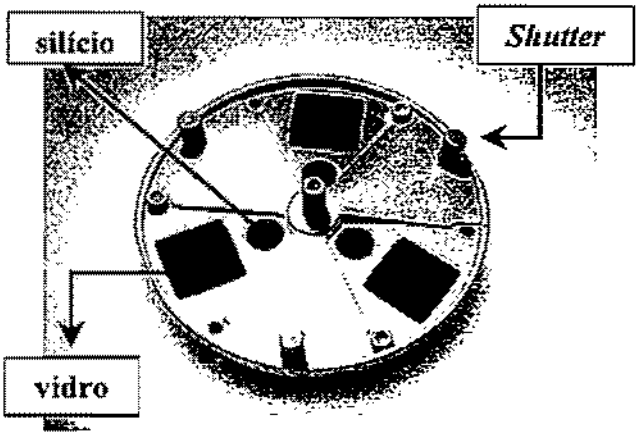


Figura 2.1. Canhão *magnetron sputtering.*

No canhão *magnetron sputtering,* o alvo é fixado sobre uma base de cobre, que é resfriada a fluxo contínuo de água. Esta base contém ímãs cujo campo magnético concentra o plasma de Ar na região do alvo. A tensão elétrica aplicada ao alvo pode ser contínua ou alternada (rádio freqüência de 13.56 MHz). A carcaça é aterrada, bem como o resto da câmara, incluindo o porta-substrato.

A)



B)

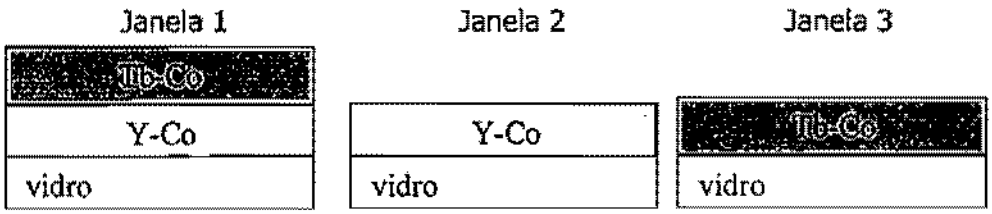


Figura 2.2. A) Porta-substrato, B) Filmes produzidos em uma única seqüência de deposição.

O porta-substrato (figura 2.2 (A)) permite a produção de seis amostras em uma única seqüência de deposição, sendo uma bicamada e dois filmes simples sobre vidro e outro conjunto de bicamada e filmes simples idênticos aos primeiros sobre silício. Cada janela (1, 2 e 3), contendo um substrato de vidro e um de silício, pode ser aberta ou fechada externamente, utilizando-se o *shutter* correspondente.

O procedimento para a produção das amostras (amostras YT1P5, Y1P5 e T1P5, por exemplo) consistiu em manter todas as janelas abertas durante a deposição da camada de proteção (Si_3N_4). Em seguida, a janela 3 foi fechada e as janelas 1 e 2 permaneceram abertas para a deposição da camada Y-Co. Depois, a janela 3 foi aberta e a 2 foi fechada para a deposição da camada Tb-Co. Por fim, todas as janelas foram abertas para a deposição da camada superior de proteção. Portanto, a janela 1, que ficou aberta durante toda a seqüência de deposição, conterá a bicamada Y-Co/Tb-Co depositada sobre substrato de vidro e sobre Si. A janela 2 manterá o filme simples Y-Co e a janela 3, o filme simples Tb-Co, ambos sobre os mesmos substratos da bicamada. Os filmes depositados sobre Si foram usados na caracterização estrutural por RBS e os filmes sobre vidro, na caracterização magnética (SQUID) e magneto-óptica (MEK-bt).

No código da amostra, o primeiro dígito (ou dois primeiros no caso de bicamada) indica qual o elemento de R que compõe o filme (Y, Gd ou Tb), o segundo serve para diferenciar as amostras de mesmo R (ele é o mesmo para as três amostras produzidas na mesma seqüência de deposição) e os dois últimos indicam qual a pressão de Ar (P_{Ar}) utilizada durante a deposição do filme. Por exemplo, a amostra YT1P5 é uma bicamada à base de Tb onde a camada Y-Co (Tb-Co) apresenta a mesma espessura e composição do filme simples Y1P5 (T1P5) e foi depositada a P_{Ar}=5mTorr.

2.2. MAGNETÔMETRO SQUID

O SQUID (Superconducting QUantum Interference Device) combina dois fenômenos físicos: a quantização do fluxo dentro de um anel supercondutor e o efeito Josephson [CYR99]. O efeito Josephson corresponde ao tunelamento dos pares de Cooper (dois elétrons ligados, que participam do fenômeno coletivo da supercondutividade), através de uma barreira de potencial, formada por um isolante ou supercondutor situado entre dois supercondutores com corrente crítica maior que o da junção. Existem dois tipos de SQUIDs: o SQUID DC (à corrente contínua), com duas junções Josephson, e o SQUID RF (à alta freqüência), com apenas uma. No SQUID DC, a corrente aplicada se divide entre as duas junções e, se maior do que a corrente crítica da junção, produz uma tensão através do SQUID. A corrente crítica é definida como sendo a corrente na qual o supercondutor passa a se comportar como um metal normal, ou seja, passa a ter resistência diferente de zero. A corrente que pode passar dentro de um SQUID sem resistência é uma função do fluxo que passa dentro do anel. Essa corrente é máxima, para um número inteiro de quanta de fluxo (Φ_0=h/2e) e, mínima, para um número semi inteiro (n/2, n=1, 2, ...). Em um supercondutor, uma única função de onda descreve todos os pares de Cooper. As funções de onda para as duas junções Josephson interferem uma com a outra para produzir o comportamento oscilante na corrente e na tensão. Na prática, pode-se detectar mudanças que são muito menores do que um quantum de fluxo. Um sinal de fluxo muito baixo produz uma tensão no SQUID que a eletrônica convencional pode medir [CLA94]. No SQUID RF, o anel supercondutor com uma junção Josephson é acoplado indutivamente à uma bobina de radiofreqüência, montada dentro do circuito ressonante. As perdas dentro do dispositivo são uma função periódica do fluxo Φ_a de período Φ_0 e aparecem sob a forma de tensão. A variação de tensão está diretamente relacionada à variação do fluxo.

Para a caracterização magnética, utilizamos um sistema de interferência quântica, conhecido como SQUID. O equipamento é um magnetômetro da

Quantum Design, modelo MPMS (Magnetic Property Measurement System), pertencente ao Departamento de Física dos Materiais e Mecânica do Instituto de Física da Universidade de São Paulo. Devido ao estado quantizado do anel supercondutor e do extraordinário comportamento não linear da junção Josephson, o SQUID é capaz de detectar campos magnéticos externos da ordem de 10^{-15} Tesla. Esse magnetômetro supercondutor é composto basicamente dos seguintes componentes:

1) Sistema de controle de temperatura. O controle preciso da temperatura da amostra, na faixa de 2K (-271°C) a 400K (127°C), é obtido através do controle do fluxo de calor e de gás (resfriamento), dentro do espaço da amostra.

2) Um ímã supercondutor, que fornece um campo magnético altamente estável e reversível, na faixa de $-7 \leq H \leq 7$ Tesla.

3) Sistema de detecção do SQUID, que inclui a bobina de detecção, a eletrônica de amplificação do sinal, filtros de ruído e o sensor SQUID RF. A bobina de detecção corresponde a um grupo de três enrolamentos supercondutores, configurado como um gradiômetro de segunda ordem (figura 2.5). O primeiro e o terceiro enrolamentos são constituídos de apenas uma espira cada; o segundo (central) corresponde a duas espiras enroladas em sentido oposto aos outros dois enrolamentos. Essa configuração serve para reduzir o ruído magnético, presente no ambiente, onde as medidas são realizadas.

4) Sistema de aquisição computadorizado. Todas as operações para a aquisição de dados são controladas automaticamente por computador. As seqüências de comandos são montadas de acordo com as necessidades de cada usuário e limitadas não pelo tempo de aquisição (horas ou dias), mas pelo nível de He e pelo campo aplicado. Para campos maiores que 10kOe, o nível de He deve estar acima de 50% da capacidade máxima.

A medida é feita movendo-se a amostra através da bobina de detecção supercondutora (gradiômetro), que está localizada fora da câmara da amostra, no centro do ímã (Figura 2.5). O momento magnético da amostra em movimento induz uma corrente na bobina de detecção. Como a bobina de detecção e a bobina de entrada do SQUID formam um circuito supercondutor fechado, qualquer variação de corrente na bobina de detecção produz uma variação correspondente na tensão de saída do SQUID, que é proporcional ao momento magnético da amostra. Resumindo, o SQUID é um conversor de fluxo magnético em tensão. Ele transforma uma pequena variação de fluxo, difícil de ser detectada, em uma variação de tensão mensurável.

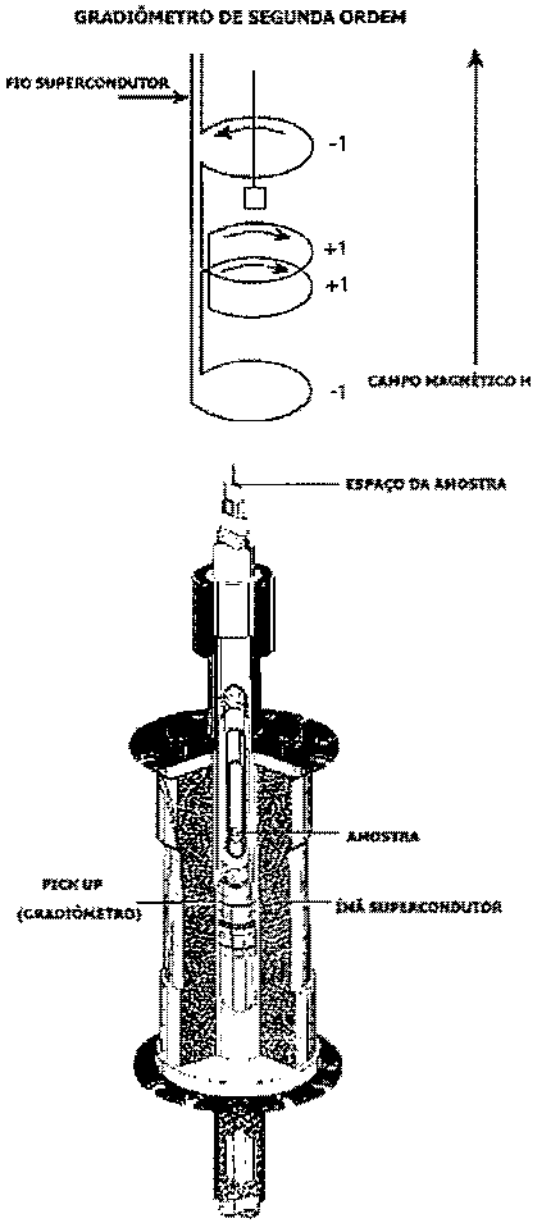


Figura 2.5. Configuração e localização do gradiômetro de segunda ordem. O enrolamento está localizado fora do espaço da amostra, dentro de um banho de He líquido.

2.3. MAGNETÔMETRO A EFEITO KERR EM BAIXAS TEMPERATURAS (MEK-bt)

O MEK-bt foi montado no Laboratório de Materiais Magnéticos do IFUSP, pela estudante de doutorado Adriana P.B.Tufaile, como parte de seu trabalho de mestrado [TUF96]. O equipamento consiste basicamente em um laser modulável semicondutor (modelo LDA 2011 da ILEE Laser Inovation) com controlador, fotodiodo (UDT Sensors Inc-PIN-44D), polarizador e analisador (Käseman com coeficiente de extinção melhor que 10^{-4}). As características do laser são:

comprimento de onda → 670nm
potência → 0.5-3mW
tamanho do feixe (antes da lente focalizadora) → (5x2)mm
alimentação → 8-20VAC
freqüência → 1Hz-500kHz

Pelo fato da energia associada ao laser (E=1.85eV) ser da mesma ordem da separação de ligação dos elétrons 3d do Co (aproximadamente 1eV [CUG92]), a contribuição para o sinal magneto-óptico será devido, principalmente, aos átomos de Co na liga R-Co. A energia do laser não é suficiente para induzir transições nas terras-raras, uma vez que os elétrons 4f, responsáveis pelo magnetismo, estão a 7eV (Gd) do nível de Fermi [ERS73]. Outra característica associada ao laser, a qual é importante na análise das bicamadas, está relacionada à profundidade de penetração da luz, que é de algumas centenas de Å [YON95]. Como a espessura de cada camada da bicamada (~100nm) é maior que a profundidade de penetração do laser, a análise por camada pode ser feita independentemente.

Figura 2.6. (a) Criostato do MEK-bt, com a janela óptica localizada na região entre ferros do eletroímã.
(b) Sistema óptico (calha) fixado verticalmente ao longo do criostato.
(c) Laser e fotodiodo montados na extremidade superior da calha.

O sinal de referência do *lock-in* (5kHz) é utilizado para modular a intensidade do feixe do laser. A luz monocromática do laser é linearmente polarizada em paralelo ao plano de incidência. Essa luz, que incide na amostra a 45° com relação ao plano da amostra, será refletida e passará por um polarizador (analisador) antes de ser captada pelo fotodiodo. O sinal gerado pelo fotodiodo, sincronizado com a modulação do laser pelo *lock-in*, fornecerá a mudança na refletividade ($\Delta R/R$) em função do campo magnético, devido à variação da magnetização da amostra. Durante o processo de aquisição dos dados, o filme é submetido a um campo magnético máximo (figura 3.2) de H=20kOe.

Na figura 2.6(a), apresentamos o criostato do MEK-bt, com a parte inferior, onde está a amostra, localizada na região central do eletroímã. É possível visualizar a janela óptica (janela circular) por onde entra e sai o feixe do laser. O laser e o fotodiodo são montados na extremidade superior da calha (figura 2.6(c)) para evitar interferências do campo do eletroímã. Durante as medidas, a calha é presa ao criostato verticalmente (figura 2.6(b)). Na figura 2.7(a), mostramos um esquema da fixação do MEK-bt, responsável pela boa estabilidade mecânica entre o criostato e o sistema óptico.

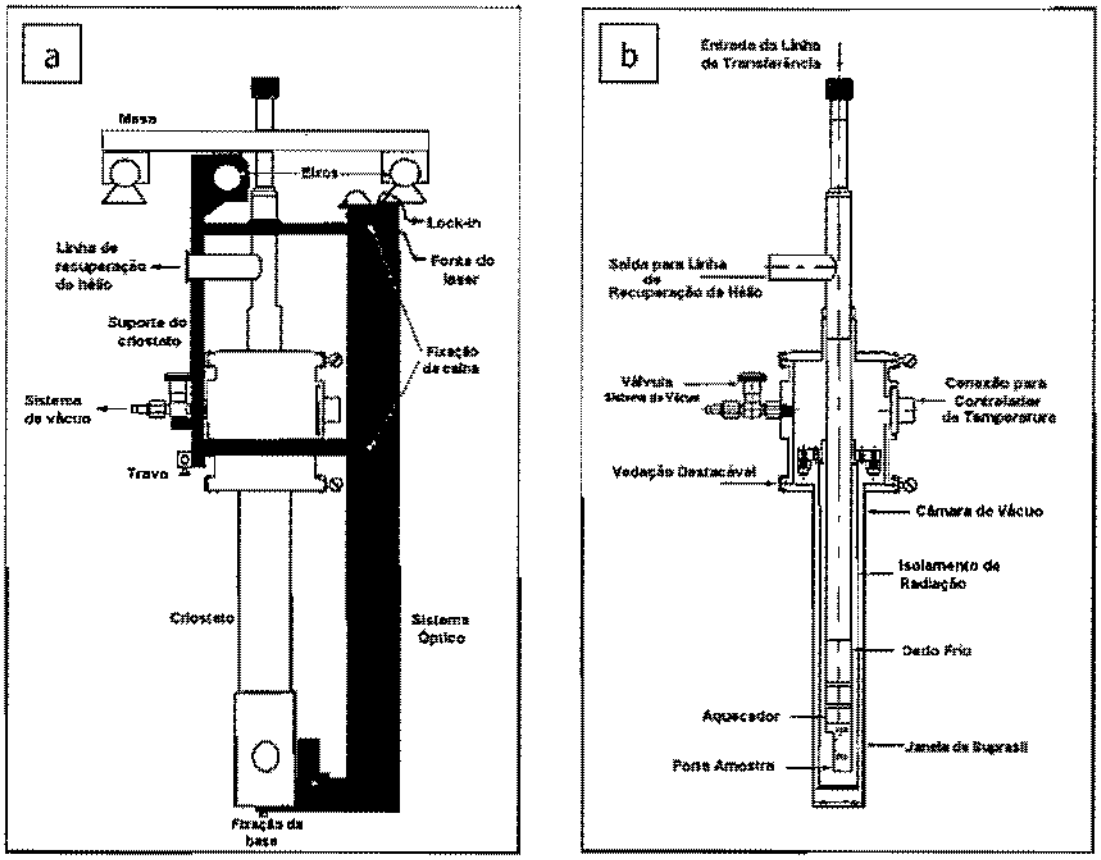


Figura 2.7. (a) Fixação mecânica do criostato, (b) Criostato óptico Janis [TUF96].

As medidas no MEK-bt podem ser feitas na faixa de temperatura 7-400K. A retirada de calor do sistema é feita com a utilização de um sistema de refrigeração a fluxo contínuo de He e a introdução de calor é feita por um aquecedor localizado no "dedo frio" do criostato (figura 2.7(b)). O equilíbrio entre a entrada e a saída de calor do sistema permite a estabilização da temperatura na região da amostra, durante a aquisição dos dados. O aquecedor é controlado por uma unidade de controle de temperatura (Lake Shore DRC-91CA), a qual é realimentada pelo sinal de sensores térmicos (pt 100 ou carbon-glass, dependendo da faixa de temperatura), que estão próximos ao porta-amostra. O sistema de vácuo é composto por uma bomba mecânica e uma bomba turbomolecular. A pressão no criostato, após a introdução de He líquido, pode chegar a 10^{-7}mbarr.

A aquisição de dados é feita via computador, utilizando um programa desenvolvido no laboratório, pelo Prof. Dr. Antonio D. Santos.

Capítulo 3

TEORIA

3.1. INTRODUÇÃO

Iniciaremos este capítulo com o modelo teórico desenvolvido para descrever a parede de domínios, que se forma na região da interface da bicamada amorfa $YCo_2/GdCo_2$. O modelo foi desenvolvido durante o meu mestrado [YON95] e aperfeiçoado durante o doutorado, para levar em conta a forma não usual da parede de domínios (figura 3.1). Na seção 3.3, falaremos sobre a teoria de campo médio (TCM), que foi utilizada na análise do comportamento térmico da magnetização de filmes amorfos de R-M (R=terra-rara - M=metal de transição). Os dados experimentais, analisados em termos da TCM, no capítulo 4, forneceram os valores de *spin* e as integrais de troca entre os diferentes pares atômicos que compõem os filmes. Por fim, na seção 3.4, falaremos sobre os efeitos magneto-ópticos. Em particular, os efeitos Kerr Transversal e Polar, os quais foram utilizados na análise de filmes amorfos de R-M (R = Y, Gd, Tb – M = Co, FeCo) com anisotropia planar (Kerr Transversal) e perpendicular (Kerr Polar).

3.2. MODELO TEÓRICO PARA A PAREDE DE DOMÍNIOS

No trabalho de mestrado [YON95], nós desenvolvemos um modelo teórico para descrever a parede de domínios, que se forma na região da interface da bicamada, quando $H > H_t$. Ndjaka [NDJ90] desenvolveu um modelo teórico para a parede de domínios, baseado nas energias Zeeman e de troca. Medidas magneto-ópticas efetuadas nos nossos filmes revelaram que, em alguns casos, as intensidades dos campos de transição e de anisotropia são comparáveis, o que nos levou a acrescentar o termo de anisotropia no desenvolvimento do nosso modelo. Esse modelo baseia-se nas energias: Zeeman (E_z), de troca (E_{ex}) e de anisotropia induzida (E_K). Os sistemas estudados têm anisotropia uniaxial, que pode ser obtida aplicando-se campo magnético paralelo ao plano do filme, durante a deposição ou o tratamento térmico.

No cálculo de energia total do sistema, após a transição ferri-ferromagnética, consideramos a parede como sendo uma parede de Bloch. Os

parâmetros (Δ, δ e A) determinados, à temperatura ambiente [YON95], foram muito razoáveis. No entanto, o estudo do comportamento térmico desses parâmetros indicou problemas com a posição relativa da parede de domínios (Δ). Para a maioria das temperaturas, foram obtidos valores negativos de f (primeira equação do modelo: equação 3.2.17). Isto significa que a parede de domínios está longe da interface da bicamada, o que é energeticamente impossível [YON95]. A dificuldade vem do fato de que a parede de domínios não é exatamente uma parede de Bloch. Na figura 3.1, nós temos uma representação esquemática da parede de domínios, na região da interface da bicamada, para $H > H_t$. Devido ao forte acoplamento de troca entre os átomos de Co, os seus momentos magnéticos giram de 180° de uma camada para a outra (figura 3.1(A)). Na camada Gd-Co, os momentos magnéticos do Gd são dominantes e na camada Y-Co, somente os átomos de Co contribuem para o momento magnético total. A magnetização resultante, junto à superfície de ambas as camadas, tem a mesma direção e sentido paralelo ao campo magnético aplicado. Dentro da parede de domínios, a magnetização gira cerca de 90° até a interface e, na outra camada, volta no sentido inverso.

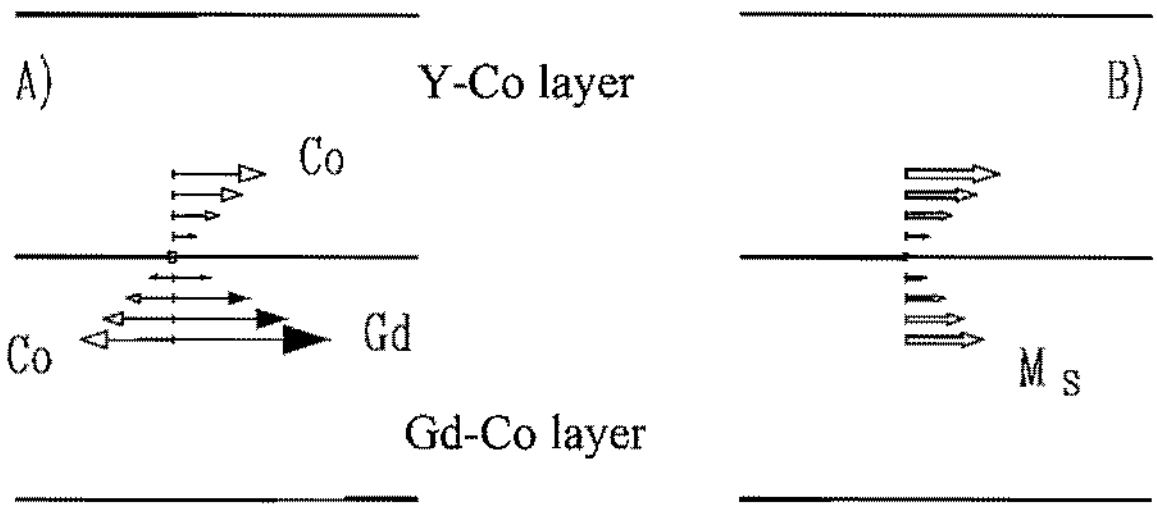
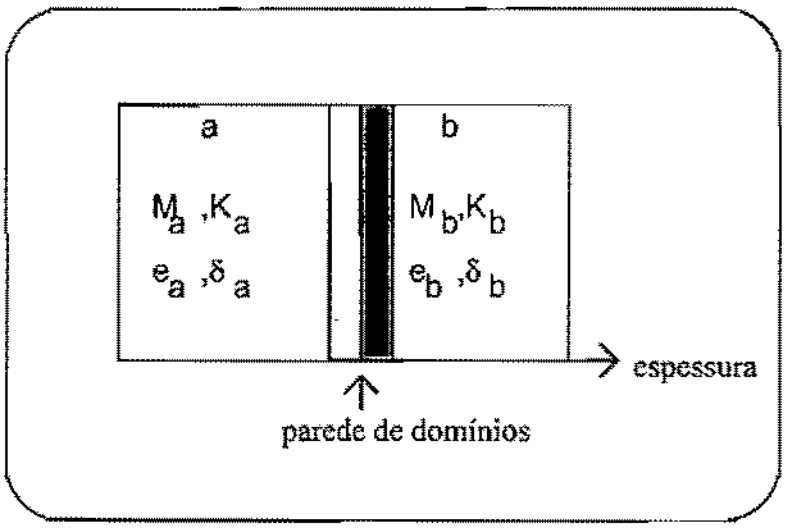


Figura 3.1. Representação esquemática da parede de domínios, para $H>H_t$ [YON97].
(A). Momento magnético dos átomos de Co e Gd.
(B). Magnetização de cada camada, dentro da parede de domínios.

O cálculo de energia total do sistema antes e depois da transição é feito a seguir, juntamente com a determinação das três equações do nosso modelo, considerando-se a forma não usual da parede de domínios.

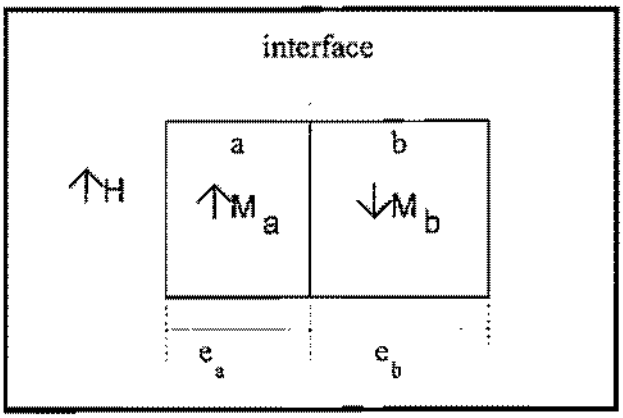
Diagrama esquemático para o modelo teórico



Na figura acima, **a** = Y-Co (ou Gd-Co) e **b** = Gd-Co (ou Y-Co), dependendo da camada que inverte, quando H≥Ht. Para que a camada Gd-Co inverta, é necessário que a magnetização total dos átomos de Co seja maior que a do Gd, caso contrário, a camada Y-Co inverterá. $M_{a,b}$ é a magnetização de saturação; $K_{a,b}$, a constante de anisotropia; $e_{a,b}$, a espessura da camada e, $\delta_{a,b}$, a espessura da parede de domínios, na respectiva camada. Podemos escrever a espessura total da parede como: $\delta=\delta_a+\delta_b$, e a sua posição relativa como sendo: $\Delta=\delta_a/\delta$. O valor de Δ varia no intervalo de 0 (parede na camada **b**) a 1 (parede na camada **a**).

Supondo-se uma variação linear de θ com a espessura da parede de domínios, sendo $\theta=(\pi/\delta)x$ o ângulo entre o campo magnético e a magnetização resultante na parede de domínios, os termos de energia, por unidade de área, poderão ser escritos como:

(i). $|\vec{H}| < H_t$ (sem parede)



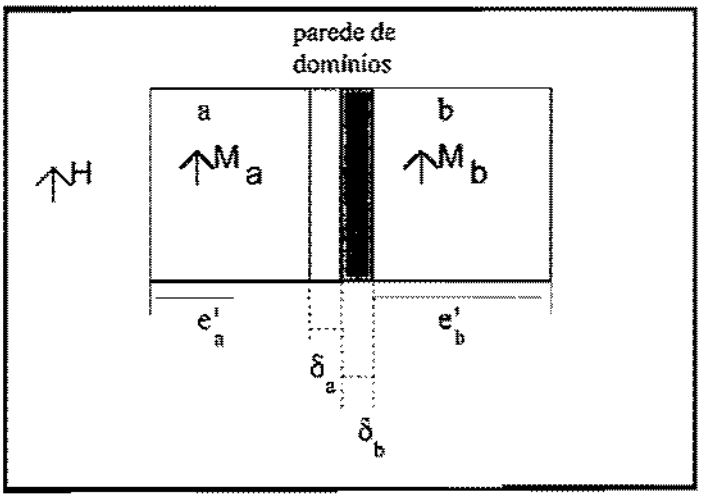
$$E_{z,i} = -M_a H\, e_a + M_b H\, e_b \qquad (3.2.1)$$

onde

$$E_z = -\int (\vec{M} \cdot \vec{H})dx = -MH \int \cos\theta\, dx \qquad (3.2.2)$$

Portanto, a energia total do sistema, neste caso, se resume apenas ao termo de energia Zeeman $E_{z,i}$.

(ii). $|\vec{H}| \geq H_t$ (com parede na interface)



onde: $e'_{a,b} = e_{a,b} - \delta_{a,b}$

Aqui, além da energia Zeeman, aparecerão, também, termos de energia de troca e de anisotropia, os quais serão descritos a seguir:

(ii).a) Energia Zeeman $(E_{z.f})$

$$E_{z.f} = E_a + E_{parede(a)} + E_b + E_{parede(b)} \tag{3.2.3}$$

onde: E_a e E_b são os termos de energia Zeeman nas regiões fora da parede, e $E_{parede(a)}$ e $E_{parede(b)}$ são os termos de energia Zeeman na região da parede, nas camadas **a** e **b**, respectivamente.

$$E_a = -M_a H(e_a - \delta_a) = -M_a H(e_a - \delta\Delta) \tag{3.2.4}$$

$$E_b = -M_b H(e_b - \delta_b) = -M_b H(e_b - \delta(1-\Delta)) \tag{3.2.5}$$

A integração na parede deve ser feita, levando-se em consideração a variação angular da magnetização resultante em cada camada, ao longo da espessura, e não, a variação angular dos momentos magnéticos dos átomos de cobalto.

$$E_{parede(a)} = -\int M_a H \cos\theta dx = -M_a H \int_0^{\delta_a} \cos\frac{\pi}{\delta} x\, dx$$

$$= -M_a H \frac{\delta}{\pi} \sin(\pi\Delta) \tag{3.2.6}$$

$$E_{parede(b)} = -M_b H \int_0^{\delta_b} \cos\frac{\pi}{\delta} x\, dx = -M_b H \frac{\delta}{\pi} \sin(\pi\Delta) \tag{3.2.7}$$

onde:

$$\theta = \frac{\pi}{\delta} x$$

$$\delta_a = \delta\Delta$$

$\delta_b = \delta(1-\Delta)$

$$E_{z.f} = -M_a H\left(e_a - \delta\Delta + \frac{\delta \sin(\pi\Delta)}{\pi}\right) - M_b H\left(e_b - \delta(1-\Delta) + \frac{\delta \sin(\pi\Delta)}{\pi}\right) \qquad (3.2.8)$$

(ii).b) Energia de anisotropia uniaxial (E_K) na parede de domínios

$$E_K = K\int \sin^2\theta \, dx \qquad (3.2.9)$$

$$E_K = K_a \int_0^{\delta_a} \sin^2 \frac{\pi}{\delta} x \, dx + K_b \int_0^{\delta_b} \sin^2 \frac{\pi}{\delta} x \, dx \qquad (3.2.10)$$

$$E_K = \frac{M_a H_a}{2}\left(\frac{\delta\Delta}{2} - \frac{\delta}{4\pi}\sin(2\pi\Delta)\right) + \frac{M_b H_b}{2}\left(\frac{\delta(1-\Delta)}{2} + \frac{\delta}{4\pi}\sin(2\pi\Delta)\right) \qquad (3.2.11)$$

onde:

$$K_a = \frac{M_a H_a}{2} \qquad (3.2.12)$$

$$K_b = \frac{M_b H_b}{2} \qquad (3.2.13)$$

(ii).c) Energia de troca (E_{ex})

$$E_{ex} = \frac{A\pi^2}{\delta} \qquad (3.2.14)$$

onde:

A é a constante de troca para os pares atômicos Co-Co. Para uma rede cúbica simples com constante de rede a, *A* é dada por: $A = JS^2/a$.

δ = aN, onde a foi aproximada pelo valor médio entre os primeiros vizinhos, e N é o número de camadas atômicas.

Neste caso, a energia total do sistema será escrita como:

$$E_{total} = -M_a H\left(e_a - \delta\Delta + \frac{\delta}{\pi}sin(\pi\Delta)\right) - M_b H\left(e_b - \delta(1-\Delta) + \frac{\delta}{\pi}sin(\pi\Delta)\right) +$$
$$+\frac{M_a H_a}{2}\left(\frac{\delta\Delta}{2} - \frac{\delta}{4\pi}sin(2\pi\Delta)\right) + \frac{M_b H_b}{2}\left(\frac{\delta(1-\Delta)}{2} + \frac{\delta}{4\pi}sin(2\pi\Delta)\right) + \frac{A\pi^2}{\delta}$$

(3.2.15)

(ii).d). A primeira equação do nosso modelo foi obtida minimizando-se a energia total do sistema (E_{total}) com relação à posição relativa da parede (Δ):

$$\left(\frac{\partial E_{total}}{\partial \Delta}\right) = 0$$

$$-M_a H[-1+cos(\pi\Delta)] - M_b H[1+cos(\pi\Delta)] + \frac{M_a H_a}{2}\left[\frac{1}{2} - \frac{1}{2}cos(2\pi\Delta)\right] + \frac{M_b H_b}{2}\left[-\frac{1}{2} + \frac{1}{2}cos(2\pi\Delta)\right] = 0$$

$$H(M_a + M_b)cos(\pi\Delta) - H(M_a - M_b) - \left(\frac{M_a H_a - M_b H_b}{2}\right)(1 - cos^2(\pi\Delta)) = 0$$

$$B\,cos^2(\pi\Delta) + CH\,cos(\pi\Delta) - (AH + B) = 0$$

$$\Rightarrow$$

$$cos(\pi\Delta) = \frac{-CH \pm \sqrt{(CH)^2 + 4B(AH+B)}}{2B} = f \qquad (3.2.16)$$

onde: $\begin{cases} A = M_a - M_b \\ B = \left(\frac{M_a H_a - M_b H_b}{2}\right) \\ C = (M_a + M_b) \end{cases}$

$$cos(\pi\Delta) = \frac{-(M_a + M_b)H \pm \sqrt{[(M_a + M_b)H]^2 + 2(M_a H_a - M_b H_b)\left[(M_a - M_b)H + \left(\frac{M_a H_a - M_b H_b}{2}\right)\right]}}{(M_a H_a - M_b H_b)} = f$$

(3.2.17)

(ii).e). A segunda equação foi obtida minimizando-se E_{total} com relação à espessura total da parede (δ):

$$\left(\frac{\partial E_{total}}{\partial \delta}\right) = 0$$

$$\delta = \pi(2A)^{1/2}\left[2M_a H\left(\Delta - \frac{\sin(\pi\Delta)}{\pi}\right) + \frac{M_a H_a}{2}\left(\Delta - \frac{\sin(2\pi\Delta)}{2\pi}\right) + 2M_b H\left((1-\Delta) - \frac{\sin(\pi\Delta)}{\pi}\right) + \frac{M_b H_b}{2}\left((1-\Delta) + \frac{\sin(2\pi\Delta)}{2\pi}\right)\right]^{-\frac{1}{2}}$$

(3.2.18)

onde, Δ foi obtido da primeira equação.

(iii). A terceira equação foi obtida a partir do equilíbrio entre a energia total do sistema, para H ligeiramente inferior e superior a H_t:

$$E_{\pi/4} = E_{total}$$

$$\frac{A\pi^2}{\delta_t} - H_t(M_b\, e_b) = 0$$

(3.2.19)

onde δ_t corresponde à espessura da parede quando $H = H_t$ e **b** designa a camada que inverte.

As três expressões acima são interdependentes, portanto, a solução depende das características específicas das amostras. Conhecendo-se a magnetização de saturação (M_a, M_b), o campo de anisotropia (H_a, H_b) de cada camada e o valor do campo de transição (H_t), podemos determinar a dependência com o campo magnético da espessura, da posição relativa da parede e o valor da constante de troca (A) para os pares atômicos Co-Co, na região da parede.

3.3. TEORIA DE CAMPO MÉDIO (TCM)

Em 1895, Curie determinou experimentalmente que a susceptibilidade de massa χ de um grande número de materiais paramagnéticos era inversamente proporcional à temperatura [CUL72]:

$$\chi = \frac{C}{T} \tag{3.3.1}$$

esta relação é chamada de lei de Curie e C é a constante de Curie.

Uma explicação teórica para esse fenômeno foi dada por Langevin em 1905. A teoria de Langevin, que leva à lei de Curie, é baseada na hipótese de que os portadores de momento magnético (átomos ou moléculas) não interagem entre si, sendo submetidos somente ao campo aplicado e à agitação térmica. No entanto, nem todos os paramagnetos obedeciam esta lei. Para explicar esse comportamento, Weiss (1907) postulou que os momentos elementares (átomos ou moléculas) interagiam entre si e introduziu a idéia de um campo interno fictício, que substitui as interações. Esse campo foi chamado de campo molecular (ou médio) e corresponde ao campo magnético efetivo, que atua em cada átomo do material, gerado por todos os outros.

Para o desenvolvimento da TCM, partiremos de um sistema de N átomos magnéticos idênticos, sem interação. Nesse caso, nós precisamos considerar somente a Hamiltoniana de um único átomo [KAN92]:

$$H = -\vec{\mu} \cdot \vec{H} \tag{3.3.2}$$

onde $\vec{H}$ é o campo magnético aplicado e $\vec{\mu}$ é o momento magnético de um átomo livre, dado por:

$$\vec{\mu} = -g\mu_B \vec{J} \tag{3.3.3}$$

onde $\vec{J}$ é o momento angular total, μ_B é o magneton de Bohr e g é o fator giromagnético, dado pela equação de Landé:

$$g = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)} \tag{3.3.4}$$

O valor da magnetização por átomo, a uma temperatura finita T, pode ser escrita como:

$$\bar{J} = JB_J(x) \tag{3.3.5}$$

onde x= (g μ_BJ H / k_BT) e $B_J(x)$, chamada de função de Brillouin, é dada por:

$$B_J(x) = \frac{2J+1}{2J} coth\left(\frac{2J+1}{2J}x\right) - \frac{1}{2J} coth\left(\frac{x}{2J}\right) \tag{3.3.6}$$

No caso de um sistema ferrimagnético, a teoria de campo médio teve que ser modificada. Para simplificar o problema de um sistema ferrimagnético, Néel substituiu o material real por um modelo composto de íons magnéticos idênticos, divididos desigualmente entre duas sub-redes, resultando em três diferentes interações a serem consideradas. A TCM adaptada por Néel ficou conhecida como modelo de duas sub-redes de Néel. Esse modelo foi utilizado, pela primeira vez, para explicar o comportamento térmico da magnetização de ligas ferrimagnéticas amorfas de $(Gd_{1-x}\ Co_x)_{1-y}Mo_y$, por Hasegawa *et al.* [HAS75]. Nessas ligas as duas sub-redes magnéticas são o Co e o Gd. O papel do Mo é só o de preencher a banda 3d do Co. Generalizando para um sistema R_xM_{1-x}, onde R é um elemento de terra-rara e M, um metal de transição, a magnetização total, em magnetons de Bohr por fórmula unitária (μ_B/f.u.), será dada por:

$$m_S = \left| x g_R \bar{J}_R + (1-x) g_M \bar{S}_M \right| \tag{3.3.7}$$

As magnetizações de cada sub-rede, $\bar{S}_M$ e $\bar{J}_R$, podem ser expressas por:

$$\bar{S}_M = S_M\ B_S(g_M\ \mu_B\ H_M\ S_M / k_B T)$$

$$\bar{J}_R = J_R\ B_J(g_R\ \mu_B\ H_R\ J_R / k_B T) \tag{3.3.8}$$

onde S_M e J_R são o momento de spin do M e o momento angular total de R, respectivamente. É importante ressaltar que, para íons de metal de transição, o momento orbital é inibido. Isso quer dizer que somente os *spins* contribuem para o processo de magnetização (J=S) [CUL72]. No caso de íons de terra-rara, J corresponderá ao momento angular total (momento orbital mais *spin*). Embora, no caso particular do Gd, o momento orbital seja nulo e, portanto, J=S.

Os campos efetivos H_M e H_R podem ser escritos como:

$$H_M = 2\,J_{M-M}\,z_{M-M}\,\bar{S}_M / g_M\,\mu_B + 2\,J_{M-R}\,z_{M-R}\,\bar{J}_R / g_M\,\mu_B + H_a$$
$$H_R = 2\,J_{R-M}\,z_{R-M}\,\bar{S}_M / g_R\,\mu_B + 2\,J_{R-R}\,z_{R-R}\,\bar{J}_R / g_R\,\mu_B + H_a \qquad (3.3.9)$$

onde J_{M-M}, $J_{M-R}=J_{R-M}$ e J_{R-R} são as integrais de troca para as interações M-M, M-R e R-R, respectivamente; z_{ij} (i, j=M, R) é o número de primeiros vizinhos do átomo j para o átomo i e H_a é o campo externo aplicado. Assumindo-se que os átomos estejam arbitrariamente distribuídos sobre sítios atômicos não cristalinos com um número de coordenção médio igual a 12, como sugerido por dados de raios X para sistemas amorfos similares [CAR74]. Teremos,

$$z_{M-M}=12(1-x)=z_{R-M} \text{ e } z_{R-R}=12x=z_{M-R} \qquad (3.3.10)$$

A justificativa para a utilização da equação (3.3.8), no caso de metal de terra-rara, está no fato de que os elétrons responsáveis pelo magnetismo são elétrons localizados e a TCM é uma teoria de momento localizado [CUL72]. Apesar da extensão da banda 3d, é sabido que $\bar{S}$, para metais 3d, obedece relativamente bem a equação do tipo (3.3.8) [HAS75].

Em 1978, Gangulee *et al.* [GAN78] generalizaram a TCM para um sistema com n elementos magnéticos. Neste caso, a equação 3.3.7 será dada por:

$$m_S = \left|\sum_{i=1}^{n} X_i g_i \bar{J}_i\right| \qquad (3.3.11)$$

onde Xi é a fração atômica do i-ésimo elemento. A equação 3.3.8 ficará:

$$\bar{J}_i = J_i\, B_J\left(g_i\, \mu_B\, H_i\, J_i / k_B T\right) \tag{3.3.12}$$

A equação 3.3.9 será escrita como:

$$H_i = 24\sum_{j=1}^{n} \frac{J_{ij} X_j \bar{J}_j}{g_i \mu_B} + H_a \tag{3.3.13}$$

As curvas de magnetização em função da temperatura de filmes amorfos de R-M vêm sendo bem simuladas pela TCM [HAS75]. Das simulações são extraídos cinco parâmetros ajustáveis: μ_M ($g_M S_M\ \mu_B$), μ_R ($g_R J_R\ \mu_B$), $J_{M\text{-}M}$, $J_{M\text{-}R}$ e $J_{R\text{-}R}$. O valor de $J_{M\text{-}M}$ está principalmente relacionado à temperatura de Curie T_C e, é possível determiná-lo precisamente com o conhecimento de m_S, em torno de T_C. O valor de $J_{M\text{-}R}$ pode ser determinado a partir da temperatura de compensação T_{Comp}. O valor de $J_{R\text{-}R}$ é o menor de todos, cerca de dez vezes menor que $J_{M\text{-}R}$ e aproximadamente cem vezes menor que $J_{M\text{-}M}$, para filmes de Gd-Co [HAS75]. Devido à dificuldade de se determinar $J_{R\text{-}R}$, em alguns casos, ele é desprezado [UCH95].

3.4. EFEITOS MAGNETO-ÓPTICOS

De modo geral, os efeitos magneto-ópticos resultam da correlação entre fenômenos ópticos e magnéticos. Os fenômenos ópticos estão associados a processos, ocorrendo ao nível dos orbitais atômicos; os magnéticos são tipicamente associados aos *spins* eletrônicos. Assim, temos os efeitos magneto-ópticos como conseqüência direta do acoplamento *spin*- órbita. Na transmissão, eles são denominados efeito Faraday e efeito Voigt; na reflexão, são os efeitos Kerr magneto-ópticos.

O efeito Faraday [FRE68], observado, em 1845, em um pedaço de vidro localizado entre os pólos de um ímã, foi o primeiro dos efeitos magneto-ópticos a ser descoberto. O fenômeno consiste numa rotação do plano de polarização da luz linearmente polarizada, que se propaga em um meio

transparente sujeito a um campo magnético paralelo à sua direção. A luz incidente linearmente polarizada emerge elipticamente polarizada. Isto implica em birefringência circular, ou seja, diferentes índices de refração para as componentes da luz circularmente polarizadas para a esquerda e para a direita, nas quais a luz linearmente polarizada pode ser decomposta.

No efeito Voigt [ND]90], a magnetização é paralela à superfície da amostra e perpendicular à direção de propagação da onda incidente linearmente polarizada, os modos próprios de polarização são linearmente polarizados, conforme as direções paralela $E_{//}$, ou perpendicular $E_{\perp}$, à magnetização. A esses dois modos correspondem índices de refração (e coeficientes de absorção) diferentes, que induzem um fenômeno de birefringência magnética linear, produzindo a eliptização da luz transmitida.

Os efeitos Kerr, observados em processos de reflexão, podem ser estudados em três diferentes configurações (figura 3.4.1):

(i). efeito Kerr Polar ($\vec{M}$ normal ao plano da amostra),

(ii). efeito Kerr Longitudinal ($\vec{M}$ paralela ao plano da amostra e paralela ao plano de incidência da luz),

(iii). efeito Kerr Transversal ($\vec{M}$ paralela ao plano da amostra e perpendicular ao plano de incidência da luz). Esta última configuração corresponde à mais utilizada nesta tese.

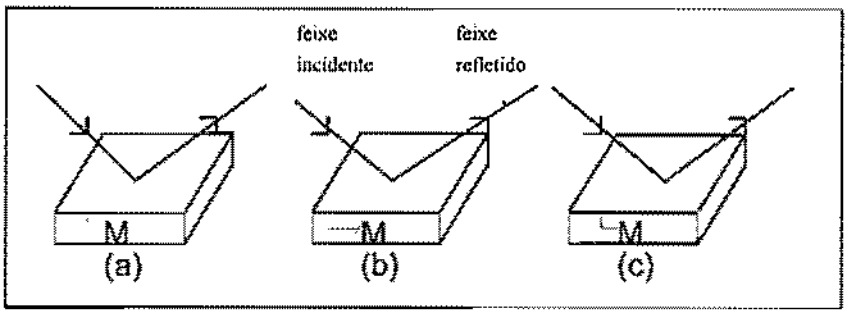


Figura 3.4.1. Configurações do efeito Kerr: (a) Polar, (b) Longitudinal e (c) Transversal [FRE68].

3.4.1. EFEITOS KERR MAGNETO-ÓPTICOS

Os efeitos magneto-ópticos, na reflexão, são agrupados sob o nome de efeitos Kerr magneto-ópticos. O cálculo dos coeficientes de reflexão [FRE68]

envolve a aplicação de condições de contorno eletromagnéticos para a interface do meio refletor. Estas condições são: a continuidade da componente normal de **B** e da componente tangencial de **E**. A aproximação $\mu = 1$ ($\mu = B/H$), nas freqüências ópticas [PER67], leva à continuidade da componente normal de **H**. A matriz formada pelos coeficientes de Fresnel relaciona entre si os campos elétricos dos raios refletido e incidente.

$$\begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}_{refletido} = \begin{bmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}_{incidente} \qquad (3.4.1)$$

Na ausência de magnetismo, os coeficientes não diagonais r_{sp} e r_{ps}, os quais determinam a reflexão magnética, são nulos e só teremos os coeficientes r_{pp} e r_{ss}, que correspondem à reflexão metálica. Os coeficientes r's são os chamados coeficientes de Fresnel.

Das condições de continuidade, deduz-se a Lei de Snell-Descartes:

$$n_0 \sin\theta_0 = n_1 \sin\theta_1 = n \sin\theta_2 \qquad (3.4.2)$$

onde $n_0 = n_1 = 1$ corresponde ao índice de refração no vácuo, n ao índice de refração do material e θ_0, θ_1 e θ_2 (complexo, em geral) são, respectivamente, os ângulos do raios incidente, refletido e refratado. Todos com respeito à normal à superfície da amostra.

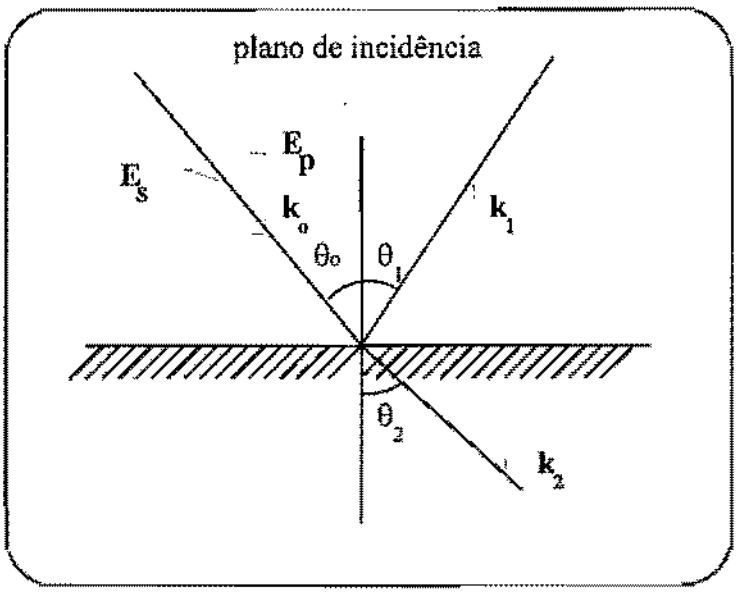


Figura 3.4.2. Geometria do efeito Kerr.

Fazendo uso das equações de Maxwell, é possível derivar a seguinte equação característica das propriedades ópticas de um material anisotrópico:

$$[n^2\mathbf{1} - \mathbf{k_2}\mathbf{k_2}/k_0^2 - \kappa]\ \mathbf{E_0}=0 \qquad (3.4.3)$$

onde $\mathbf{k_2}$ é o vetor de propagação da onda no material, $\mathbf{k_0}$ é o vetor de propagação no vácuo, $\mathbf{E} = \mathbf{E_0} \exp i(wt-\mathbf{k.r})$ é o campo elétrico da onda e n é o índice de refração, dado por:

$$n= k_2/k_0= [\mathbf{k_2}.\mathbf{k_2}]^{1/2} /k_0 \qquad (3.4.4)$$

A solução da equação 3.4.3 fornece o índice de refração e o correspondente campo elétrico.

Para um cristal cúbico com o campo magnético aplicado ao longo do eixo z, pode se mostrar que o tensor de permissividade relativa κ ($\kappa=\varepsilon/\varepsilon_0$) tem a forma:

$$\kappa=\begin{bmatrix} \kappa_1 & \kappa_2 & 0 \\ -\kappa_2 & \kappa_1 & 0 \\ 0 & 0 & \kappa_3 \end{bmatrix} \qquad (3.4.5)$$

No caso de materiais dia- ou paramagnéticos, κ_2 é proporcional, em primeira ordem, ao campo aplicado. Em um material ferromagnético, ele é proporcional à magnetização, ou seja, se não há magnetismo $\kappa_2=0$. Em termos da constante magneto-óptica Q, κ_2 pode ser escrita como $\kappa_2=in^2Q$.

Efeito Kerr Polar

O efeito Polar é observado numa configuração, onde a direção da magnetização é perpendicular à superfície da amostra (figura 3.4.1 (a)). O efeito corresponde a uma rotação do plano de polarização da luz linearmente polarizada, sendo a luz refletida elipticamente polarizada. O efeito Kerr polar é o análogo do efeito Faraday observado na transmissão.

Considerando-se que $\kappa_2 << \kappa_1$ e fazendo-se a aproximação $\kappa_1 = \kappa_3 \approx n^2$ (caso de um material com simetria cúbica), os coeficientes de Fresnel podem ser escritos como:

$$r_{pp} = \frac{n\cos\theta_o - \cos\theta_2}{n\cos\theta_o + \cos\theta_2} \tag{3.4.6}$$

$$r_{ss} = \frac{\cos\theta_o - n\cos\theta_2}{\cos\theta_o + n\cos\theta_2} \tag{3.4.7}$$

$$r_{ps} = -r_{sp} = -\frac{\kappa_2 \cos\theta_o}{n(\cos\theta_o + n\cos\theta_2)(n\cos\theta_o + \cos\theta_2)} \tag{3.4.8}$$

Efeito Kerr Longitudinal

Na configuração correspondente ao efeito Longitudinal, a direção da magnetização é paralela à superfície da amostra e ao plano de incidência (figura 3.4.1 (b)). Em geral, a onda incidente é linearmente polarizada e a incidência é oblíqua. Os modos próprios de propagação são elípticos. Em primeira aproximação, o efeito se traduz por uma rotação do plano de

polarização da luz refletida. Os coeficientes diagonais da matriz de Fresnel são os mesmos do efeito polar. Os coeficientes não diagonais são:

$$r_{ps} = -r_{sp} = \frac{\kappa_2 \sin 2\theta_o}{2n^2 \cos\theta_2 (n\cos\theta_o + \cos\theta_2)(\cos\theta_o + n\cos\theta_2)} \qquad (3.4.9)$$

Efeito Kerr Transversal

No caso do efeito Transversal, a direção de magnetização é paralela à superfície da amostra e perpendicular ao plano de incidência (figura 3.4.1 (c)). Os índices de refração complexos n_p e n_s correspondem aos modos próprios E_p e E_s polarizados linearmente, conforme as direções **p** (paralela) e **s** (perpendicular ao plano de incidência), e, por conseguinte, a matriz de Fresnel se apresenta diagonal. Os coeficientes não diagonais r_{ps} e r_{sp} são nulos. Os modos próprios obtidos da equação 3.4.3 são ondas polarizadas s e p com:

$$n_p = \sqrt{\kappa_1 + \kappa_2^2 / \kappa_3} \qquad (3.4.10)$$

$$n_s = \sqrt{\kappa_3} = n \qquad (3.4.11)$$

O índice n_s é independente da magnetização e o índice n_p, ao contrário, depende da magnetização através do termo κ_2.

$$r_{pp} = \frac{n\cos\theta_o - \cos\theta_2}{n\cos\theta_o + \cos\theta_2}\left(1 + \frac{\kappa_2 \sin 2\theta_o}{n^2\left(n^2\cos^2\theta_o - 1\right) + \sin^2\theta_o}\right) \qquad (3.4.12)$$

O coeficiente r_{pp} é uma função linear de κ_2 que, por sua vez, é proporcional à $\vec{M}$. Em um meio absorvente [FRE68], a intensidade da luz refletida é dependente do sentido da magnetização. A onda s é independente da magnetização e o coeficiente de Fresnel é dado por:

$$r_{ss} = \frac{\cos\theta_o - n\cos\theta_2}{\cos\theta_o + n\cos\theta_2} \tag{3.4.13}$$

As condições necessárias para a observação do efeito Kerr são definidas pelos ângulos: do polarizador (ϕ_p), do analisador (ϕ_a), do feixe incidente (θ_0) e do feixe refletido (θ_1). No magnetômetro Kerr, um laser emite luz polarizada que é refletida pela superfície da amostra e depois, detectada por um fotodiodo. O campo elétrico, após a transmissão da luz através do polarizador, tem a fórmula [FLO90]:

$$\vec{E} = E_o \cos\phi_p \vec{p} + E_o \sin\phi_p \vec{s} \tag{3.4.14}$$

onde $\vec{p}$ é o vetor unitário paralelo ao plano de incidência e $\vec{s}$ é o vetor perpendicular. A interação desta luz com o filme e a subseqüente reflexão podem ser expressas em termos de uma matriz geral de espalhamento. Para as duas componentes de magnetização, no plano da amostra, esta matriz é:

$$\begin{aligned} S^{xyzal} &= m_t^2 S^t(Q/m_t) + m_l^2 S^l(Q/m_l) \\ m_t &= M_t / M_s \\ m_l &= M_l / M_s \end{aligned} \tag{3.4.15}$$

onde M_t é a componente da magnetização perpendicular ao plano de incidência, M_l, a componente da magnetização paralela ao plano de incidência, e M_s, a magnetização de saturação. As matrizes de espalhamento para o efeito Kerr Transversal e Longitudinal são:

$$S^t(Q/m_t) \;\; e \;\; S^l(Q/m_l), \tag{3.4.16}$$

respectivamente. Estas matrizes podem ser reduzidas a outras, que descrevem a reflexão somente na interface. Para o caso Transversal:

$$S^t(Q/m_t) = \begin{bmatrix} r^t_{pp} & r^t_{ps} \\ r^t_{sp} & r^t_{ss} \end{bmatrix} \tag{3.4.17}$$

O termo entre parênteses, Q/m_t, significa que sempre que Q aparecer no coeficiente de Fresnel do efeito Kerr Transversal, Q deve ser substituído por Q/m_t. Uma definição semelhante pode ser apresentada para $S^t(Q/m_t)$. Uma vez que a magnetização está restrita ao plano

$$m_t^2 + m_l^2 = 1 \qquad (3.4.18)$$

O campo elétrico da onda luminosa, após a reflexão da superfície ferromagnética, é:

$$E_p^{'} = (m_t^2 r_{pp}^t + m_l^2 r_{pp}^l)E_o \cos\phi_p + m_t^2 r_{ps}^l E_o \sin\phi_p$$

$$E_s^{'} = (m_l^2 r_{sp}^l)E_o \cos\phi_p + r_{ss}^l E_o \sin\phi_p$$

(3.4.19)

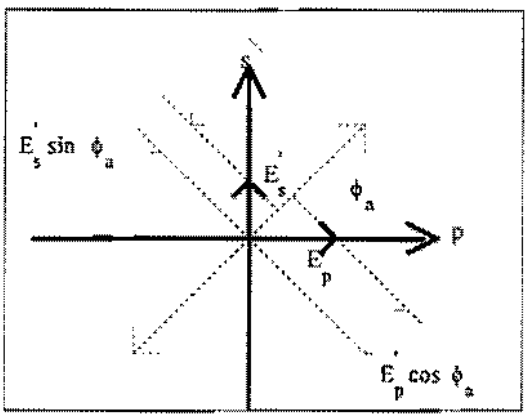


Figura 3.4.3. Representação gráfica da decomposição do campo elétrico refletido nas componentes paralela e perpendicular ao eixo de transmissão do analisador. O eixo de transmissão do analisador é rodado de $+\phi_a$ do plano de incidência. As componentes da luz refletida, que passa através do analisador, são $E_s^{'} \sin\phi_a$ e $E_p^{'} \cos\phi_a$ [Florczak e Dahlberg]

A luz refletida é enviada ao analisador, onde somente a componente paralela ao eixo de transmissão do analisador passará. A figura 3.4.3 mostra a decomposição deste campo elétrico em componentes paralela e perpendicular ao eixo de transmissão. A componente transmitida é detectada, então, pelo fotodiodo. Em termos do campo elétrico refletido a luz transmitida é:

$$E_t = E_s' \sin\phi_a + E_p' \cos\phi_a$$

$$E_t = E_0 [(m_l^2 r_{pp}^l + m_l^2 r_{pp}^l)\cos\phi_p \cos\phi_a + m_l^2 r_{ps}^l \sin(\phi_p - \phi_a) + r_{ss}^{l,1} \sin\phi_p \sin\phi_a]$$

(3.4.19)

A corrente no fotodiodo é proporcional ao quadrado do módulo de E_t. Isto fornece a intensidade do sinal detectado. Normalizando com a intensidade incidente I_o, obtemos:

$$I / I_o = [\left|m_l^2 r_{pp}^l + m_t^2 r_{pp}^t\right|^2 \cos^2\phi_p \cos^2\phi_a + \left|m_l^2 r_{ps}^l\right|^2 \sin^2(\phi_p - \phi_a)$$

$$+ \left|r_{ss}^l\right|^2 \sin^2\phi_p \sin^2\phi_a + [(m_l^2 r_{pp}^l + m_l^2 r_{pp}^l) m_l^2 r_{ps}^{l*} + c.c.] \cos\phi_p \cos\phi_a \sin(\phi_p - \phi_a)$$

$$+ [\left|m_l^2 r_{pp}^l + m_t^2 r_{pp}^t\right| r_{ss}^{l*} + c.c.] \sin\phi_p \sin\phi_a \cos\phi_p \cos\phi_a +$$

$$+ [r_{ss}^l m_l^2 r_{ps}^{l*} + c.c.] \sin\phi_p \sin\phi_a \sin(\phi_p - \phi_a).$$

(3.4.20)

onde c.c. representa o complexo conjugado do outro termo entre colchetes.

Experimentalmente, adotamos uma configuração em que a luz do laser é polarizada paralela ao plano de incidência da luz, ou seja, $\phi_p = 0°$.

$$\phi_p = 0° \quad \Rightarrow$$

$$I / I_o = [\left|m_l^2 r_{pp}^l + m_t^2 r_{pp}^t\right|^2] \cos^2\phi_a + \left|m_l^2 r_{ps}^l\right|^2 \sin^2\phi_a + [\left|m_l^2 r_{pp}^l + m_t^2 r_{pp}^t\right| m_l^2 r_{ps}^{l*} + c.c.] \sin\phi_a \cos\phi_a$$

(3.4.21)

Nesta condição, é possível detectar duas componentes da magnetização, paralelas ao plano da amostra. O grau de sensibilidade para cada componente depende do ângulo do analisador (ϕ_a). Para $\phi_a \cong 90°$, a intensidade da luz detectada depende principalmente da componente da magnetização paralela ao plano de incidência. Para $\phi_a \cong 0°$, a intensidade é particularmente sensível a

mudanças na componente da magnetização perpendicular ao plano de incidência.

O magnetômetro a efeito Kerr em baixas temperaturas (MEK-bt), construído e desenvolvido em nosso laboratório pela estudante de doutorado, Adriana P.B.Tufaile, utiliza a configuração do efeito Kerr transversal. Nesta configuração, a magnetização se apresenta paralela ao plano da amostra e perpendicular ao plano de incidência da luz, ou seja, $\phi_p = \phi_a = 0^o$. O efeito corresponde a uma variação na refletividade, que é proporcional à componente de magnetização perpendicular ao plano de incidência da luz.

$$\phi_a = 0^o \quad \Rightarrow$$

$$(I / I_o)^t = \left| m_t^2 r_{pp}^t \right|^2$$

(3.4.22)

Definidos os ângulos $\phi_p = \phi_a = 0^o$, vamos agora determinar os ângulos do feixe incidente (θ_0) e do feixe refletido (θ_1). Como a incidência é oblíqua, qualquer ângulo entre 0° e 90° serviria, excluindo-se esses dois extremos. Em todas as medidas, o ângulo de incidência (θ_0) foi mantido a 45°, com relação à normal à superfície da amostra, bem como o ângulo refletido (θ_1).

Algumas mudanças foram feitas no MEK-bt pelo estudante de doutorado, Carlos E. Santi, para possibilitar medidas de efeito Kerr Polar. A mudança foi necessária para análise dos filmes com anisotropia perpendicular.

Capítulo 4

LIGAS BINÁRIAS:R-Co (R=Y, Gd, Tb)

4.1. INTRODUÇÃO

Existem duas principais séries de elementos magnéticos: metais de transição (M) e metais de terra-rara (R). Nos metais de transição, o momento magnético ocorre devido aos elétrons da camada 3d, e nos metais de terra-rara, por causa dos elétrons da camada 4f. Os compostos intermetálicos de R-M são interessantes pois combinam o grande momento magnético do primeiro com a forte interação de troca e, por conseguinte, a alta temperatura de Curie do segundo.

Os compostos binários analisados neste trabalho foram: Y-Co, Gd-Co e Tb-Co. Embora o Y não seja um elemento de R, ele representa um "pseudo-terra-rara" não magnético, pois substitui bem o elemento de terra-rara e fornece informação sobre a interação de troca entre Co-Co. O Gd, sendo o mais magnético dos metais de R e um íon esfericamente simétrico, deverá fornecer informação sobre o efeito do magnetismo do R sem as complicações de momentos orbitais ou anisotropia local. O Tb é o mais anisotrópico dos átomos de R pesados e deve exibir muito fortemente os efeitos de anisotropia local.

Neste capítulo, descreveremos as principais características desses compostos, os resultados e a análise utilizando a Teoria de Campo Médio (TCM) e, finalizaremos com as conclusões sobre esses compostos binários de R-M, comparando os valores de *spin* e integrais de troca com os valores da literatura.

4.1.1. ORDEM DE CURTO ALCANCE

O primeiro trabalho com resultados detalhados do arranjo atômico em uma liga amorfa de R–M foi publicado em 1974 por Cargill [CAR74]. Medidas de espalhamento de raios X em ligas amorfas de $GdFe_2$ indicaram uma ordem de curto alcance significativamente diferente da liga cristalina. Durante os cálculos para a obtenção das distâncias interatômicas (Tabela 4.1), Cargill utilizou, como densidade da liga amorfa $GdFe_2$, um valor que corresponde a 93% do seu valor no estado cristalino. Essa redução de 7% foi determinada por Rhyne [RHY74], no caso de $TbFe_2$ amorfo.

Outro trabalho de análise estrutural de liga amorfa de R-M foi publicado por Givord *et al.* em 1979. Através de espalhamento de nêutrons e de raios X em uma liga amorfa de YNi_2 não magnética, Givord *et al.* [GIV79] observaram um ordenamento preferencial de átomos de Y e Ni com relação ao arranjo cristalino, apesar da baixa simetria local. As distâncias interatômicas (Tabela 4.2) Y-Y são superiores na liga amorfa, ao contrário das distâncias Y-Ni e Ni-Ni. A densidade atômica ρ_0 medida, (6.8±0.1) g/cm^3, e comparada à sua densidade no composto cristalino, 7.38 g/cm^3, corresponde a uma redução de cerca de 8%. Os números de coordenação (Tabela 4.2) estão mais próximos aos associados a estruturas cristalinas do que a um arranjo totalmente desordenado.

Tabela 4.1. [CAR74]

Distância dos primeiros vizinhos (Å)				Números de coordenação	
	Cristalino	Amorfo	Diâmetro de Goldschmidt	Cristalino	Amorfo
Gd-Gd	3.18	3.47	3.60	4	6±1
Gd-Fe	3.05	3.04	3.07	12	6.7±0.6
Fe-Gd				6	3.3±0.3
Fe-Fe	2.60	2.54	2.54	6	6.3±0.5

Tabela 4.2. [GIV79]

Distância dos primeiros vizinhos (Å)				Números de coordenação		
	Cristalino	Amorfo	Diâmetro de Goldschmidt	Cristalino	Modelo Amorfo	Estatístico
Y-Y	3.11	3.40	3.60	4	4	5.6
Y-Ni	2.98	2.80	3.04	12	12	10.4
Ni-Y				6	5	4.2
Ni-Ni	2.54	2.45	2.48	6	5.5	7.8

Devido à grande similaridade entre as propriedades químicas dos dois metais (Co e Ni), o resultado de Givord *et al.* foi utlizado em meu trabalho de mestrado [YON95], supondo que as estruturas atômicas das ligas amorfas $Y_{0.33}Ni_{0.67}$ e $R_{0.33}Co_{0.67}$ (R=Y, Gd) fossem semelhantes. Comparando os dois trabalhos, podemos concluir que a redução ~8% na densidade é válida para ligas R-M, com R=Y, Gd, Tb e M=Ni, Co. Embora o Y não seja estritamente

um elemento de terra-rara, ele é incluído no grupo em virtude da sua estrutura eletrônica externa ser similar. Experimentalmente, ele vem se mostrando como um bom substituto em ligas de R-M [LEE74].

4.1.2. COMPOSTOS Y-M (M=Fe, Co, Ni)

A formação de um composto Y-M leva à associação de uma estreita banda 3d com uma 4d (Y) mais larga [CYR79]. A diferença em eletronegatividade dos constituintes, ou seja, em energia de Fermi, dá origem à transferência de elétrons 4d para a banda incompleta 3d, que está a uma energia mais baixa [GIG81]. Essa transferência modifica a blindagem dos potenciais nucleares dos elétrons, provocando a aproximação das duas bandas d. A hibridização resultante dos estados 3d e 4d cria uma região de curvatura positiva na densidade de estados (figura 4.1).

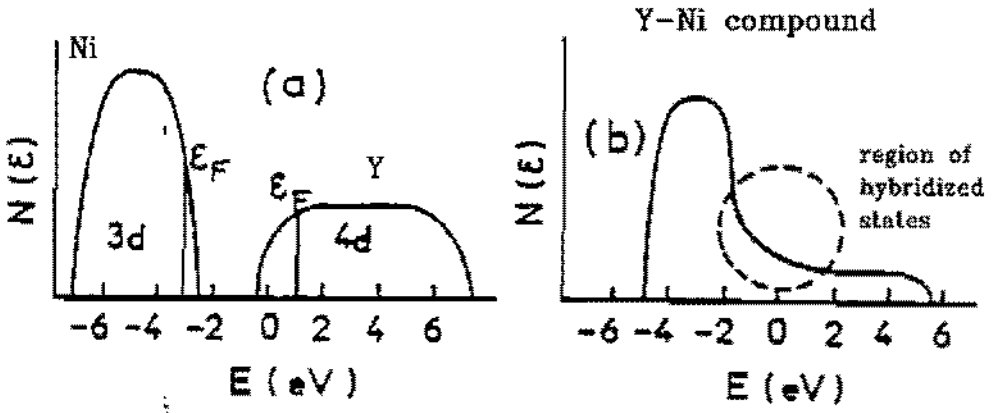


Figura 4.1. Representação esquemática da densidade de estados (a) em metais de Ni e Y puros e (b) em compostos de Y-Ni [GIG81].

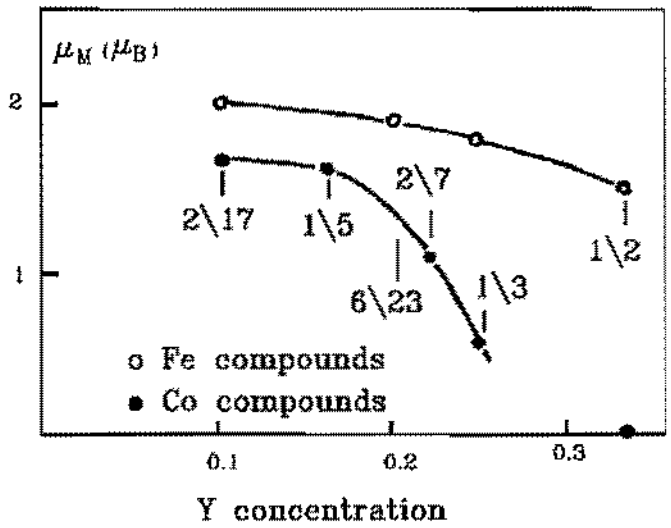


Figura 4.2. Variação do momento magnético 3d em ligas de Y-Fe e Y-Co em função da quantidade de átomos de Y na liga. Onde ½ significa RM_2 e assim por diante [GAV88].

Em compostos intermetálicos de R-M (M=Fe,Co), quando R é um elemento não magnético, o valor da magnetização é caracterizado pelo decréscimo do momento magnético 3d com o aumento da concentração de R. Isto está ilustrado na figura 4.2 para ligas de Y_yFe_{1-y} e Y_yCo_{1-y}. Para concentrações de Y até y=0.2, verifica-se um progressivo decréscimo do momento 3d, em ambos os compostos. Para y>0.2, o momento do Co decresce muito mais rapidamente. Este efeito acontece devido a uma redução na separação da banda 3d do Co, que desaparece completamente para y≅ 0.33, ou seja, no composto YCo_2. No estado amorfo, o YCo_2 continua ferromagnético. A menor densidade da fase amorfa leva à redução da transferência de cargas e hibridização associada, resultando no aumento do momento do Co e da temperatura de Curie [TAO73]. Além disso, na vizinhança da concentração crítica de desaparecimento do magnetismo, os efeitos do meio se tornam importantes. Considere uma liga amorfa cuja composição química média corresponde à de desaparecimento do magnetismo: YCo_2. Em razão da diversidade de meios, dentro de certas zonas a concentração de cobalto é superior à da média e o cobalto, aí, portará um momento magnético. Este efeito é ampliado pelo fato das interações magnéticas resultantes acarretarem uma polarização de conjunto dos

momentos magnéticos do Co da liga. Os dois fenômenos descritos acima explicam porque a concentração crítica de desaparecimento do magnetismo nos amorfos é superior à observada no estado cristalino [NDJ90].

4.1.3. COMPOSTOS R-M (R=Gd, Tb - M=Fe, Ni, Co)

Como regra geral, o valor do momento magnético do metal de transição decresce, com respeito ao seu valor no metal puro, como função da quantidade de terra rara na liga [GAV88]. Este efeito é causado pela transferência de elétrons de condução 5d e 6s da terra-rara para a banda 3d do metal de transição e pela hibridização 5d-3d.

Quando o átomo R é magnético, as propriedades magnéticas das ligas R-M resultam dos efeitos combinados dos magnetismos 3d e 4f. Associado aos metais 3d, está um alto valor de temperatura de Curie (ou forte interação de troca) e associada aos metais 4f, está uma alta anisotropia magnetocristalina (ou alto momento magnético). Nesses compostos intermetálicos, podemos considerar três tipos de interações de troca: entre metais de terra-rara (R-R), entre metais de transição (M-M) e entre terra-rara e metal de transição (R-M). A interação M-M é a mais forte. Em geral, é observado um forte acoplamento entre momentos magnéticos nos metais 3d. Em particular, o ferromagnetismo é estável em Fe, Co e Ni até temperaturas muito maiores que a ambiente. De fato, os elétrons 3d ocupam uma camada mais externa e, em metais, eles participam na estrutura de banda. Seu caráter itinerante é a origem do acoplamento entre momentos atômicos. Em Co e Ni, a banda 3d é quase cheia. O acoplamento ferromagnético dos momentos ocorre assegurando a qualquer tempo o paralelismo dos momentos de spin de todos os elétrons para todos os sítios atômicos [BAC93]. A interação R-R é do tipo RKKY, que é a mais fraca, normalmente negligenciável. Em metais de terra-rara, as temperaturas de ordenamento magnético são, em geral, menores que a temperatura ambiente. Isto mostra que as interações magnéticas entre momentos de spin são muito mais fracas do que em metais 3d. De fato, os elétrons 4f, que ocupam uma camada mais interna, são fortemente localizados e nenhuma interação direta pode ocorrer.

As interações de troca entre elétrons 4f são indiretas, mediadas por elétrons 5d, 6s. A interação R-M, intermediária entre as duas outras, corresponde a uma interação de troca indireta entre os momentos 3d do metal de transição e 4f da terra-rara.

No caso de terras-raras, o acoplamento spin-órbita é muito forte [BAC93], fixando de maneira rígida os spins dos elétrons 4f à sua órbita. Este acoplamento é: antiparalelo, J=L-S, no caso de terras-raras leves (camada 4f, menos que a metade preenchida: Pr,Nd,Sm) e paralelo, J=L+S, no caso de terras-raras pesadas (camada 4f, mais que a metade preenchida: Tb,Dy,...). Os momentos orbitais dos elétrons 4f são, em geral, mais importantes que seus momentos de spin. Como regra geral, observa-se que, em todos os compostos intermetálicos conhecidos, os momentos de spin da terra-rara e do metal de transição se acoplam antiparalelamente [CYR79]. A combinação desses efeitos resulta no acoplamento paralelo entre momentos magnéticos dos elementos de transição e de terras-raras, no caso de terra-rara leve, e antiparalelo, no caso de terra-rara pesada. Uma interpretação desse fenômeno foi proposta por Campbell [CAM72]. Devido ao caráter localizado dos elétrons 4f, interações diretas entre os momentos 4f e 3d não podem acontecer. É natural assumir que as interações sejam mediadas por elétrons 5d. Nos sítios R, interações positivas acontecem entre os elétrons 4f e 5d. As interações entre elétrons 3d e 5d podem ser discutidas considerando que em Fe, Co e Ni, a banda d é mais da metade preenchida, ao passo que em átomos de R, é menos que a metade preenchida. Em tais casos, é esperado um acoplamento antiferromagnético dos spins [TAY71]. A combinação das interações 4f-5d e 5d-3d leva, por conseguinte, a um acoplamento antiferromagnético dos spins, como é observado.

No estado amorfo [GIV74], as interações de troca R-M não são modificadas de maneira significativa. O campo cristalino, por outro lado, é profundamente afetado na parte de simetria. De fato, a interação de anisotropia local surge da interação coulombiana de uma distribuição de carga 4f altamente não esférica, com o campo eletrostático produzido pelos íons vizinhos. Esse campo eletrostático dá origem a uma distribuição de eixos

locais de fácil magnetização, dirigidos de maneira aleatória [RHY74]. As estruturas magnéticas nas ligas amorfas resultam, nesse caso, dos efeitos combinados de interações de troca M-M, R-M e de campo eletrostático. As interações de troca favorecem os arranjos colineares de momentos magnéticos. O campo eletrostático favorece os arranjos estruturais nos quais os momentos magnéticos são dirigidos em todas as direções do espaço. As estruturas resultantes dependem da importância relativa entre troca e anisotropia. Na figura 4.3, estão representadas as estruturas magnéticas quando: (a) a anisotropia de R é muito menor que a interação de troca entre R e M, (b) R é um elemento de terra-rara pesado e a anisotropia é muito maior que a interação de troca e (c) R é um elemento de terra-rara leve e a anisotropia é muito maior que a interação de troca [COE78].

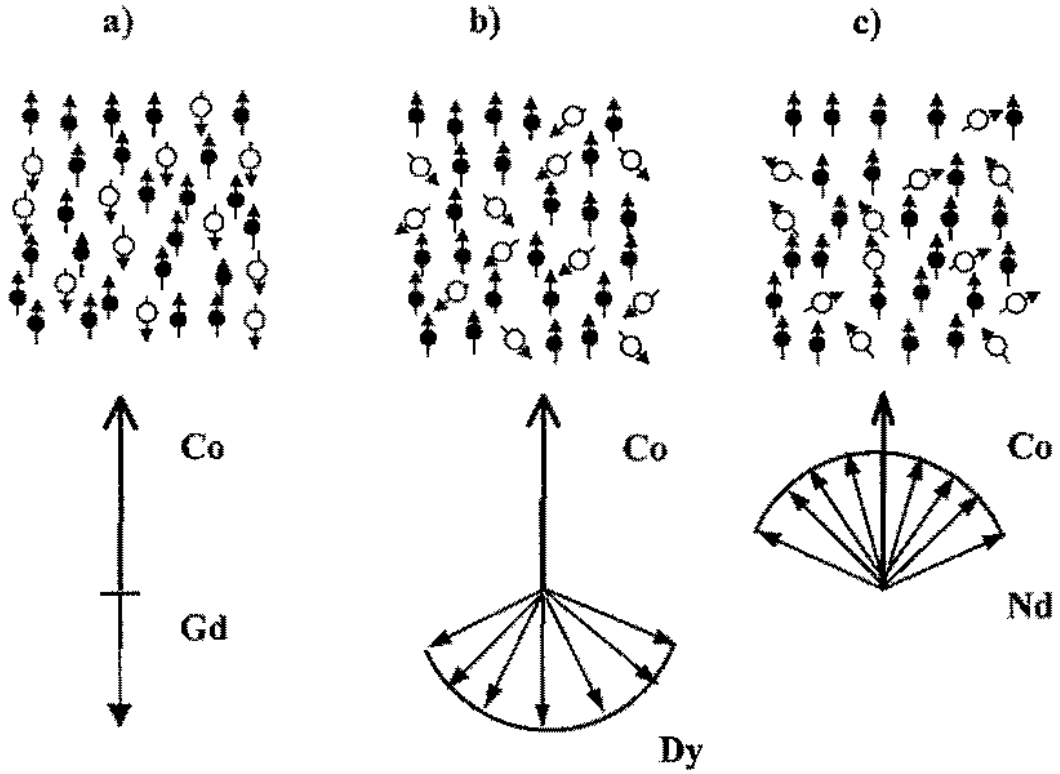


Figura 4.3. Estruturas magnéticas de ligas amorfas de R-M: a) Gd-Co (ferrimagnético), b) Dy-Co (sperimagnético) e c) Nd-Co (sperimagnético) [COE78].

4.2. PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS

Os filmes foram confeccionados por *sputtering* com a utilização dos quatro canhões de *magnetron sputtering* disponíveis. Foram utilizados alvos de Si, Co, Gd (ou Tb) e Y com mais de 99.8% de pureza, para a confecção dos filmes de Y-Co, Gd-Co e Tb-Co. O porta-substrato, descrito anteriormente, possibilita a confecção simultânea de três amostras, sendo uma bicamada e dois filmes simples de mesma composição dos componentes da bicamada. Para garantir o estado amorfo dos filmes, o substrato foi resfriado com N_2 líquido durante a deposição. Cada um dos três filmes foi depositado sobre dois substratos diferentes: vidro e silício. O substrato de vidro possibilita a medida de efeito Kerr tanto do lado onde o filme está depositado como do lado do substrato. O substrato de silício, por sua vez, facilita a análise dos espectros de *Rutherford Backscattering Spectrometry* (RBS). Por se tratar de um elemento leve, o pico do silício se localiza na região de baixas energias do espectro de RBS, portanto, longe dos picos de Gd, Co, Y e Tb.

Foram depositadas também camadas de Si_3N_4 entre o filme e o substrato e sobre o filme para protegê-lo da oxidação.

Para a deposição da camada metálica foi utilizada uma pressão de argônio de 5mTorr (ou 1mTorr), com fluxo de $20cm^3$/min. Para as camadas de nitreto de silício, foi utilizada uma mistura de argônio e nitrogênio a uma pressão de 5mTorr, com fluxo de argônio de $20cm^3$/min e fluxo de nitrogênio de $2cm^3$/min. Visando a obtenção de filmes mais homogêneos, o porta-substrato foi mantido em rotação de 20rpm durante a deposição. Foi observado que, para a maioria dos filmes, essa rotação propiciava o surgimento de um eixo de fácil magnetização na direção radial do porta-amostra.

As amostras G4P5, Y1P5, T1P5 e a bicamada YT1P5 foram tratadas termicamente a 300°C, por 3 horas, com um campo magnético de 5kOe, aplicado paralelamente ao plano do filme. O objetivo do tratamento foi induzir uma anisotropia uniaxial no plano do filme. As amostras G3P1 e T3P1 foram tratadas a 300°C sem campo. O objetivo, neste caso, foi tentar estabilizar a

configuração de momentos dos filmes, logo após a deposição. A amostra G5P1 não foi tratada termicamente. Como foi mencionado anteriormente, no código da amostra, o primeiro dígito (ou dois primeiros no caso de bicamada) indica qual o elemento de R que compõe o filme, o segundo serve para diferenciar as amostras de mesmo R (ele é o mesmo para as três amostras produzidas na mesma seqüência de deposição) e os dois últimos indicam qual a pressão de Ar (P_{Ar}) utilizada durante a deposição do filme.

4.3. CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS

4.3.1. DETERMINAÇÃO DE ESPESSURA E COMPOSIÇÃO

As medidas de RBS foram feitas no Laboratório de Análise de Materiais por Feixes Iônicos (LAMFI), localizado no Instituto de Física da USP. Foi usado um acelerador linear eletrostático da NEC (National Eletrostatics Corporation) modelo 5SDH. Esse equipamento é do tipo Pelletron, com arranjo Tandem e tensão de terminal máxima de 1.7 MV. Os resultados de densidade (N) e composição dos filmes, obtidos a partir dos espectros de RBS, estão na tabela 4.3.1. Na mesma tabela estão as áreas (S) de cada amostra, bem como, os valores calculados de ρ_{amorfo} e de espessura (E) para as diferentes amostras. As espessuras dos filmes foram obtidas dividindo-se a densidade (N) pela densidade atômica média (ρ_{amorfo}). Lembrando que de acordo com as medidas de espalhamento de nêutrons e de raios X, a amorfização de filmes do tipo RM_2 leva a uma redução de cerca de 8% na densidade com relação ao material cristalino [CAR74, GIV79]. Os valores de ρ_{amorfo} utilizados na determinação das espessuras correspondem aos do material cristalino reduzidos da mesma quantidade (8%) para todas as amostras. As incertezas associadas aos valores de ρ_{amorfo}, N e E são da ordem de 4, 1 e 5%, respectivamente.

Para a análise que será feita neste capítulo, nós podemos utilizar a espessura calculada (E) e a área da amostra (S) e trabalhar com a magnetização em unidades de emu/cm^3 ou utilizar N e S e trabalhar com a magnetização em μ_B/f.u. Com o intuito de minimizar as incertezas, optamos por utilizar N e S.

Tabela 4.3.1.
Resultados de densidade (N) e composição obtidos por RBS.

Código da amostra	Composição	E (nm)	ρ_{amorfo} ($x10^{22}$atom/cm^3)	N ($x10^{18}$atom/cm^2)	S (cm^2)
Y1P5	$Y_{0.33}Co_{0.67}$	108	5.94	0.64	0.67
Y2P1	$Y_{0.33}Co_{0.67}$	30	5.94	0.18	0.58
G3P1	$Gd_{0.28}Co_{0.72}$	125	5.51	0.69	0.43
G4P5	$Gd_{0.32}Co_{0.68}$	107	5.15	0.55	0.56
G5P1	$Gd_{0.20}Co_{0.80}$	110	6.10	0.67	0.52
T1P5	$Tb_{0.38}Co_{0.62}$	153	4.98	0.76	0.61
T2P1	$Tb_{0.36}Co_{0.64}$	34	5.04	0.17	0.61
T3P1	$Tb_{0.32}Co_{0.68}$	189	5.19	0.98	0.55

4.3.2. CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA E MAGNETO-ÓPTICA

As medidas de magnetização em função da temperatura foram feitas no magnetômetro SQUID. Durante a aquisição das curvas de ligas de Y-Co (Figura 4.4), Gd-Co (Figura 4.6) e Tb-Co (Figura 4.8), foi aplicado um campo magnético de 2, 2 e 40 kOe, respectivamente. O sinal do vidro do substrato, que corresponde a $4x10^{-4}$ emu (para H=40kOe, massa=0.0228g e T=4.2K), já foi subtraído das curvas de mxT. Maiores detalhes a respeito do sinal do vidro serão dados no capítulo 6, durante a análise das ligas ternárias. A seguir, utilizaremos a Teoria de Campo Médio (TCM) para explicar a dependência térmica da magnetização de ligas de R-Co (R=Gd, Tb).

A. Y-Co

Foram produzidos dois filmes de Y-Co de mesma composição, mas em condições de deposição diferentes. Para a deposição das amostras Y1P5 e Y2P1, foram utilizadas pressões de Ar (P_{Ar}) de 5 e 1 mTorr, respectivamente. As curvas de magnetização em função da temperatura apresentaram comportamentos distintos para as duas amostras (figura 4.4). Em T=4.2K, a magnetização da amostra Y2P1 vale m=0.624μ_B/f.u, com o momento do

cobalto (μ_{Co}) correspondendo a μ_{Co}=0.93μ_B, e a da amostra Y1P5 vale m=0.843 μ_B/f.u. com μ_{Co}=1.26μ_B, o que equivale a um aumento de cerca de 35.5%. Outra diferença entre as curvas é a forma com que a magnetização de cada amostra decresce com a temperatura. No caso da amostra Y1P5, que possui μ_{Co} maior, o decréscimo é mais lento. De acordo com Gavigan *et al.* [GAV88], a temperatura de Curie (T_C) de ligas à base de Co é aproximadamente proporcional a μ_{Co}^2. Portanto, quanto maior o μ_{Co}, mais lentamente a magnetização da liga cai a zero. A variação do μ_{Co} com a P_{Ar} pode ser entendida se levarmos em conta que durante a deposição, devido à redução da pressão de Ar, os átomos dos alvos sofrem menos colisões no seu trajeto em direção ao substrato e chegam a ele com maior energia cinética. Tendo em vista a redução do μ_{Co} com a redução da P_{Ar}, podemos concluir que essa energia extra propicia a formação de filmes mais densos. Como se sabe, o momento do cobalto em ligas de Y-Co decresce com o aumento de Y na liga. Esse efeito é explicado através da transferência de carga do Y para o Co [GIG81]. O YCo_2 cristalino é paramagnético à temperatura ambiente; no estado amorfo, ele continua ferromagnético devido à redução de sua densidade. De acordo com Tao *et al.* [TAO73], a menor densidade no estado amorfo leva à redução da transferência de carga do Y para o Co, mantendo-o ferromagnético por uma faixa maior de composições. Concluindo, a amostra Y1P5 produzida com P_{Ar} de 5mTorr deve possuir uma densidade menor que a amostra produzida a 1mTorr, de forma que a transferência de carga seja menor e o μ_{Co} seja maior.

A redução da densidade devido à amorfização de filmes do tipo RM_2 foi verificada através de medidas de espalhamento de nêutrons e de raios X [CAR74, GIV79]. Essa redução de densidade é causada pelo aumento da distância interatômica R-R. Por outro lado, as distâncias R-M e M-M são reduzidas, implicando no aumento da interação de troca entre R-M e M-M. Esse aumento da interação de troca entre M-M é o responsável pelo aumento da T_C, observado na amostra Y1P5. Portanto, a hipótese de aumento da densidade com a redução da P_{Ar} explica satisfatoriamente tanto a redução do

μ_{Co} como também a forma mais rápida com que a magnetização cai a zero quando P_{Ar}=1mTorr.

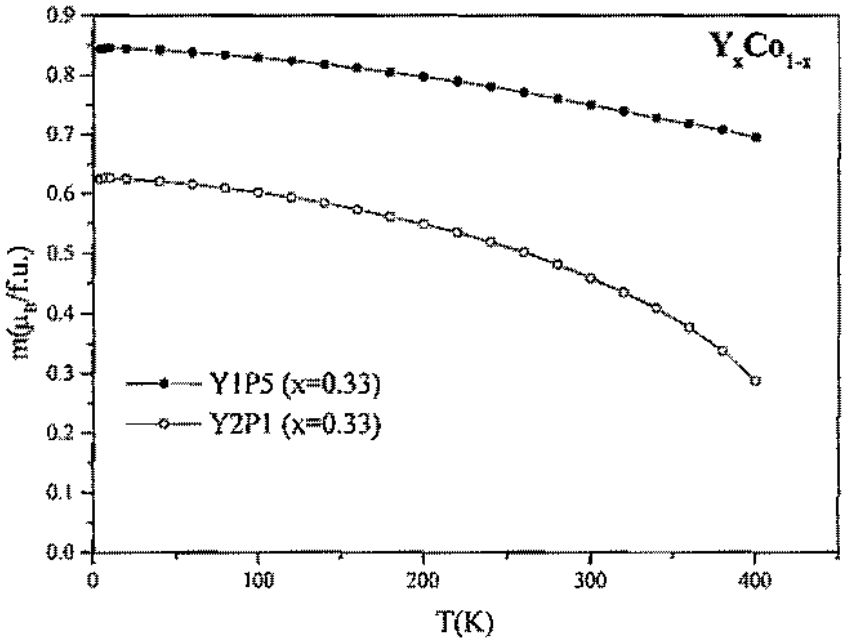


Figura 4.4. Magnetização em função da temperatura para filmes amorfos de Y-Co.

A conversão de unidades emu (SQUID) para μ_B/f.u. foi calculada a partir da seguinte expressão:

$$m[emu]\frac{\mu_B}{(0.927x10^{-20}\ erg/Oe)}\frac{1}{(Nx10^{18}\ atom/cm^2)}\frac{1}{S\ cm^2}\frac{atom}{molécula} = m'\frac{\mu_B}{f.u.}$$

(4.1)

onde μ_B é o magneton de Bohr, N é a densidade em μ_B/cm^2 e S é a área da amostra. Os valores de N e S para todas as amostras estão na tabela 4.3.1.

O momento magnético do cobalto em μ_B foi calculado a partir do valor de magnetização para T=4.2K (figura 4.4), através da relação:

$$\mu_{Co} = \frac{m'}{(1-x)}\mu_B \qquad (4.2)$$

A caracterização magneto-óptica das ligas de Y-Co foi feita com a utilização de um Magnetômetro a efeito Kerr em baixas temperaturas (MEK-bt). A comparação entre as curvas magnéticas e magneto-ópticas em função da temperatura permitiram confirmar os comportamentos distintos das duas amostras de $Y_{0.33}Co_{0.67}$ (figura 4.5).

Em ligas de R-Co, o sinal magneto-óptico é devido principalmente aos átomos de metal de transição (Co). Curvas de histerese magneto-ópticas são "normais", quando o Co está alinhado paralelamente ao campo magnético aplicado, e invertidas, em caso contrário. Como para ligas de Y-Co, o único material magnético é o Co, ele estará alinhado paralelamente ao campo e a curva será normal, como pode ser visto no detalhe da figura 4.5. Exemplos de curvas invertidas poderão ser vistos a seguir em ligas de R-Co (R=Gd, Tb), onde o momento magnético total de R é maior que o do Co.

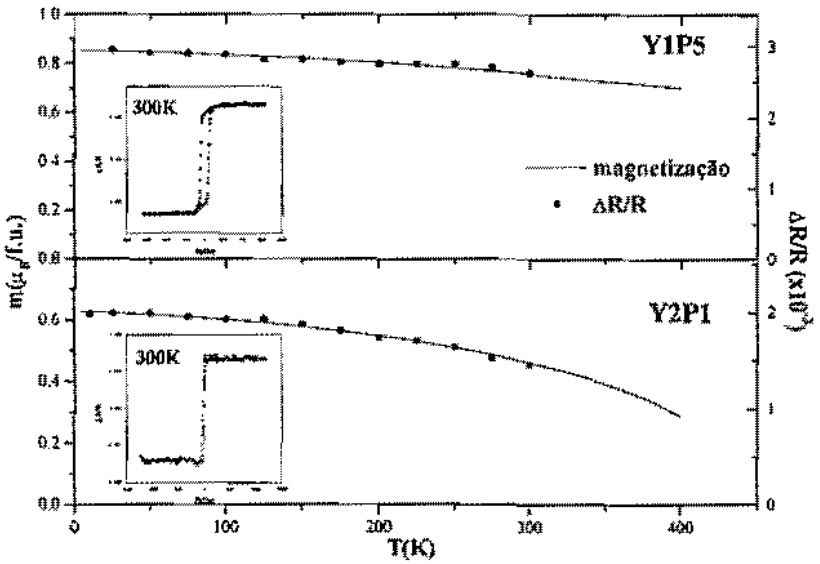


Figura 4.5. Comparação entre as curvas de magnetização e de ΔR/R em função da temperatura para filmes amorfos de $Y_{0.33}Co_{0.67}$. No detalhe, as respectivas curvas de histerese magneto-ópticas para T=300K.

B. Gd-Co

Filmes amorfos de Gd_xCo_{1-x} são ferrimagnéticos, com o momento do Gd (μ_{Gd}) alinhado antiparalelamente ao do Co (μ_{Co}). A dependência de μ_{Co} com a

composição, estimada por Taylor e Gangulee [TAY76] e utilizada por Uchiyama [UCH95] na análise de filmes de Gd-Co, foi baseada no modelo de transferência de carga:

$$\mu_{Co}/\mu_B = 1.7 - 1.862\{x/(1-x)\}^{3/2} \qquad (4.3)$$

Os seguintes valores de μ_{Co} foram calculados a partir da equação 4.3:

<u>G5P1 (x=0.20):</u> $\mu_{Co}=1.47\mu_B$

<u>G3P1 (x=0.28):</u> $\mu_{Co}=1.24\mu_B$

<u>G4P5 (x=0.32):</u> $\mu_{Co}=1.09\mu_B$

A Teoria de Campo Médio (TCM) foi usada para explicar a dependência térmica da magnetização nas ligas amorfas de Gd_xCo_{1-x}. As interações de troca entre os pares atômicos Co-Co, R-R e R-Co foram avaliadas (Tabela 4.3.2). As curvas de magnetização em função da temperatura estão representadas por diferentes símbolos e as simulações por linha contínua na figura 4.6. Os momentos de *spin* do Co também foram extraídos das simulações e forneceram como μ_{Co} os seguintes valores:

<u>G5P1 (x=0.20):</u> $\mu_{Co}=(1.47\pm0.16)\mu_B$

<u>G3P1 (x=0.28):</u> $\mu_{Co}=(1.26\pm0.14)\mu_B$

<u>G4P5 (x=0.32):</u> $\mu_{Co}=(1.46\pm0.16)\mu_B$

A concordância entre os valores de μ_{Co} para as duas primeiras amostras, produzidas à P_{Ar} de 1mTorr, foi muito boa. A mesma concordância não foi observada para a terceira amostra, que foi produzida com P_{Ar} de 5mTorr. Como foi notado para as amostras de Y-Co, a variação de P_{Ar} acarreta variação na densidade do filme. Baseado no resultado obtido para as ligas de Y-Co e tendo em vista que a amostra G4P5 apresenta a mesma quantidade de Co (~0.67), podemos considerar o mesmo aumento percentual no μ_{Co} quando a P_{Ar} passa de 1 para 5mTorr. O aumento de 35.5% vai resultar em:

<u>G4P5 (x=0.32):</u> $\mu_{Co}=1.47\mu_B$.

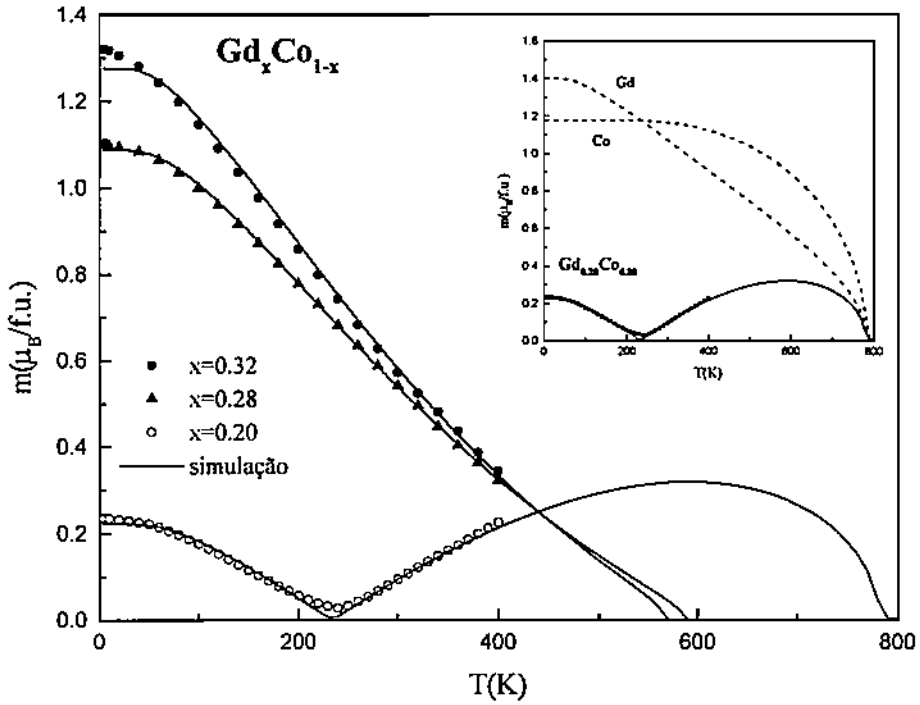


Figura 4.6. Magnetização em função da temperatura para filmes amorfos de Gd-Co. Em destaque, a simulação da amostra G5P1 com a contribuição de cada sub-rede para a curva de magnetização total simulada.

Os resultados obtidos até agora confirmam a forte dependência do momento magnético do Co de ligas amorfas de R-Co não só com o método de deposição, mas também com as condições de deposição. O fato da equação de Taylor e Gangulee representar bem os nossos dados experimentais, para as amostras produzidas com P_{Ar} de 1mTorr, significa que as amostras utilizadas por eles possuem aproximadamente a mesma densidade das nossas. Portanto, a comparação dos nossos resultados experimentais com os da literatura não pode ser feita levando-se em conta apenas a composição da amostra. Como ficou claro pela análise das nossas amostras, as condições de deposição são responsáveis por mudanças nos valores de μ_{Co} e, conseqüentemente, nos valores de temperatura de compensação (T_{comp}) e de temperatura de Curie (T_C). Um exemplo é o trabalho de Dirks *et al.* [DIR77], onde se faz o estudo de temperaturas de compensação magnética (T_{comp}) de ligas amorfas de R-Co. De acordo com esse trabalho, o $Gd_{0.20}Co_{0.80}$ possui

T_{comp}=420K, diferentemente do que foi observado para a amostra G5P1, de igual composição, cuja T_{comp} está em torno de 240K.

Para simular as curvas de mxT utilizando a TCM, desenvolvemos um programa em C que faz o ajuste dos pontos experimentais. O método de ajuste não linear, chamado de Método de Marquardt, corresponde a uma rotina em C do *Numerical Recipes*. A função a ser ajustada (FMXT) foi montada a partir das equações utilizadas na TCM. Nela, as variações térmicas das magnetizações de cada sub-rede do sistema ferrimagnético Gd-Co são representadas por funções de Brillouin acopladas. Para fazer o ajuste é preciso fornecer ao programa os parâmetros a serem ajustados e os pontos experimentais: temperatura, magnetização e incerteza associada aos dados. Através de zeros e uns, é possível selecionar quais dos nove parâmetros serão ajustados em cada simulação. A partir dos parâmetros iniciais de entrada, o programa calcula o valor da magnetização (m) para cada valor de temperatura e o compara ao valor experimental. O critério de qualidade do ajuste utilizado pelo programa é o chi^2. Para cada variação feita nos parâmetros, são calculados os novos valores de m e dos chi^2 correspondentes. Se houver redução do chi^2, os novos valores dos parâmetros serão salvos e uma nova variação será feita até que se alcance o menor chi^2 possível. Os nove parâmetros de entrada são: x (% atm de Gd), 1-x (% atm de Co), S_{Gd}, S_{Co}, g_{Gd}, g_{Co}, $J_{Gd\text{-}Gd}$, $J_{Gd\text{-}Co}$ e $J_{Co\text{-}Co}$. Com nove parâmetros livres para serem variados matematicamente, o programa ajusta qualquer "coisa", pois a quantidade de mínimos locais é muito grande. Para que o ajuste forneça resultados físicos razoáveis, serão necessários: curva experimental completa (de 4.2K até a T_C) e o conhecimento prévio do maior número de parâmetros. Alguns parâmetros que podem ser fixados são: a composição da amostra, o spin do Gd (S_{Gd}=3.5) e os fatores g do Gd e do Co (g_{Gd}=g_{Co}=2). Como parâmetros iniciais, podemos utilizar, para as integrais de troca, os valores da literatura [HAS75], ou seja, $J_{Gd\text{-}Gd}$ em torno de 2×10^{-16} erg, $J_{Gd\text{-}Co}$ em torno de -2.2×10^{-15} erg e $J_{Co\text{-}Co}$ entre 1 e 2 $\times10^{-14}$ erg.

Tabela 4.3.2.
Parâmetros extraídos das simulações.

Amostra	Chi^2	S_{Co}	$J_{Gd\text{-}Gd}$ (10^{-16}erg)	$J_{Gd\text{-}Co}$ (10^{-15}erg)	$J_{Co\text{-}Co}$ (10^{-14}erg)
$Gd_{0.32}Co_{0.68}$ (G4P5)	8.6	0.74	2.0	-1.92	0.9
	7.0	0.74	1.5	-1.99	0.9
	5.6	0.73	1.0	-2.07	0.9
	3.4	0.73	0.1	-2.20	0.9
$Gd_{0.28}Co_{0.72}$ (G3P1)	0.66	0.63	2.0	-2.33	1.1
	0.46	0.63	1.5	-2.40	1.1
	0.36	0.63	1.0	-2.48	1.1
	0.39	0.63	0.1	-2.61	1.1
$Gd_{0.20}Co_{0.80}$ (G5P1)	16.7	0.74	2.0	-2.15	1.2
	16.4	0.74	1.5	-2.19	1.2
	16.2	0.74	1.0	-2.24	1.2
	16.5	0.74	0.1	-2.32	1.2

Discutiremos a seguir os resultados dos ajustes para cada amostra.

Amostra G5P1

O melhor ajuste (menor chi^2) foi obtido para $J_{Co\text{-}Co}=1.2\times10^{-14}$ erg e $J_{Gd\text{-}Gd}=1.0\times10^{-16}$ erg (tabela 4.3.2), com T_C de aproximadamente 800K, extraída do ajuste. O valor de $J_{Gd\text{-}Co}=-(2.23\pm0.22)\times10^{-15}$ erg extraído do ajuste está em concordância com a literatura [HAS75].

Amostra G3P1

Para $J_{Co\text{-}Co}=1.1\times10^{-14}$ erg, o melhor ajuste (menor chi^2) foi obtido para $J_{Gd\text{-}Gd}=1.0\times10^{-16}$ erg (tabela 4.3.2) e a T_C extraída do ajuste foi de 590K. A partir desse ponto, variamos o $J_{Co\text{-}Co}$ de 1.2 a 0.9 $\times10^{-14}$ erg e verificamos o

efeito sobre os outros parâmetros. O $J_{Gd\text{-}Co}$ passou de -2.48 para -2.47 $x10^{-15}$ erg e o S_{Co} de 0.629 para 0.630, ou seja, não foram afetados. Como era de se esperar a quantidade afetada foi a T_C, que variou de 630 para 530K. Se a curva experimental fosse completa (de 4.2K até a T_C), poderíamos definir melhor o valor de $J_{Co\text{-}Co}$. Contudo, é importante salientar que mesmo sem termos a curva completa, os outros parâmetros estão bem definidos e praticamente independem do conhecimento exato do $J_{Co\text{-}Co}$. O valor de $J_{Gd\text{-}Co}$= -(2.48±0.25)$x10^{-15}$ erg também está em concordância com os valores da literatura.

Amostra G4P5

Como no caso anterior, a curva experimental não é completa. Mas neste caso, a temperatura de Curie (T_C~565K) foi obtida da literatura [TAO73]. A amostra de Gd-Co utilizada por Tao *et al.* apresenta a mesma composição e μ_{Co} (1.40±0.15μ_B) que a amostra G4P5. O valor de $J_{Co\text{-}Co}$, para obter T_C=570K, corresponde a 0.9 $x10^{-14}$ erg. Para $J_{Co\text{-}Co}$=0.9$x10^{-14}$ erg, o melhor ajuste foi obtido para $J_{Gd\text{-}Gd}$= 0.1$x10^{-16}$ erg (tabela 4.3.2). Da mesma forma que no caso anterior, nós variamos o $J_{Co\text{-}Co}$ de 1.1 a 0.8 $x10^{-14}$ erg e verificamos o efeito sobre os outros parâmetros. O $J_{Gd\text{-}Co}$ passou de -2.205 para -2.204 $x10^{-15}$ erg, o S_{Co} de 0.726 para 0.730 e a T_C de 640 para 545K. A mesma concordância com a literatura foi observada para o $J_{Gd\text{-}Co}$=-(2.20±0.22)$x10^{-15}$ erg.

Através da caracterização magneto-óptica das amostras G3P1 e G4P5 à temperatura ambiente, foi possível verificar que o momento total do Gd é maior que o momento total do Co na liga, e nessa condição, o Gd se alinha paralelamente e o Co, antiparalelamente ao campo magnético aplicado. Como o sinal magneto-óptico é quase que exclusivamente devido ao metal de transição (Co), o que observaremos será uma curva de histerese invertida (figura 4.7). À temperatura ambiente, a amostra G5P1 já passou pela compensação (T_{comp}~240K), acima da qual quem domina magneticamente é o Co. Apesar da amostra G5P1 não ter sido caracterizada magneto-

opticamente, o que observaremos será uma curva de histerese "normal", semelhante às curvas obtidas para as ligas de Y-Co (figura 4.5).

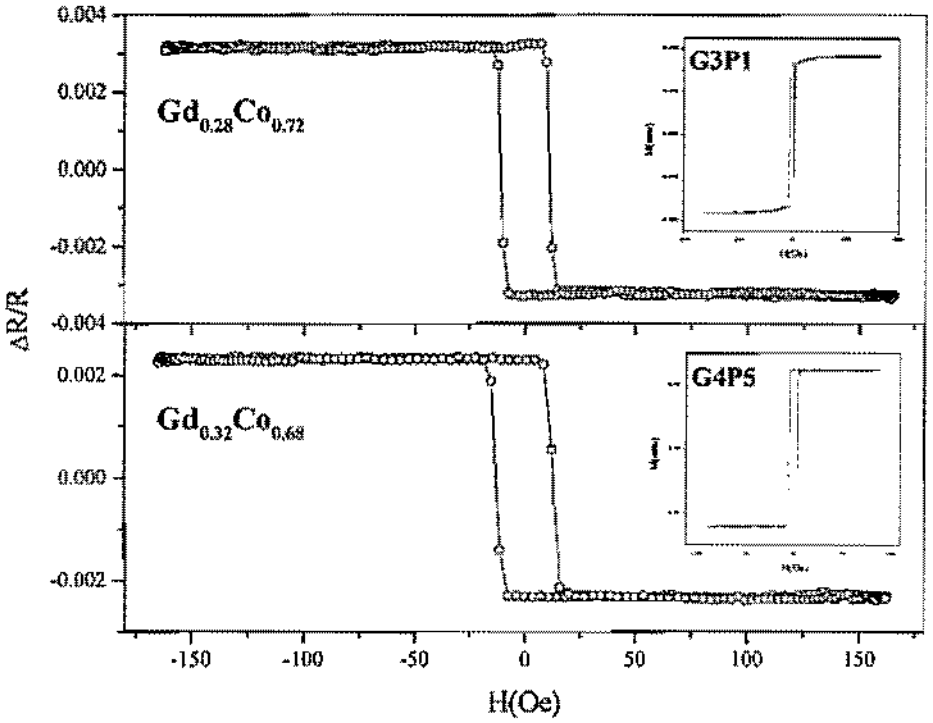


Figura 4.7. Curvas de histerese magneto-ópticas das amostras G3P1 e G4P5, à temperatura ambiente. No detalhe, as curvas de magnetização em função do campo aplicado feitas no magnetômetro de amostra vibrante (MAV).

C. Tb-Co

Filmes amorfos de Tb_xCo_{1-x} são sperimagnéticos, com o momento médio do Tb (μ_{Tb}) alinhado antiparalelamente ao μ_{Co}. O momento angular orbital total do Tb (J_{Tb}) para o íon livre é igual a 6, mas para levarmos em conta a sua forte anisotropia local, este valor não pode ser fixado durante as simulações. A existência do sperimagnetismo é confirmada pela redução do J_{Tb} para um valor médio ($\langle J_{Tb} \rangle$) obtido das simulações.

A TCM ou o modelo de duas sub-redes de Néel é próprio para a análise de materiais ferrimagnéticos, como o Gd-Co. A sua utilização na análise de um material sperimagnético é feita considerando-o um ferrimagneto com

momento médio do R ($\mu_R = \langle J_R \rangle g_R \mu_B$) alinhado antiparalelamente ao do Co. Como no caso anterior, as curvas de mxT não são completas. Sendo assim, os valores de J_{Co-Co} não poderão ser extraídos dos ajustes com exatidão.

A análise de ligas de Tb-Co é bem mais complexa, em virtude do número maior de parâmetros a serem ajustados. Alguns parâmetros que podem ser fixados são: a composição da amostra e os fatores g do Tb e do Co (g_{Tb}=1.5 e g_{Co}=2). Como parâmetros iniciais, podemos utilizar, para as integrais de troca, os valores obtidos para as ligas de Gd-Co. As curvas de magnetização em função da temperatura, juntamente com as curvas simuladas, estão na figura 4.8.

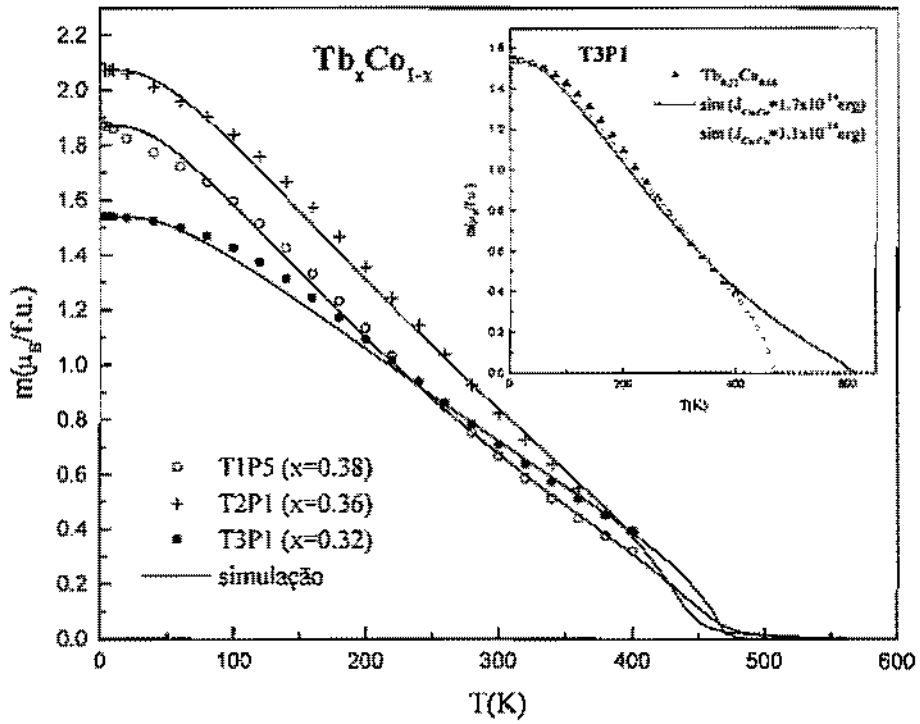


Figura 4.8. Magnetização em função da temperatura para filmes amorfos de Tb-Co. No detalhe, estão representadas duas simulações da mesma curva com J_{Co-Co}=1.1x10^{-14}erg (T_C=480K) e J_{Co-Co}=1.7x10^{-14}erg (T_C=610K).

Assumindo-se que o S_{Co} na liga Tb_xCo_{1-x} não pode ser maior que o S_{Co} na liga Gd_xCo_{1-x}, para a faixa de composições analisada, os seguintes valores de μ_{Co}, calculados a partir da equação 4.3, darão o valor máximo que o S_{Co} na liga Tb_xCo_{1-x} poderá ter:

T3P1 (x=0.32): μ_{Co}=1.09μ_B

S_{Co}=0.54

T2P1 (x=0.36): μ_{Co}=0.92μ_B

S_{Co}=0.46

T1P5 (x=0.38): μ_{Co}=0.81μ_B

S_{Co}=0.40 (+35.5%) = 0.55

As amostras T3P1 e T2P1 foram produzidas a P_{Ar} de 1mTorr e a amostra T1P5, a 5mTorr. A correção de 35.5% no S_{Co}, para levar em conta a redução da densidade, no caso da amostra T1P5, foi utilizada nas ligas de Gd-Co e deve valer para o Tb-Co.

De acordo com Uchiyama [UCH95], o μ_{Co} na liga R_xCo_{1-x} decresce mais lentamente com x para R=Gd. Nos outros casos, a dependência de μ_{Co} com x será dada por:

$$\mu_{Co}/\mu_B = (1.9 - 4x)/(1 - x) \qquad (4.4)$$

Os valores de μ_{Co} calculados a partir da equação 4.4 serão:

T3P1 (x=0.32): μ_{Co}=0.9μ_B

S_{Co}=0.45

T2P1 (x=0.36): μ_{Co}=0.72μ_B

S_{Co}=0.36

T1P5 (x=0.38): μ_{Co}=0.61μ_B

S_{Co}=0.31 (+35.5%) = 0.42

Quando x passa de 0.32 (T3P1) para 0.36 (T2P1), o S_{Co} sofre uma redução de cerca de 15.8% e 20% de acordo com a equação 4.3 e 4.4, respectivamente. Alguns pares [S_{Co}, $\langle J_{Tb}\rangle$] foram utilizados para as simulações, tomando como base os valores de S_{Co} calculados acima. A cada valor de S_{Co} está associado um valor de $\langle J_{Tb}\rangle$. Para T=4.2K, a dependência de S_{Co} com $\langle J_{Tb}\rangle$ será dada por:

$$S_{Co} = \left(\frac{x g_{Tb} \langle J_{Tb} \rangle - m'}{g_{Co}(1-x)} \right) \tag{4.5}$$

onde: g_{Tb}=1.5, g_{Co}=2 e m' é a magnetização total da amostra para T=4.2K, em μ_B/f.u. As curvas de S_{Co} em função de $\langle J_{Tb} \rangle$, correspondentes a cada amostra, estão na figura 4.9.

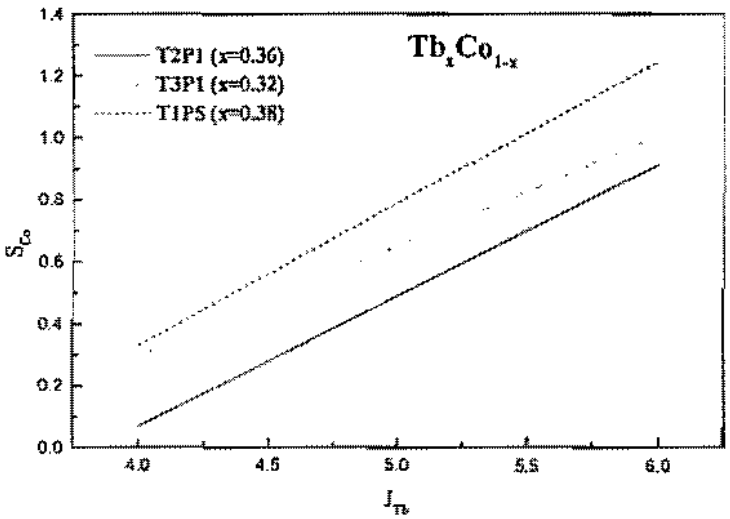


Figura 4.9. Curvas de S_{Co} em função do $\langle J_{Tb} \rangle$ para filmes de Tb-Co.

Como podemos ver na figura 4.9, existem inúmeros pares [S_{Co}, $\langle J_{Tb} \rangle$]. A cada par está associada uma curva de mxT que, através de variações convenientes dos $J_{Tb\text{-}Co}$ e $J_{Co\text{-}Co}$, fornecerá curvas semelhantes. Na tabela 4.3.3, estão os valores dos parâmetros ajustados para alguns pares [S_{Co}, $\langle J_{Tb} \rangle$]. Cada linha da tabela corresponde a uma simulação. Os parâmetros sublinhados são os parâmetros livres para serem ajustados pelo programa. As seis curvas ajustadas para cada amostra são praticamente as mesmas, ou seja, apresentam o mesmo formato e inclusive a mesma T_C. Os valores de $J_{Tb\text{-}Co}$ e $J_{Co\text{-}Co}$ foram alterados, durante o ajuste, para se obter o menor chi^2. É interessante notar que para compensar a redução do par [S_{Co}, $\langle J_{Tb} \rangle$], os $J_{Tb\text{-}Co}$ e $J_{Co\text{-}Co}$ foram aumentados, de forma a se obter o mesmo resultado final (curvas com o mesmo formato).

Tabela 4.3.3
Parâmetros extraídos das simulações.

Amostra	Chi^2	$\langle J_{Tb} \rangle$	S_{Co}	J_{Tb-Tb} (10^{-16}erg)	J_{Tb-Co} (10^{-15}erg)	J_{Co-Co} (10^{-14}erg)
$Tb_{0.38}Co_{0.62}$ (T1P5)	4.1	4.6	0.61	0.1	-1.63	1.0
	4.6	4.5	0.56	0.1	-1.75	1.1
	5.2	4.4	0.52	0.1	-1.90	1.2
	6.0	4.3	0.47	0.1	-2.08	1.3
	7.0	4.2	0.42	0.1	-2.29	1.5
	8.3	4.1	0.38	0.1	-2.54	1.7
$Tb_{0.36}Co_{0.64}$ (T2P1)	3.1	5.0	0.49	1.0	-1.51	1.2
	3.6	4.9	0.45	1.0	-1.69	1.4
	4.1	4.8	0.41	1.0	-1.87	1.5
	4.8	4.7	0.36	1.0	-2.09	1.7
	5.7	4.6	0.32	1.0	-2.36	2.0
	8.2	4.5	0.28	1.0	-2.65	2.4
$Tb_{0.32}Co_{0.68}$ (T3P1)	4.7	4.9	0.62	1.0	-1.60	0.9
	4.7	4.8	0.58	1.0	-1.71	0.9
	4.8	4.7	0.54	1.0	-1.83	1.0
	4.9	4.6	0.51	1.0	-1.97	1.1
	5.0	4.5	0.47	1.0	-2.13	1.2
	5.2	4.4	0.44	1.0	-2.31	1.3

Assim como fez Uchiyama [UCH95], vamos inicialmente simplificar a análise dos resultados da tabela 4.3.3 considerando $\langle J_{Tb} \rangle$ independente da composição. Neste caso, verificaremos que o comportamento composicional do μ_{Co} não obedece à equação 4.3 e nem à equação 4.4. Por exemplo, para $\langle J_{Tb} \rangle$=4.6, a redução no valor de S_{Co} é de 36.8%, ou seja, bem maior que a

prevista para ligas de Gd-Co (equação 4.3), que foi de 15.8%, e que a prevista para ligas de R-Co (R≠Gd, equação 4.4), que foi de 20%.

Considerando $\langle J_{Tb} \rangle$ dependente da composição, verificaremos a que valores de $\langle J_{Tb} \rangle$ correspondem os S_{Co} calculados com as equações 4.3 e 4.4. Os valores estão na tabela 4.3.4, juntamente com as respectivas integrais de troca $J_{Tb\text{-}Co}$, extraídas das simulações.

Tabela 4.3.4.
Integrais de troca $J_{Tb\text{-}Co}$ extraídas das simulações, usando as equações 4.3 e 4.4 para calcular o S_{Co}.

x (% atm Tb)	Equação 4.3			Equação 4.4		
	S_{Co}	$\langle J_{Tb} \rangle$	$J_{Tb\text{-}Co}$ ($x10^{-15}$erg)	S_{Co}	$\langle J_{Tb} \rangle$	$J_{Tb\text{-}Co}$ ($x10^{-15}$erg)
0.32	0.54	4.70	-1.8	0.45	4.44	-2.2
0.36	0.46	4.92	-1.7	0.36	4.69	-2.1
0.38	0.40 (0.55*)	4.16 (4.47*)	-2.4 (-1.8*)	0.31 (0.42*)	3.95 (4.19*)	-2.9 (-2.3*)

*Valores corrigidos para levar em conta o aumento de 35.5% no S_{Co} devido à redução de densidade.

A correção no S_{Co}, devido à redução da densidade, levou a resultados mais consistentes. Nas duas situações analisadas na tabela 4.3.4, a correção de 35.5% no S_{Co} da amostra T1P5 (x=0.38) fez com que os valores de $J_{Tb\text{-}Co}$ ficassem em torno do mesmo valor para as três amostras. Esse comportamento reforça a validade da hipótese de variação de densidade com as condições de deposição dos filmes. Com relação a $J_{R\text{-}Co}$, espera-se que ligas de Tb-Co, bem como ligas de Gd-Co, possuam $J_{R\text{-}Co}$ em torno de $-2.2x10^{-15}$ erg. Levando-se em consideração a incerteza associada às medidas, os valores de $J_{Tb\text{-}Co}=-(1.8 \pm 0.2)x10^{-15}$ erg (equação 4.3) e $J_{Tb\text{-}Co}=-(2.2 \pm 0.2)x 10^{-15}$ erg (equação 4.4) apontam para a equação 4.4 como sendo a mais provável a ser utilizada na análise de filmes de Tb-Co. Deixando de lado a questão de qual equação descreve melhor a dependência composicional do μ_{Co}, uma observação muito interessante foi feita com relação ao

comportamento de $\langle J_{Tb} \rangle$ com P_{Ar} e com a composição. A variação do $\langle J_{Tb} \rangle$ com a P_{Ar} é clara. Verifica-se uma redução acentuada quando a P_{Ar} passa de 1 (T2P1) para 5mTorr (T1P5), independente da equação utilizada (tabela 4.3.4). A redução do $\langle J_{Tb} \rangle$ com o aumento da P_{Ar} pode ser explicada através do aumento da distância interatômica entre os pares Tb-Tb, devido à redução da densidade. Como a interação de troca é de curto alcance, o aumento da distância interatômica resulta no enfraquecimento da interação de troca entre os átomos de Tb. Esse enfraquecimento pode ser constatado através dos valores dos J_{R-R} ajustados nas simulações das curvas de magnetização em função da temperatura, para R=Gd (tabela 4.3.2) e R=Tb (tabela 4.3.3). Em virtude do enfraquecimento da interação de troca, a configuração de momentos do Tb deve ficar mais aberta, ou seja, o ângulo de abertura do cone de momentos do Tb deve aumentar, provocando uma redução do momento médio na direção antiparalela ao μ_{Co} [COE76]. Com relação à composição, o efeito é o oposto, ou seja, o $\langle J_{Tb} \rangle$ aumenta com a quantidade de Tb na liga. A causa é a mesma, com o aumento de Tb na liga, a transferência de carga aumenta provocando uma redução do S_{Co} e da distância interatômica entre os pares Tb-Tb. Resumindo, o $\langle J_{Tb} \rangle$ decresce com o aumento da distância interatômica entre os pares Tb-Tb. Em termos de composição, para amostras produzidas à mesma P_{Ar}, pode se dizer que o $\langle J_{Tb} \rangle$ aumenta com a quantidade de Tb na liga.

Com relação à caracterização magneto-óptica, da mesma forma que no caso das amostras de Gd-Co, as três amostras de Tb-Co analisadas apresentaram o momento total do Tb maior que o do Co, à temperatura ambiente. Desta maneira, observaremos curvas de histerese magneto-ópticas invertidas (figura 4.10). Na figura 4.10, só a curva da amostra T2P1 está representada, as outras curvas são equivalentes.

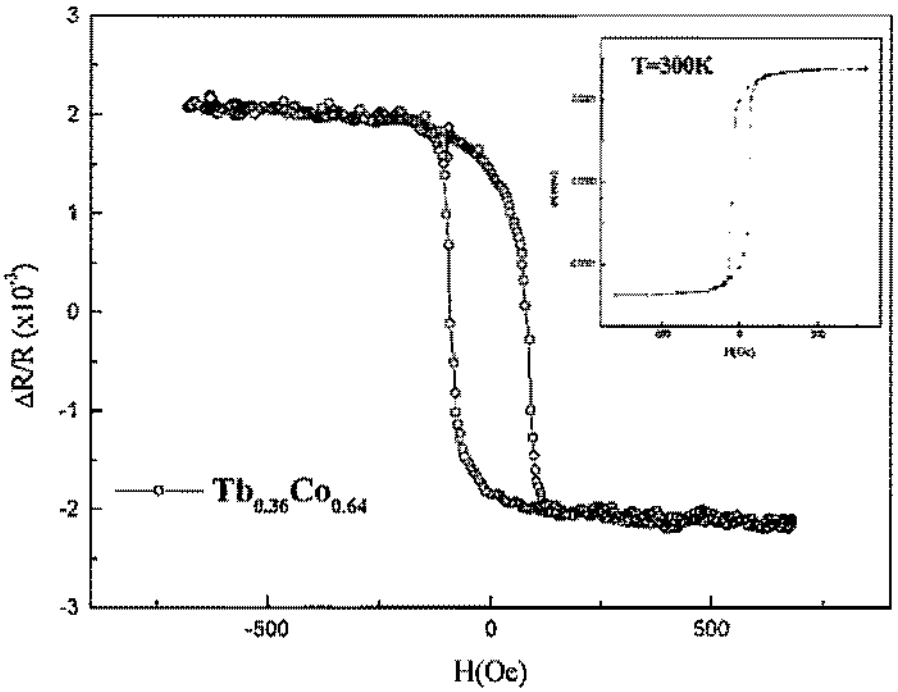


Figura 4.10. Curva de histerese magneto-óptica da amostra T2P1, a 300K. No detalhe, a curva de mxH feita no magnetômetro SQUID.

Maiores detalhes sobre as curvas de magnetização e de ΔR/R em função do campo aplicado serão dados no capítulo 5, durante a análise da bicamada Y-Co/Tb-Co.

4.3.3. CÁLCULO DA CONSTANTE DE TROCA (*A*) DE FILMES AMORFOS DE R-Co (R=Gd,Tb)

Aqui, calcularemos o valor de *A* para os diferentes filmes simples analisados em termos da TCM, na seção anterior. O modelo de Hasegawa, que corresponde à aproximação do campo médio para o valor da constante de troca *A*, foi elaborado por ele e apresentado pela primeira vez em 1974 [HAS74]. A expressão para o cálculo de *A* é dada por:

$$A = \frac{n_{11} J_{11} S_1^2 (1-x)^2}{r_{11}} + \frac{(n_{12}+n_{21})|J_{12}|\bar{S}_1 \bar{S}_2 x(1-x)}{r_{12}} + \frac{n_{22} J_{22} \bar{S}_2^2 x^2}{r_{22}}$$

(4.6)

onde n_{ij} ($n_{11}=n_{12}=n_{21}=n_{22}=2$ [HAS74]) são os números de pares por unidade de volume, r_{ij} (1=R e 2=Co) são as distâncias interatômicas, que foram consideradas como sendo r_{CoCo}=2.54Å, $r_{Gd\text{-}Co}$=3.04Å, r_{GdGd}=3.47Å e r_{TbTb}=3.56Å, de acordo com estudos estruturais [CAR74, RHY74].

O comportamento térmico de *A* poderá ser obtido substituindo-se os valores de J_{ij} e de *spin*, obtidos dos ajustes, na equação 4.6. Esses valores estão nas tabelas 4.3.5 e 4.3.6, juntamente com os valores calculados de *A* para T=300K. As curvas de *A* em função da temperatura para os filmes de Gd-Co e Tb-Co estão nas figuras 4.11 e 4.12, respectivamente. Fica claro pela equação 4.6 que a dependência térmica de *A* é determinada, principalmente, pelo momento de *spin* S_i de cada elemento que compõe o filme.

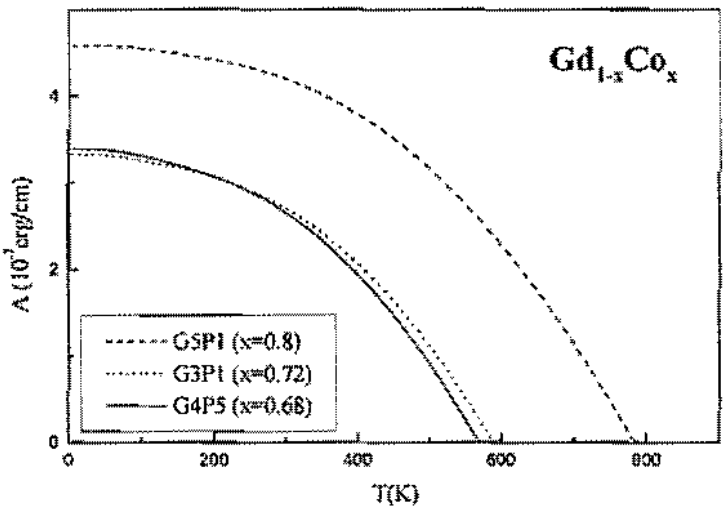


Figura 4.11. Dependência térmica da constante de troca *A* de filmes simples amorfos de Gd-Co (deduzida do modelo de Hasegawa [HAS74]).

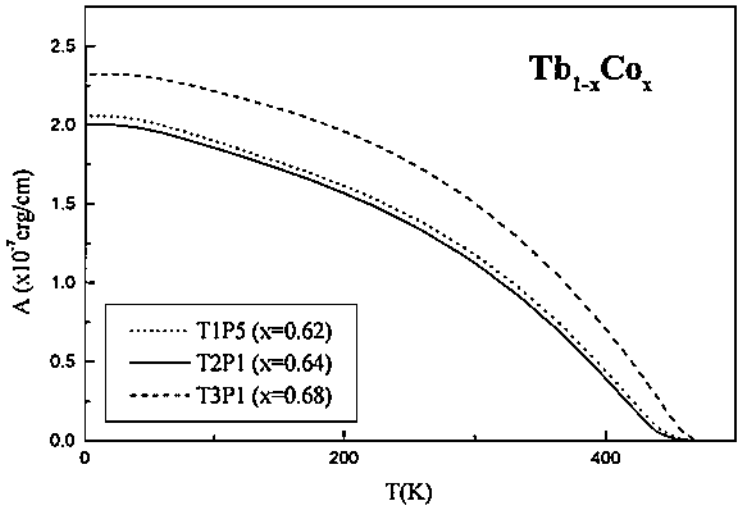


Figura 4.12. Dependência térmica da constante de troca *A* (T) de filmes simples amorfos de Tb-Co (deduzida do modelo de Hasegawa [HAS74]).

Tabela 4.3.5
Valores calculados de *A* para T=300K (a partir do modelo de Hasegawa).

Amostra	S_{Gd}	S_{Co}	J_{Gd-Gd} (10^{-16}erg)	J_{Gd-Co} (10^{-15}erg)	J_{Co-Co} (10^{-14}erg)	*A* (x10^{-7}erg/cm)
$Gd_{0.32}Co_{0.68}$ (G4P5)	3.5	0.73	0.1	-2.20	0.9	2.7±0.5
$Gd_{0.28}Co_{0.72}$ (G3P1)	3.5	0.63	1.0	-2.48	1.1	2.7±0.5
$Gd_{0.20}Co_{0.80}$ (G5P1)	3.5	0.74	1.0	-2.24	1.2	4.2±0.8

Tabela 4.3.6
Valores calculados de *A* para T=300K (a partir do modelo de Hasegawa).

Amostra	$\langle J_{Tb}\rangle$	S_{Co}	J_{Tb-Tb} (10^{-16}erg)	J_{Tb-Co} (10^{-15}erg)	J_{Co-Co} (10^{-14}erg)	A (x10^{-7}erg/cm)
$Tb_{0.38}Co_{0.62}$ (T1P5)	4.20	0.42	0.1	-2.29	1.5	1.2±0.2
$Tb_{0.36}Co_{0.64}$ (T2P1)	4.69	0.36	1.0	-2.11	1.8	1.1±0.2
$Tb_{0.32}Co_{0.68}$ (T3P1)	4.44	0.45	1.0	-2.24	1.3	1.5±0.3

A partir do modelo de Hasegawa, determinamos o comportamento térmico e composicional de A para filmes de R-Co (R=Gd, Tb). Pelos valores calculados a 300K (tabela 4.3.5 e 4.3.6), variando-se somente a composição, verificamos que A decresce com o aumento de R (Gd, Tb) na liga. Esse comportamento, que havia sido observado por Hasegawa em filmes de Gd-Co, foi confirmado para ligas de Tb-Co. Estudos recentes [HAS99, BEN99] utilizaram o modelo de Hasegawa para determinar a dependência térmica de A em filmes ternários do tipo $(Fe_{1-x}Gd_x)_{80}B_{20}$ e binários do tipo $Fe_{1-x}Er_x$, respectivamente. Nesses filmes também foi verificado o decréscimo de A com o aumento da quantidade de R. Com relação às condições de deposição, verificamos que, assim como o μ_{Co} aumenta com a variação de P_{Ar} de 1 para 5mTorr, o valor de A também aumenta. Os valores calculados de A para os filmes de Gd-Co e Tb-Co estão consistentes com os da literatura [RAA94, VIT88], levando-se em conta as diferenças em: composição, elementos que compõem os filmes e condições de deposição.

4.4. CONCLUSÕES

Através da análise de curvas de magnetização em função da temperatura de filmes amorfos de $Y_{0.33}Co_{0.67}$, produzidos em condições de deposição diferentes, verificamos a dependência de S_{Co} com a P_{Ar}, utilizada durante a deposição. Foi observado um aumento de 35.5% no μ_{Co} da amostra produzida a 5mTorr ($1.26\mu_B$) com relação à amostra produzida a 1mTorr ($0.93\mu_B$). Esse aumento foi atribuído à redução da densidade da amostra, que está associada à redução da transferência de carga do Y para o Co. Além dos valores diferentes do μ_{Co} das duas amostras de $Y_{0.33}Co_{0.67}$, as curvas de magnetização em função da temperatura apresentam comportamentos distintos. Esses comportamentos foram confirmados através de medidas magneto-ópticas.

A teoria de campo médio foi usada para explicar a dependência térmica da magnetização de filmes amorfos de Gd_xCo_{1-x}. Para simular as curvas de mxT utilizando a TCM, foi necessária a elaboração de um programa em C que

faz o ajuste dos pontos experimentais. O μ_{Co} extraído do ajuste foi comparado ao valor calculado, sendo que a concordância foi muito boa só para as amostras produzidas a P_{Ar} de 1mTorr. O μ_{Co} da amostra produzida a 5mTorr foi corrigido levando-se em conta o aumento de 35.5% observado em filmes de Y-Co, quando a P_{Ar} passa de 1 para 5mTorr. Essa correção no μ_{Co} calculado levou à concordância entre os valores calculado e experimental, para a amostra produzida a 5mTorr. Esse resultado confirma a hipótese de redução da densidade com o aumento da P_{Ar}. O valor de μ_{Co} calculado foi obtido da equação de Taylor e Gangulee [TAY76], que foi baseada no modelo de transferência de carga. As integrais de troca extraídas dos ajustes apresentaram os seguintes comportamentos: o valor de $J_{Gd\text{-}Gd}$ passou de 1 para 0.1×10^{-16} erg para as amostras produzidas a P_{Ar} de 1mTorr (G5P1, G3P1) e 5mTorr (G4P5), respectivamente; $J_{Gd\text{-}Co}$ ficou em torno de 2.2×10^{-15} erg, resultado que concorda com a literatura [HAS75] e o $J_{Co\text{-}Co}$ não pode ser definido exatamente, pois depende do conhecimento da T_C da amostra.

A análise de filmes amorfos de Tb_xCo_{1-x} em termos da TCM é dificultada pelo número maior de parâmetros a serem ajustados. Devido ao sperimagnetismo, o momento angular orbital total médio do Tb ($\langle J_{Tb}\rangle$) é menor que o valor para o íon livre (J_{Tb}=6). Sem o conhecimento prévio do $\langle J_{Tb}\rangle$, muitos pares de soluções [S_{Co}, $\langle J_{Tb}\rangle$] são possíveis. Como os dois parâmetros estão vinculados, a determinação do $\langle J_{Tb}\rangle$ para cada amostra só poderá ser feita através do conhecimento do S_{Co}. Para determinar o valor de S_{Co} em função da composição, duas equações foram usadas. A primeira é utilizada para filmes de Gd-Co (equação 4.3) e a segunda, com decréscimo mais rápido, é utilizada para filmes de R-Co, onde R≠Gd (equação 4.4). Resultados consistentes foram obtidos considerando-se $\langle J_{Tb}\rangle$ dependente da composição. A correção de 35.5% no μ_{Co} fez com que os valores de $J_{Tb\text{-}Co}$ ficassem em torno do mesmo valor para as três amostras. O valor de $J_{Tb\text{-}Co}$ = $-(2.2 \pm 0.3)\times10^{-15}$ erg extraído do ajuste foi obtido utilizando-se a equação 4.4 para o cálculo de S_{Co} em função da composição.

Neste ponto, é importante salientar que não existe na literatura nenhum estudo em filmes de Tb-Co que se assemelhe ao que foi feito nesta tese.

Verificamos a dependência do μ_{Co} com a P_{Ar} para filmes amorfos de R-Co (R=Y, Gd, Tb). Determinamos a dependência composicional do momento angular total médio do Tb ($\langle J_{Tb} \rangle$) para filmes amorfos de Tb-Co; o $\langle J_{Tb} \rangle$ aumenta com a quantidade de Tb na liga. Esse comportamento está relacionado à variação da distância interatômica entre os pares Tb-Tb com a densidade. Os poucos trabalhos que existem consideram o $\langle J_{Tb} \rangle$ independente da composição [UCH95].

A partir do modelo de Hasegawa, determinamos o comportamento térmico e composicional da constante de troca *A* para filmes de R-Co (R=Gd, Tb). Verificamos que *A* decresce com o aumento de R (Gd,Tb) na liga, e que, assim como o μ_{Co} aumenta com a variação de P_{Ar}, o valor de *A* também aumenta. Os valores calculados de *A* para os filmes de Gd-Co e Tb-Co estão consistentes com os da literatura [RAA94, VIT88], levando-se em conta as diferenças em: composição, elementos que compõem os filmes e condições de deposição.

Capítulo 5

BICAMADAS:Y-Co/R-Co (R=Gd, Tb)

5.1. INTRODUÇÃO

A formação de uma parede de domínios na região da interface da bicamada amorfa $YCo_2/GdCo_2$ vem sendo estudada há alguns anos [YON95,YON96]. Essa parede de domínios, que se forma durante uma transição ferri-ferromagnética, serve para minimizar a interação de troca entre os átomos de cobalto. Um modelo para analisar a parede de domínios em sistemas sanduíches à base de $GdCo_2$ foi proposto por Ndjaka [NDJ90] e Dieny [DIE90] e foi baseado nas energias Zeeman e de troca. Durante o mestrado, nós desenvolvemos um modelo, incluindo o termo de energia de anisotropia. Esse modelo foi posteriormente aperfeiçoado para levar em conta a forma não usual da parede de domínios, presente na interface da bicamada [YON97]. Detalhes do modelo podem ser vistos no capítulo 3 desta tese. Em geral, essa parede de domínios está localizada principalmente na camada de menor anisotropia, podendo ocupar boa parte dela.

Neste capítulo, estudaremos também o efeito da substituição de Gd por Tb sobre a parede domínios em filmes amorfos de Y-Co/Tb-Co. Comportamentos distintos devem ser observados, visto que filmes à base de Gd são ferrimagnéticos e filmes à base de Tb são sperimagnéticos. O grande interesse no estudo de filmes amorfos à base de Tb, iniciado na década de 70, com a descoberta da anisotropia perpendicular em filmes amorfos de Gd-Co [CHA73], está principalmente associado à sua utilização comercial como mídia de gravação magneto-óptica. Nesses materiais muitas das propriedades requeridas podem ser preenchidas através da utilização de concentrações relativas apropriadas [HAN89]. Em nosso caso, temos interesse em estudar a Física básica por trás das interações intercamadas, que levam à formação de paredes de domínios em sistemas na forma de bicamadas.

Iniciaremos o capítulo falando sobre a produção e caracterização de bicamadas amorfas de Y-Co/Gd-Co e Y-Co/Tb-Co. A partir de 1998, os filmes passaram a ser produzidos no novo equipamento de *sputtering*, adquirido pelo Laboratório de Materiais Magnéticos do IFUSP, e a caracterização magnética passou a ser feita no magnetômetro SQUID, adquirido pelo Depto.

de Física dos Materiais e Mecânica, no segundo semestre do mesmo ano. Os filmes à base de Tb foram produzidos e analisados nessas novas condições.

5.2. PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS

Os filmes simples Y-Co e Gd-Co e a bicamada Y-Co/Gd-Co, confeccionados no Laboratoire de Magnétisme Louis Néel (CNRS), foram produzidos por *DC triode sputtering*, a partir de alvos de YCo_2 e $GdCo_2$, sob uma pressão residual de argônio de 10^{-3}Torr. O substrato de vidro foi resfriado à temperatura do nitrogênio líquido, para garantir a amorficidade dos filmes. O filme foi protegido da oxidação por camadas de Si_3N_4 depositadas sobre o substrato e sobre o filme. Com o objetivo de se obter uma anisotropia no plano do filme, a bicamada foi submetida a um campo magnético de 300 Oe, durante a deposição. As amostras Y6P1, G7P1 e YG8P1 foram produzidas nessas condições e caracterizadas magneticamente em um Magnetômetro de Amostra Vibrante (MAV).

A partir de 1998, com a aquisição de um equipamento de sputtering, filmes de melhor qualidade e com boa reprodutibilidade puderam ser confeccionados. As condições de produção das bicamadas de Y-Co/Tb-Co são as mesmas descritas no capítulo 4 para os filmes simples. É importante salientar que o substrato de vidro possibilita a medida de efeito Kerr tanto do lado onde o filme está depositado como do lado do substrato. Essa característica do MEK-bt é muito importante na caracterização das bicamadas, pois possibilita a análise dos dois lados do filme. A informação obtida com o MEK-bt é praticamente só da camada mais próxima, porque a profundidade de penetração da luz, para a reflexão, é de algumas centenas de Å [YON95].

5.3. CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS

5.3.1. DETERMINAÇÃO DE ESPESSURA E COMPOSIÇÃO

Os resultados de espessura e composição das amostras Y6P1 (Y-Co), G7P1 (Gd-Co), YG8P1 (Y-Co/Gd-Co) e YT1P5 (Y-Co/Tb-Co), obtidos a partir de simulações de espectros de RBS, estão na tabela 5.1. As espessuras foram

determinadas utilizando-se como densidade (ρ_{amorfo}), o valor reduzido em 8% com relação ao material cristalino [CAR74, GIV79]. No capítulo 4, durante a análise dos filmes simples, observamos diferenças nas densidades, de acordo com a P_{Ar} utilizada durante a deposição. Como não é possível definir qual a redução relativa a cada amostra, o procedimento será adotar a redução de 8% para todas as amostras. As diferenças serão incorporadas na incerteza associada à espessura (4%), devido à incerteza na densidade.

Tabela 5.1.
Resultados de espessura e composição obtidos por RBS.

Amostra	Composição	ρ_{amorfo} ($x10^{22}$atom/cm^3)	Espessura (nm)
Y6P1	$Y_{0.33}Co_{0.67}$	5.94	345
G7P1	$Gd_{0.29}Co_{0.71}$	5.12	355
YG8P1	$Y_{0.32}Co_{0.68}/Gd_{0.31}Co_{0.69}$	5.94/5.12	115/118
YT1P5	$Y_{0.33}Co_{0.67}/Tb_{0.38}Co_{0.62}$	5.94/4.98	108/153

5.3.2. CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA E MAGNETO-ÓPTICA

5.3.2.1. BICAMADA Y-Co/Gd-Co

As curvas de histerese magneto-ópticas dos dois lados da bicamada (Figura 5.1), para diferentes valores de temperatura, revelaram a presença de uma transição ferri-ferromagnética que acontece na camada Gd-Co, para T=300K. Nessa temperatura, a soma dos momentos do Co na bicamada é maior que a do Gd e, portanto, antes da transição, o momento do Co estará alinhado ao campo e o do Gd estará invertido. Após a transição na qual a camada Gd-Co inverte de sentido, o Gd passa a se alinhar ao campo, e o Co, da camada Gd-Co, fica invertido. Para baixas temperaturas, devido à forte dependência do momento do Gd com a temperatura, foi observado que o Gd se alinha ao campo e a transição passa a acontecer na camada Y-Co. A partir dessas curvas, foram extraídos os valores de campo de transição (H_t) da bicamada; os resultados estão na tabela 5.2.

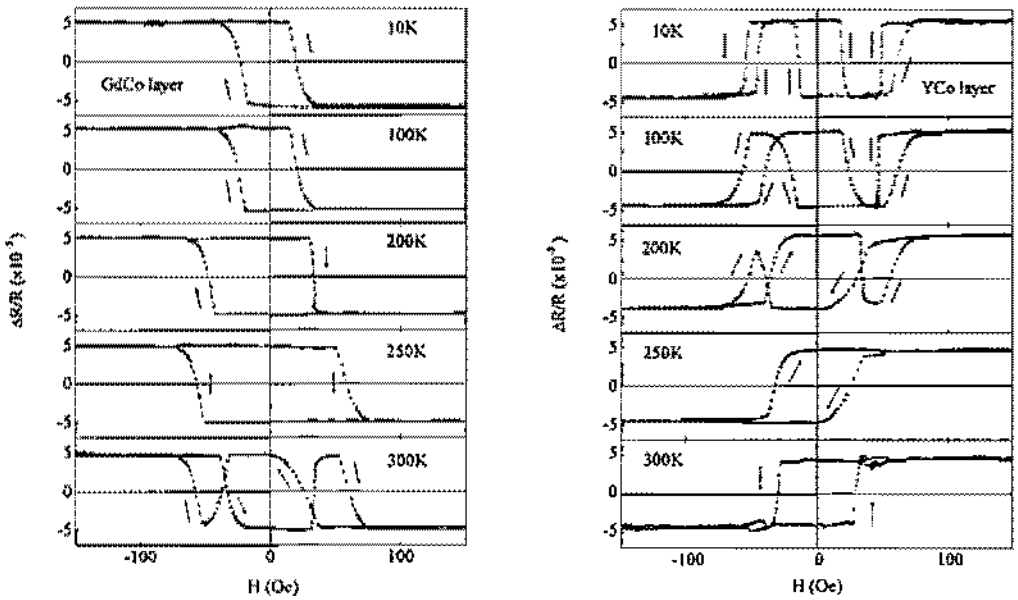


Figura 5.1. Dependência térmica das curvas de histerese magneto-ópticas do lado do Gd-Co e do lado do Y-Co da bicamada. O eixo vertical corresponde à variação relativa da refletividade e as setas indicam o sentido das curvas [YON97].

A partir das curvas de susceptibilidade transversal magneto-óptica (χ_t) em função do campo contínuo (ANEXO 1), onde H_{dc} é aplicado na direção do eixo duro da amostra, nós extraímos os valores de campo de anisotropia (H_K) de cada camada da bicamada, lembrando que o máximo na curva de χ_t x H_{dc} corresponde ao ponto $H_{dc}=H_K$ [YON95]. Os resultados, para a faixa de temperaturas 25-300K, estão na tabela 5.2. Para as medidas de susceptibilidade transversal magneto-óptica foram feitas algumas modificações no MEK-bt. Foi introduzido um campo alternado H_{ac} perpendicular ao campo contínuo H_{dc}. Esse campo alternado é gerado por uma bobina de Helmholtz enrolada na capa externa do criostato. Nessa nova configuração, o laser trabalha em contínuo e o *lock-in* é sincronizado com o campo alternado. O campo H_{ac}, aplicado na direção do eixo fácil da amostra, é da ordem de 10Oe para uma freqüência de 40Hz. Utilizando o MEK-bt na nova configuração, obtivemos as curvas de χ_txH_{dc} dos dois lados de cada filme (Figura 5.2), para diferentes valores de temperatura.

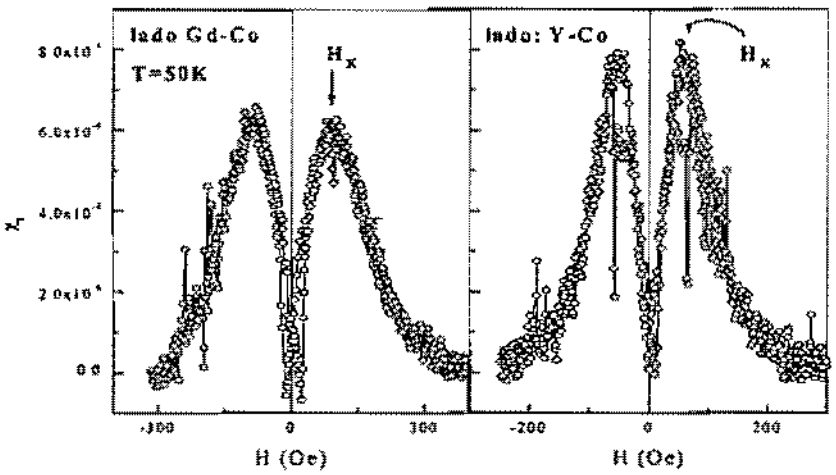


Figura 5.2: Curvas de $\chi_t x H_{dc}$ dos dois lados da bicamada Y-Co/Gd-Co, para T=50K.

A caracterização magnética volumétrica dos filmes em função da temperatura (T≤300K) foi feita com o MAV. O campo magnético ($H_{máx}$=90kOe) é gerado por uma bobina supercondutora, que permite variações de temperatura entre 4.2K e 300K.

O comportamento observado, no caso da amostra $Y_{0.33}Co_{0.67}$ (amostra Y6P1), foi o decréscimo de M_s com o aumento da temperatura (Figura 5.3). Decréscimo ainda maior foi observado no caso da amostra $Gd_{0.29}Co_{0.71}$ (amostra G7P1), devido à forte dependência do momento do Gd com a temperatura e ao ferrimagnetismo da liga. Das medidas de MxH, nós extraímos os valores de M_s de cada filme simples para a faixa de temperatura 25 a 300K. Os resultados, já descontado o sinal do porta-amostra, estão na tabela 5.2.

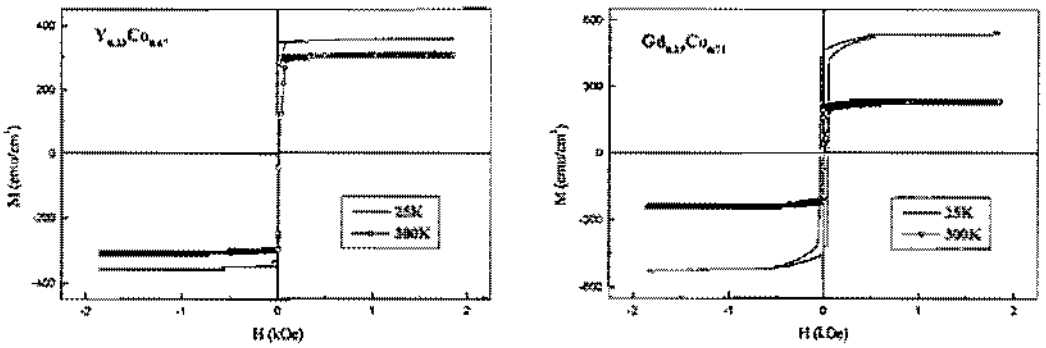


Figura 5.3: Curvas de MxH dos filmes simples $Y_{0.33}Co_{0.67}$ e $Gd_{0.29}Co_{0.71}$.

No caso da bicamada (Figura 5.4), como já foi dito anteriormente, antes da transição (H_t), o sistema se comporta como um ferrimagneto macroscópico, com a magnetização resultante da camada Y-Co alinhada ao campo e a magnetização da camada Gd-Co antiparalela, a 300K. À medida que a temperatura decresce, a magnetização da camada Gd-Co aumenta até um ponto em que as magnetizações das duas camadas se cancelam (T=275K). Esse cancelamento é caracterizado por um patamar (m=0), na região central da curva de mxH. Para temperaturas menores que 275K, a magnetização da camada Gd-Co passa a se alinhar ao campo e a da camada Y-Co fica invertida.

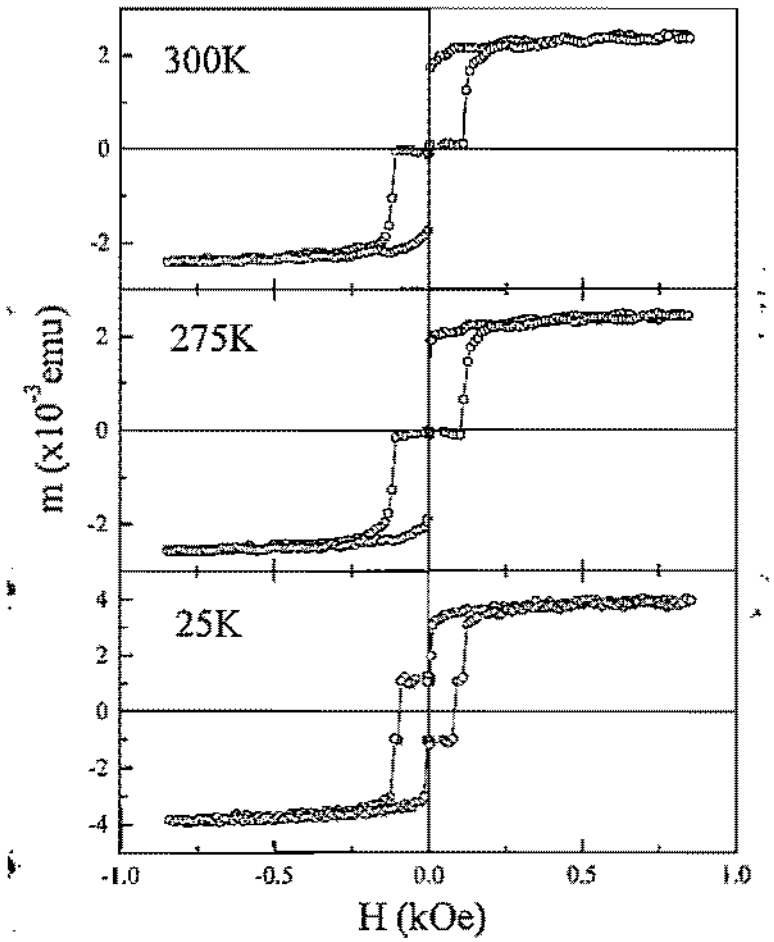


Figura 5.4. Curvas de mxH (MAV) da bicamada Y-Co/Gd-Co para a faixa de temperatura 25 a 300K.

Análise dos dados em termos do Modelo teórico

Do desenvolvimento do modelo teórico para descrever a parede de domínios, resultaram três equações interdependentes, relacionando posição relativa da parede (Δ), espessura da parede (δ) e constante de troca para os pares Co-Co (*A*). A primeira equação, a partir da qual podemos extrair o valor de Δ, é dada pela seguinte expressão:

$$\cos(\pi\Delta) = \frac{-(M_a + M_b)H \pm \sqrt{[(M_a + M_b)H]^2 + 2(M_a H_a - M_b H_b)\left[(M_a - M_b)H + \left(\frac{M_a H_a - M_b H_b}{2}\right)\right]}}{(M_a H_a - M_b H_b)} \equiv f$$

(5.1)

A segunda equação, a partir da qual podemos extrair o valor de δ, é escrita como:

$$\delta = \pi(2A)^{1/2}\left[2M_a H\left(\Delta - \frac{\sin(\pi\Delta)}{\pi}\right) + \frac{M_a H_a}{2}\left(\Delta - \frac{\sin(2\pi\Delta)}{2\pi}\right) + 2M_b H\left((1-\Delta) - \frac{\sin(\pi\Delta)}{\pi}\right) + \frac{M_b H_b}{2}\left((1-\Delta) + \frac{\sin(2\pi\Delta)}{2\pi}\right)\right]^{-\frac{1}{2}}$$

(5.2)

E a terceira equação, que fornece o valor de *A*, é dada por:

$$\frac{A\pi^2}{\delta_t} - H_t(M_b\, e_b) = 0 \qquad (5.3)$$

Substituindo os valores da magnetização de saturação (M_a, M_b) dos filmes simples Y-Co e Gd-Co, do campo de anisotropia (H_a, H_b) e do campo de transição (H_t) da bicamada, nas três equações do nosso modelo, determinamos o comportamento térmico da posição relativa da parede de domínios (Δ), da espessura total da parede (δ) e da constante de troca para os pares atômicos Co-Co (*A*). A parede de domínios permanece sempre junto à interface da bicamada, parcialmente localizada nas duas camadas (0<Δ<1). Os resultados, obtidos com o modelo, estão na tabela 5.2.

Tabela 5.2.
Parâmetros experimentais extraídos de medidas magnéticas (MAV) e MO (MEK-bt) e valores calculados de δ, Δ e A.

T (K)	$M_{Y\text{-}Co}$† (emu/cm³)	$M_{Gd\text{-}Co}$† (emu/cm³)	$H_{Y\text{-}Co}$* (Oe)	$H_{Gd\text{-}Co}$* (Oe)	H_t* (Oe)	Δ+ (%YCo)	δ+ (nm)	A+ (10^{-7}erg/cm)
25	346	539	57	83	54	64±7	143±25	3.1±1.4
50	345	514	57	90	53	64±7	141±25	3.0±1.4
75	343	481	54	90	53	63±8	146±27	3.1±1.4
100	340	438	53	85	51	61±8	150±30	3.0±1.4
125	337	413	49	88	52	61±8	155±31	3.1±1.4
150	332	385	46	84	50	60±8	159±33	3.1±1.4
175	332	355	46	85	45	58±9	156±34	2.7±1.5
200	327	326	45	91	45	58±9	160±36	2.7±1.5
225	321	303	44	93	42	57±9	157±36	2.5±1.3
250	314	283	39	96	37	59±9	154±33	2.1±0.9
275	306	257	39	97	36	57±10	156±36	2.0±0.9
300	297	235	38	97	47	54±8	149±35	2.0±0.9

†A incerteza associada às medidas de $M_{Y\text{-}Co}$ e $M_{Gd\text{-}Co}$ (20%) foi calculada levando-se em conta uma incerteza de 15% na área da amostra, 10% na medida de momento (MAV) e 4% na medida de espessura, devido à incerteza na densidade da amostra.
*Assim, como no caso do momento, a incerteza associada aos valores de $H_{Y\text{-}Co}$, $H_{Gd\text{-}Co}$ e H_t, está em torno de 10%.
+Com relação aos valores de Δ, δ_t e A, as incertezas associadas foram obtidas numericamente, variando-se os parâmetros utilizados no cálculo entre os valores máximo e mínimo, de acordo com a incerteza de cada um.

Observamos uma tendência da parede de domínios (Δ) permanecer na mesma posição, ou seja, cerca de 60% da parede está localizada na camada Y-Co. A espessura da parede de domínios (δ) permanece aproximadamente constante, em torno de 150nm (~ 64% da espessura total do filme), e a constante de troca (A) decresce suavemente com a temperatura. Esse decréscimo da constante de troca é consistente com o decréscimo da magnetização das duas camadas. À temperatura ambiente, a constante de troca A apresentou o valor $(2.0\pm0.9)\times10^{-7}$ erg/cm, que está em excelente concordância com a literatura [RAA94], cujo valor para uma amostra de $Gd_{21.2}Co_{78.8}$ foi de $(2\pm1)\times10^{-7}$ erg/cm.

5.3.2.2. BICAMADA Y-Co/Tb-Co

A principal diferença entre os filmes de Gd-Co e de Tb-Co é o tipo de magnetismo que eles apresentam: o primeiro é ferrimagnético e o segundo é sperimagnético. Como conseqüência, o filme de Tb-Co apresenta um campo de anisotropia muito maior (~800Oe) que o observado no filme de Gd-Co (~97Oe), à temperatura ambiente. A determinação do campo de anisotropia para a bicamada à base de Tb não pode ser feita através da medida de susceptibilidade transversal magneto-óptica (χ_t), como no caso anterior. O campo alternado máximo não foi suficiente para possibilitar esse tipo de medida. A solução encontrada foi extrair o valor de H_K das curvas de histerese MO, com o campo magnético aplicado na direção do eixo fácil e na direção do eixo duro, de cada lado da amostra. O efeito da alta anisotropia sobre a bicamada é uma parede de domínios quase que totalmente localizada na camada Y-Co. Esse comportamento foi verificado, testando-se o modelo para a parede de domínios, quando o campo de anisotropia de uma das camadas é muito maior (~1000Oe) que o da outra (~60Oe). O resultado foi uma parede de domínios quase que totalmente (~95%) localizada na camada de menor anisotropia.

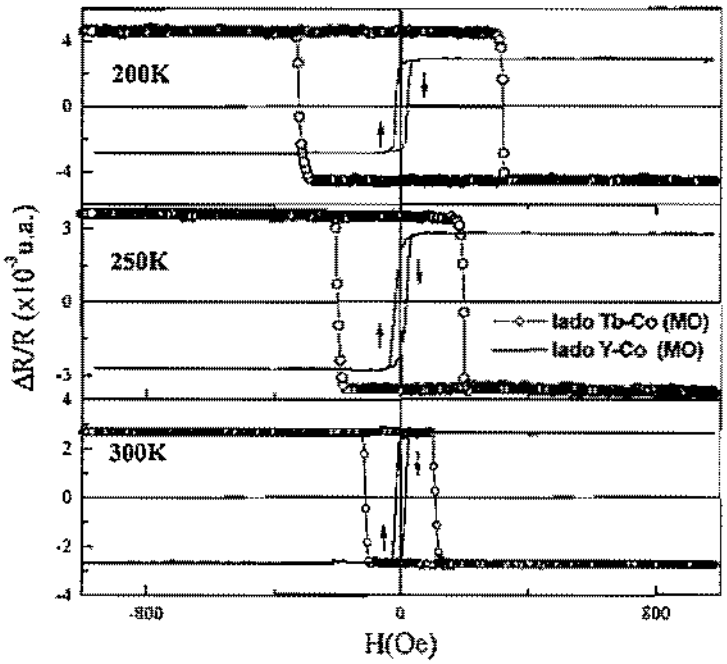


Figura 5.5. Curvas de histerese MO do lado do Tb-Co e do lado do Y-Co da bicamada, normalizadas pelo momento magnético dos filmes simples.

A figura 5.5 corresponde a curvas de histerese MO dos dois lados do filme, normalizadas pelo momento magnético dos filmes simples correspondentes. A normalização das curvas MO consiste em fazer com que o valor dado no eixo y seja numericamente igual ao momento magnético (em emu) do filme simples correspondente, com área S=0.595cm^2. A transição ferri-ferromagnética na bicamada Y-Co/Tb-Co não é tão evidente como na bicamada à base de Gd. A curva de histerese MO (figura 5.5) não apresenta a dupla inversão, que normalmente é encontrada em bicamadas à base de Gd, sendo uma devido ao campo coercivo (H_C) e a outra devido ao campo de transição (H_t). A única indicação de transição é dada pelo caminho invertido da curva de histerese MO da camada Y-Co, como se essa camada possuísse uma coercividade negativa. Neste caso, os campos de transição e coercivo, na camada Y-Co, são coincidentes. Na figura 5.5, o caminho invertido da curva de histerese MO do lado do Y-Co é indicado por setas. Na mesma figura, as curvas de histerese MO da camada Tb-Co estão representadas por círculos abertos. As curvas invertidas do lado Tb-Co indicam que o momento

magnético do Co está alinhado antiparalelamente à direção do campo magnético aplicado.

As curvas de mxH, obtidas no SQUID (figura 5.6), apresentam um estreitamento na região de campos baixos, que pode ser explicado como uma combinação de baixo H_t (~15Oe) da camada Y-Co e alto H_c (~110Oe à 300K) da camada Tb-Co. A comparação entre as curvas MO (figura 5.5) de cada lado da bicamada e as curvas de mxH (figura 5.6) da bicamada nos levaram a esta conclusão. No entanto, é interessante notar que os formatos das curvas são diferentes, ou seja, as curvas de mxH são arredondadas, na região de campos baixos, e as curvas MO são mais quadradas. Essa diferença será explicada mais adiante, na análise da parede de domínios, que se forma na interface da bicamada.

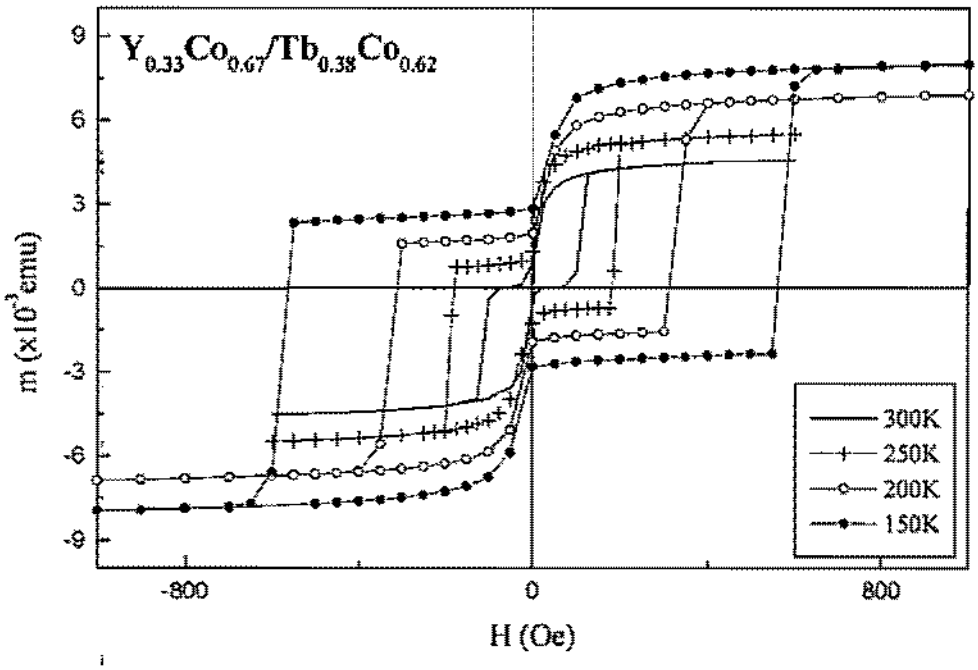


Figura 5.6. Curvas de histerese da bicamada Y-Co/Tb-Co, para a faixa de temperaturas 150-300K. Medidas efetuadas no SQUID, com o campo magnético aplicado na direção do eixo fácil da amostra.

Para obter informações à respeito da parede de domínios, as curvas de histerese MO, obtidas no MEK-bt para cada camada, foram normalizadas pelo respectivo momento magnético e a curva da camada Y-Co foi subtraída da

curva da camada Tb-Co. A normalização das curvas MO deve levar em conta alguns aspectos relacionados aos elementos que compõem o filme. Como mencionado anteriormente, o sinal MO é causado, principalmente, pelo momento magnético do cobalto. Isto explica o comportamento saturado da curva MO do lado do Tb-Co, mesmo a baixos campos aplicados (< 1kOe). Apesar do Co se alinhar facilmente ao campo aplicado, o mesmo não acontece com o Tb. A curva de histerese magnética (SQUID) de um filme simples de Tb-Co, representada por cruzes na figura 5.7, apresentou um comportamento completamente diferente. A 300K, o momento magnético do filme simples de Tb-Co, obtido no SQUID, variou de 1.66×10^{-3} a 2.67×10^{-3} emu, para campos aplicados de 1 a 40 kOe. O valor de momento magnético a ser utilizado na normalização deve corresponder à situação onde os dois elementos possuam o mesmo comportamento. Supondo que, a 40 kOe, o momento do filme de Tb-Co esteja próximo à saturação, ou seja, que ambos possuam o mesmo comportamento, ele corresponderá ao valor a ser usado na normalização.

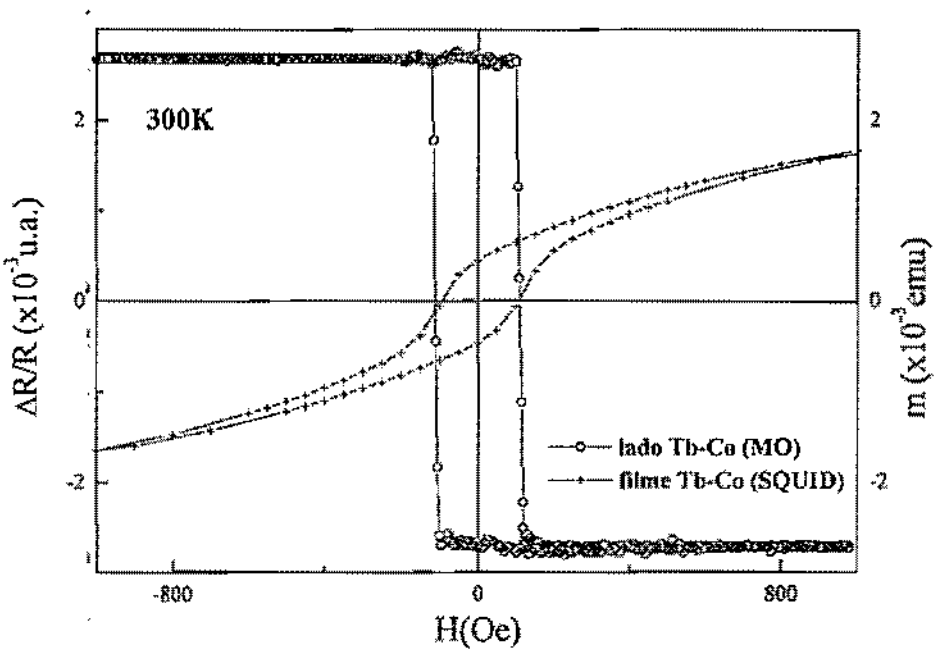


Figura 5.7. Curva de histerese MO do lado do Tb-Co da bicamada Y-Co/Tb-Co comparada à curva de histerese (SQUID) do filme simples Tb-Co. A curva MO foi normalizada pelo momento magnético, a 40kOe, do filme simples de Tb-Co.

Na figura 5.7, comparamos a curva MO do lado do Tb-Co da bicamada, normalizada pelo momento magnético (H=40kOe) do filme simples de Tb-Co, com a sua curva de histerese magnética (SQUID).

Como as três amostras, dois filmes simples e uma bicamada possuíam a mesma área ($S=0.595cm^2$), a normalizacão e a subtração das curvas normalizadas puderam ser feitas de maneira direta. À exceção da medida a 300K da amostra Tb-Co, cujo valor de momento magnético foi extraído da curva de mxT (amostra T1P5 - capítulo 4), todos os outros valores foram extraídos das curvas de histerese magnéticas (SQUID) dos filmes simples (figura 5.8).

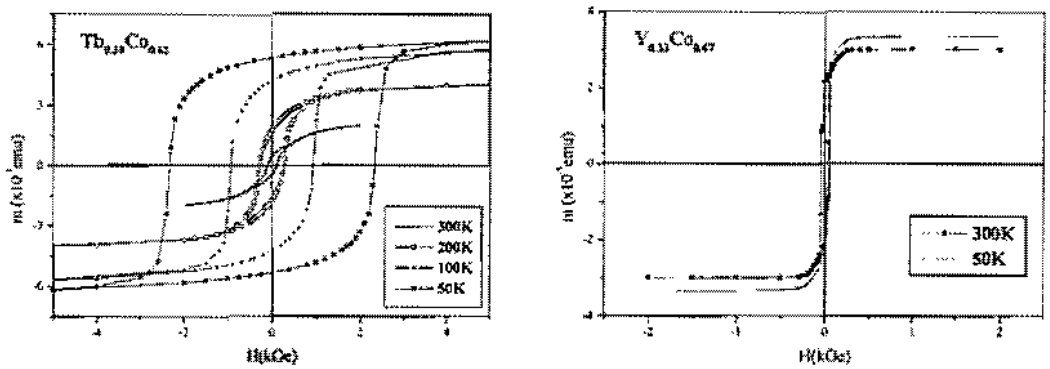


Figura 5.8 Curvas de histerese dos filmes simples de Tb-Co e Y-Co, em diferentes temperaturas. Medidas feitas no SQUID.

Diferentemente do que acontece com o Gd-Co, a coercividade do Tb-Co aumenta muito com o decréscimo da temperatura (figura 5.8). A coercividade passa de ~110 Oe a 300K para ~6 kOe a 10K. Esse aumento na coercividade é atribuído ao aumento da anisotropia local com a redução da temperatura. De acordo com Mimura *et al.* [MIM78], existem diferenças entre os comportamentos térmicos de H_C de filmes amorfos de Gd-Fe e outros R-Fe, que possuem momento angular orbital. A dependência térmica, no caso do Gd-Fe, parece estar associada somente ao inverso da magnitude da magnetização de saturação, visto que, a curva de H_C em função da temperatura apresenta um máximo em torno da temperatura de compensação (M_S~0). Filmes de Tb-Fe e Dy-Fe, por outro lado, mostraram

um comportamento de ativação térmica, para temperaturas baixas (<10K). O aumento de H_C com a redução da temperatura em filmes amorfos de $TbFe_2$ foi observado pela primeira vez por Clark [CLA73] e, posteriormente, considerado por Rhyne *et al.* [RHY74b] como sendo um processo ativado termicamente. O aumento de H_C com a redução da temperatura ocorre independentemente da magnitude da magnetização de saturação. A conclusão é que a anisotropia local é responsável por esse comportamento de ativação térmica, característico de filmes amorfos de R-Fe, onde R possui momento angular orbital.

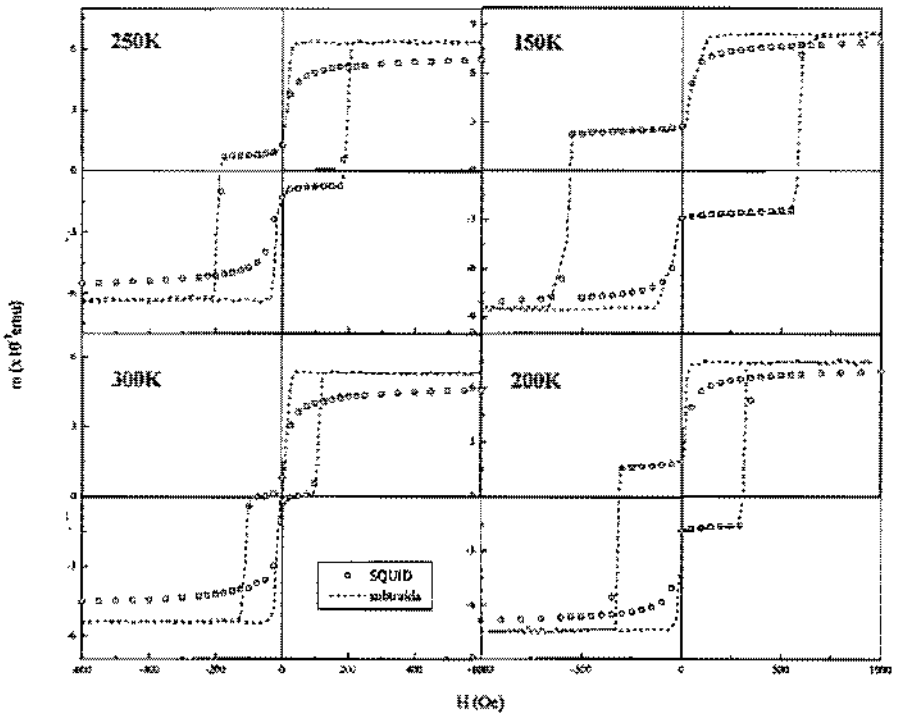


Figura 5.9. Curvas de histerese (SQUID) comparadas às curvas MO subtraídas.

As curvas subtraídas, para a faixa de temperaturas 150-300K, foram comparadas às respectivas curvas de histerese magnéticas (SQUID). Para a análise da curva subtraída, linha tracejada na figura 5.9, precisamos diferenciar duas principais regiões: 1º e 4º quadrantes. No 4º quadrante, os momentos magnéticos do cobalto das duas camadas estão paralelos. Enquanto que no 1º quadrante, eles estão invertidos, implicando na existência

de uma grande parede de domínios na camada Y-Co. No 4º quadrante, observa-se uma perfeita concordância entre as medidas do SQUID e as curvas MO subtraídas. Essa concordância indica que as normalizações são satisfatórias. A mesma concordância não foi alcançada no 1º quadrante. É interessante notar que as curvas subtraídas são mais quadradas que as curvas magnéticas (SQUID). Como as medidas MO correspondem somente à contribuição magnética superficial, é necessário incluir na análise um termo devido à grande parede de domínios existente na região central do sistema. A perda de momento magnético devido à parede de domínios é dada pela expressão:

$$\Delta m = M_b \, \delta \, S \tag{5.4}$$

onde M_b é a magnetização de saturação de um filme simples de Y-Co e S é a área da amostra. Para a espessura da parede de domínios δ, nós usamos uma expressão obtida a partir da expressão (5.2) do nosso modelo, onde assumimos que a parede de domínios está totalmente localizada na camada Y-Co. O comportamento de δ com o campo aplicado será dado pela seguinte expressão:

$$\delta = \pi \sqrt{\left(\frac{A}{M_b \, (H + H_b/4)} \right)} \tag{5.5}$$

onde *A* é a constante de troca para os pares atômicos Co-Co e H_b é o campo de anisotropia da camada Y-Co. Os valores usados para M_b e H_b, para a faixa de temperatura 150 - 300K, estão na tabela 5.3, juntamente com os valores calculados de δ_t (δ para $H=H_t$) e *A*.

Tabela 5.3.
Parâmetros experimentais extraídos de medidas magnéticas (SQUID) e MO (MEK-bt) e valores calculados de δ_t e A.

T (K)	M_b† (emu/cm³)	H_b* (Oe)	δ_t+ (nm)	A+ (10^{-7}erg/cm)
150	448±63	65±7	90±15	1.8±0.5
200	439±61	60±6	96±14	1.8±0.5
250	427±60	60±6	93±15	1.6±0.5
300	412±58	59±6	89±14	1.4±0.5

†A incerteza, associada às medidas de M_b (14%), foi calculada, levando-se em conta uma incerteza de 10% na área da amostra, 5% na medida de momento (SQUID) e 4% na medida de espessura, devido à incerteza na densidade da amostra.
*Assim, como no caso da bicamada à base de Gd, a incerteza associada aos valores de H_b, está em torno de 10%.
+Com relação aos valores de δ_t e A, as incertezas associadas foram obtidas numericamente, variando-se os parâmetros utilizados no cálculo, entre os valores máximo e mínimo, de acordo com a incerteza de cada um.

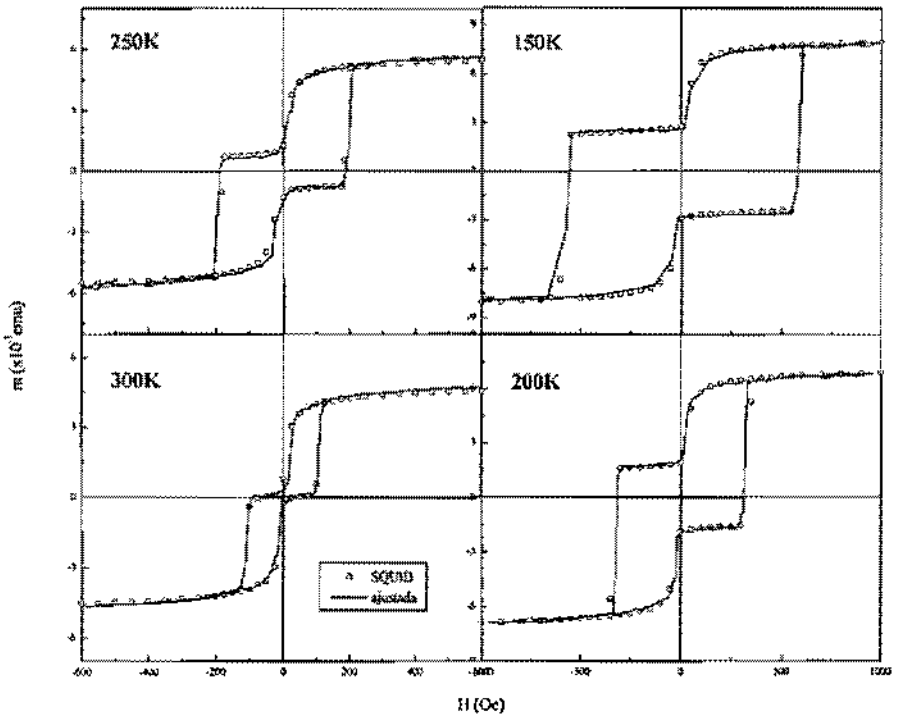


Figura 5.10. Curvas de histerese (SQUID) comparadas às curvas MO ajustadas, descontando-se a parede de domínios.

As curvas ajustadas, levando-se em conta a parede de domínios, linha sólida na figura 5.10, ajustam perfeitamente os dados experimentais do SQUID. Como conseqüência, determinamos a dependência de δ com o campo magnético aplicado e o valor da constante de troca (A), para as diferentes temperaturas. Os valores de A variaram de 1.8×10^{-7} erg/cm a 150K para 1.4×10^{-7} erg/cm a 300K e δ, para todas as temperaturas, diminuiu de ~100nm ($H=H_t$~15Oe) para ~20nm (H=1kOe). A 300 K, o valor da constante de troca A é cerca de 30% menor que o obtido para a bicamada à base de Gd. Naquele caso, a parede de domínios estava parcialmente localizada nas duas camadas da bicamada. Considerando as diferenças entre composição e tipo de elemento de terra-rara envolvido, uma boa concordância com a literatura foi obtida [RAA94].

5.4. CONCLUSÕES

Neste capítulo, estudamos paredes de domínios que se formam em sistemas amorfos na forma de bicamadas. Para o caso particular de bicamadas amorfas de Y-Co/Gd-Co, desenvolvemos um modelo teórico baseado nas energias de troca, Zeeman e de anisotropia. A partir de parâmetros experimentais como: magnetização de saturação (M_S) dos filmes simples de Y-Co e Gd-Co, de campos de anisotropia (H_K) e de transição (H_t) da bicamada, determinamos o comportamento em função da temperatura da posição relativa da parede de domínios (Δ), da espessura total da parede (δ) e da constante de troca para os pares atômicos Co-Co (A).

Verificamos que, para a faixa de temperaturas 25 a 300K, cerca de 60% da parede de domínos fica localizada na camada Y-Co, que a espessura da parede de domínios (δ) permanece aproximadamente constante, em torno de 150nm (~ 64% da espessura total do filme), e que a constante de troca (A) decresce suavemente com a temperatura. O valor de A $(2.0\pm0.9)\times10^{-7}$ erg/cm), a 300K, apresentou excelente concordância com a literatura [RAA94], cujo valor para uma amostra de $Gd_{21.2}Co_{78.8}$ foi de $(2\pm1)\times10^{-7}$ erg/cm.

Filmes amorfos à base de Tb são sperimagnéticos e apresentam, como principal característica, um campo de anisotropia muito maior que o observado em filmes à base de Gd. O efeito da alta anisotropia sobre a bicamada Y-Co/Tb-Co é uma parede de domínios quase que totalmente localizada na camada Y-Co. Outra característica do filme analisado é que o campo de transição (H_t) e o campo coercivo (H_c) coincidem, de forma que a transição ferri-ferromagnética na bicamada Y-Co/Tb-Co não é tão evidente como na bicamada à base de Gd. Quando H_t é maior que H_C, a curva de histerese MO (da camada que inverte na transição) apresenta uma dupla inversão, sendo uma, devido ao H_C e, a outra, devido ao H_t. Quando H_t é igual a H_C, a única indicação de transição é dada pelo caminho invertido da curva de histerese MO (da camada que inverte), como se essa camada possuísse uma coercividade negativa.

Para obter informações a respeito da parede de domínios, as curvas de histerese MO, obtidas no MEK-bt para cada camada, foram normalizadas e subtraídas uma da outra. A concordância entre a curva subtraída e a curva de mxH (SQUID) só foi alcançada quando descontamos da curva subtraída a perda de momento magnético devido à parede de domínios ($\Delta m = M_b\ \delta\ S$). Para a espessura da parede de domínios δ, usamos uma expressão obtida a partir da expressão (5.2) do nosso modelo, onde assumimos que a parede de domínios estava totalmente localizada na camada Y-Co.

A partir desses ajustes, determinamos a dependência de δ com o campo magnético aplicado e o valor da constante de troca (A), para as diferentes temperaturas. Os valores de A variaram de 1.8×10^{-7} erg/cm a 150K para 1.4×10^{-7} erg/cm a 300K e $\delta \sim 100$nm, no campo de transição (H_t). Considerando as diferenças entre composição e tipo de elemento de terra-rara envolvido, uma boa concordância com a literatura foi obtida [RAA94].

Capítulo 6

LIGAS TERNÁRIAS: Gd-FeCo, Tb-FeCo, Gd-FeCo/Tb-FeCo

6.1. INTRODUÇÃO

Após a descoberta da anisotropia perpendicular em filmes amorfos de Gd-Co [CHA73] em 1973, diversos estudos foram feitos em ligas de R-M. O principal interesse nessas ligas estava associado à sua potencial utilização tecnológica. A utilização em gravação magneto-óptica implica em uma série de requisitos que os filmes devem preencher: magnetização, temperatura de Curie, temperatura de compensação, anisotropia uniaxial, coercividade e rotação Kerr. Nesse sentido, excelentes propriedades foram encontradas [SUN76] em filmes de Tb-FeCo como mídia de gravação MO. Esses filmes são agora usados comercialmente [UCH95b].

Nas condições em que nossos filmes foram produzidos, tanto os filmes de Gd-Co como os de Tb-Co apresentaram forte anisotropia planar. Sabendo que filmes de Tb-Fe apresentam facilmente anisotropia perpendicular, o passo seguinte no nosso estudo foi a introdução de Fe na composição dos filmes. Nessas condições, foram produzidos filmes de Tb-FeCo, que apresentaram anisotropia perpendicular como era esperado e, filmes de Gd-FeCo, que apresentaram anisotropia planar. Neste capítulo, daremos uma introdução ao estudo de filmes de Gd-FeCo, Tb-FeCo e a bicamadas Gd-FeCo/Tb-FeCo. Utilizaremos a TCM para analisar as curvas de magnetização em função da temperatura dos filmes simples à base de Gd e à base de Tb. A caracterização magnética (MAV) e magneto-óptica (MEK-bt) compreende somente as medidas à temperatura ambiente. A caracterização magneto-óptica utilizou dois dos três tipos de efeitos Kerr existentes: Efeito Kerr Transversal e Efeito Kerr Polar, para filmes com anisotropia planar e perpendicular, respectivamente.

6.2. PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS

Os filmes foram confeccionados por *sputtering*, com a utilização dos quatro canhões de *magnetron sputtering* disponíveis, para cada seqüência de deposição. Foram utilizados alvos de Si, FeCo, Gd e Tb com mais de 99.8% de pureza, para a confecção dos filmes de Gd-FeCo, Tb-FeCo e Gd-FeCo/Tb-FeCo. O alvo composto de FeCo, com 15% de Co (% atômica), foi fornecido pela Alfa Aesar, e o alvo com 10% de Co (% atômica) foi produzido no Laboratoire Louis Nèel. Como já foi mencionado anteriormente, o porta-substrato possibilita a confecção simultânea de três amostras, sendo uma bicamada e dois filmes simples de mesma composição dos componentes da bicamada, sobre vidro e também sobre silício. As condições de deposição foram as mesmas das amostras binárias (capítulo 4). Sendo que todas as amostras ternárias foram produzidas à P_{Ar} de 5mTorr.

Com relação ao código das amostras, vamos acrescentar o dígito "3" no começo, para diferenciar os filmes ternários dos binários.

6.3. CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS

6.3.1. DETERMINAÇÃO DE ESPESSURA E COMPOSIÇÃO

Como a técnica do RBS não consegue distingüir o Fe do Co, as simulações foram feitas considerando a liga FeCo como sendo Fe puro. Essa simplificação acarreta uma incerteza maior na determinação da espessura e composição, no caso das amostras ternárias com relação às binárias. Os resultados de espessura e composição desses filmes estão na tabela 6.1.

Apesar de não terem sido definidos, na tabela 6.1, as bicamadas 3GT1P5 e 3GT3P5 apresentam a mesma composição e espessura por camada dos respectivos filmes simples.

Tabela 6.1.
Resultados de espessura e composição obtidos por RBS.

Amostra	Composição	ρ_{amorfo} ($x10^{22}$atom/cm^3)	Espessura (nm)	N ($x10^{16}$atom/cm^2)
3GT1P5	Gd-FeCo/Tb-FeCo			
3G1P5	$Gd_{0.24}(FeCo)_{0.76}$	5.37	108	0.58
3T1P5	$Tb_{0.25}(FeCo)_{0.75}$	5.41	97	0.53
3G2P5†	$Gd_{0.21}(FeCo)_{0.79}$	5.71	105	0.60
3T2P5†	$Tb_{0.20}(FeCo)_{0.80}$	5.76	108	0.62
3GT3P5†	Gd-FeCo/Tb-FeCo			
3G3P5†	$Gd_{0.24}(FeCo)_{0.76}$	5.37	115	0.62
3T3P5†	$Tb_{0.22}(FeCo)_{0.78}$	5.41	120	0.65

†Filmes depositados com o alvo de FeCo (10% atm de Co).

6.3.2. DEPENDÊNCIA TÉRMICA DA MAGNETIZAÇÃO DE FILMES SIMPLES DE R-FeCo (R=Gd, Tb)

A. Gd-FeCo

Uma das dificuldades das medidas de mxT obtidas no magnetômetro SQUID, que não foi mencionada durante a análise dos filmes simples de ligas binárias, vem do fato de que o porta-substrato (canudo de plástico + vidro do substrato) induz sinal nos *pick-ups* do SQUID. O sinal do canudo é desprezível, mas o sinal de um pedaço de vidro de 0.0228 gramas pode chegar a ~$4x10^{-4}$ emu para um campo aplicado de 40kOe e temperatura de 4.2K (figura 6.1(a)). Na figura 6.1(a), estão representadas as curvas de mxT para o porta-amostra, com campo aplicado de 2, 40 e 60kOe. Note que o sinal do vidro passa de positivo para negativo, quando a temperatura aumenta acima de 10K. Esse comportamento do vidro altera a forma da curva de mxT das amostras, levando a algumas dificuldades de interpretação. O efeito do vidro sobre o sinal magnético da amostra é aumentar o sinal na região de temperaturas baixas (<10K) e reduzir no resto. Esse efeito pode ser

observado na figura 6.1(b), que corresponde à curva de mxT de uma amostra binária, T3P1 (Tb-Co).

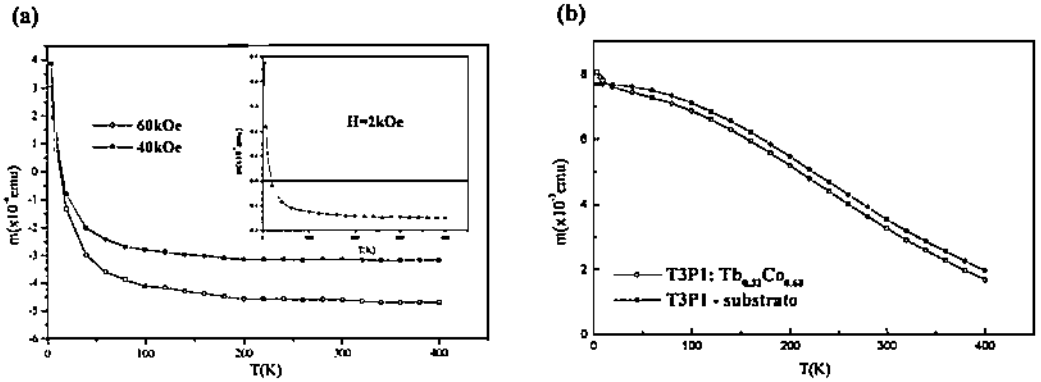


Figura 6.1. (a) Curvas de mxT do vidro do substrato, com campo aplicado de 40 e 60kOe. No detalhe a curva de mxT com campo de 2kOe. (b) Curvas de mxT da amostra binária T3P1, antes e depois da subtração do vidro.

No caso das ligas binárias (figura 6.1(b)), a subtração do vidro fez com que a subida inesperada do sinal magnético em temperaturas baixas (<10K) desaparecesse e, para a região acima de 10K, a curva fosse transladada para cima.

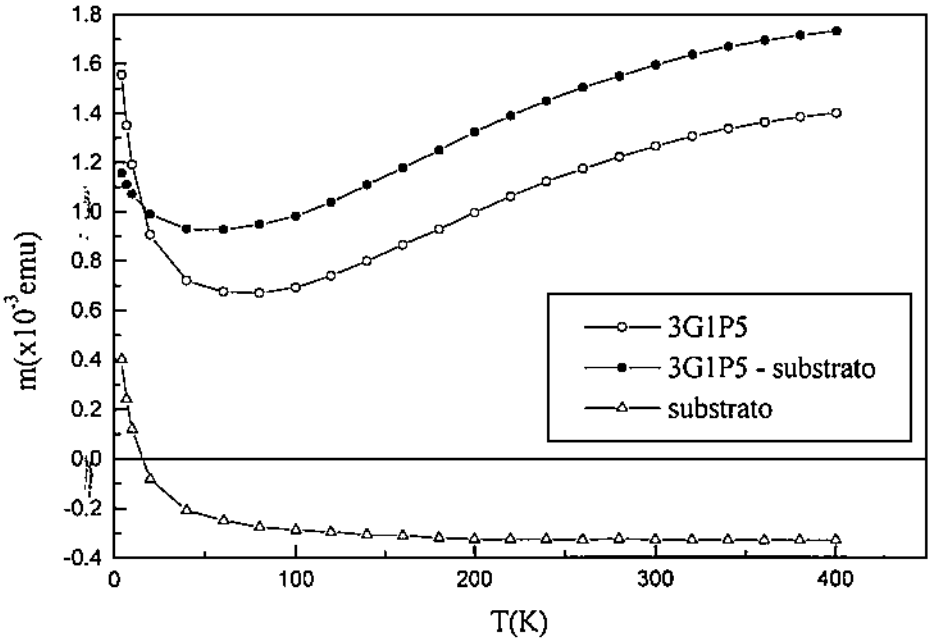


Figura 6.2. Curvas de mxT da amostra 3G1P5 ($Gd_{0.24}(Fe_{0.85}Co_{0.15})_{0.76}$), antes e depois da subtração do vidro do sustrato.

Na figura 6.2, mostramos o resultado da subtração do vidro do substrato sobre a curva de mxT da amostra 3G1P5, que corresponde a uma liga ternária do tipo Gd-FeCo. Como se pode perceber, a subtração não foi suficiente para fazer com que a perturbação na região de baixas temperaturas sumisse, como no caso da amostra binária (figura 6.1(b)). O mesmo comportamento foi observado para as outras amostras ternárias, inclusive para as amostras à base de Tb. Durante as medidas de mxT das ligas ternárias à base de Gd, foi aplicado campo magnético de 40kOe paralelo ao plano dos filmes.

Existem duas hipóteses para o comportamento das curvas de mxT das ligas ternárias. A primeira delas considera que o efeito conjunto de flutuações locais da composição, anisotropia (Tb) e interações de troca levariam ao não cancelamento da magnetização na temperatura de compensação e, portanto, o "vale", na região de temperaturas baixas, corresponderia a T_{comp} da amostra. Caso essa hipótese seja verdadeira, a TCM não poderia mais ser usada da forma como foi na análise das amostras binárias. A outra hipótese, que parece ser mais razoável, considera que, na região de temperaturas baixas, a subtração do vidro do substrato não teria sido feita adequadamente. A dificuldade na centralização do vidro, durante a medida no SQUID, justificaria a imprecisão na sua medida de mxT. Além disso, o sinal da amostra ternária (figura 6.2), na região de baixas temperaturas, é muito menor (~8 vezes) que o sinal da amostra binária (figura 6.1(b)). Por isso, pequenas incertezas nas medidas de mxT para as ligas binárias seriam muito ampliadas nas ligas ternárias. A combinação de baixo sinal magnético da amostra ternária com o sinal positivo do vidro, na região de baixas temperaturas, poderiam levar à formação de um vale (figura 6.2) na curva de mxT da amostra.

Supondo que a segunda hipótese seja verdadeira e após algumas considerações a respeito do número de elementos magnéticos presentes nas amostras, nós analisaremos as curvas de mxT das ligas ternárias em termos da TCM. Normalmente, no caso de ligas ternárias à base de Gd, o que se faz

é considerar os dois elementos de metal de transição, M1 e M2, como sendo um único elemento, M3 [HAS75c]. No nosso caso, como a concentração de Co é baixa e seu momento é comparável ao momento do Fe, consideraremos a liga FeCo como sendo Fe puro e faremos simulações de ligas de Gd-Fe. Esse procedimento é adotado devido ao grande número de parâmetros ajustáveis no programa de ajustes por TCM, que passa de 9 para 15, quando o número de elementos passa de dois para três.

As curvas de magnetização em função da temperatura (figura 6.3, 6.4, 6.5) foram ajustadas desprezando-se os cinco primeiros pontos (4.2 a 40K) e substituindo-se FeCo por Fe.

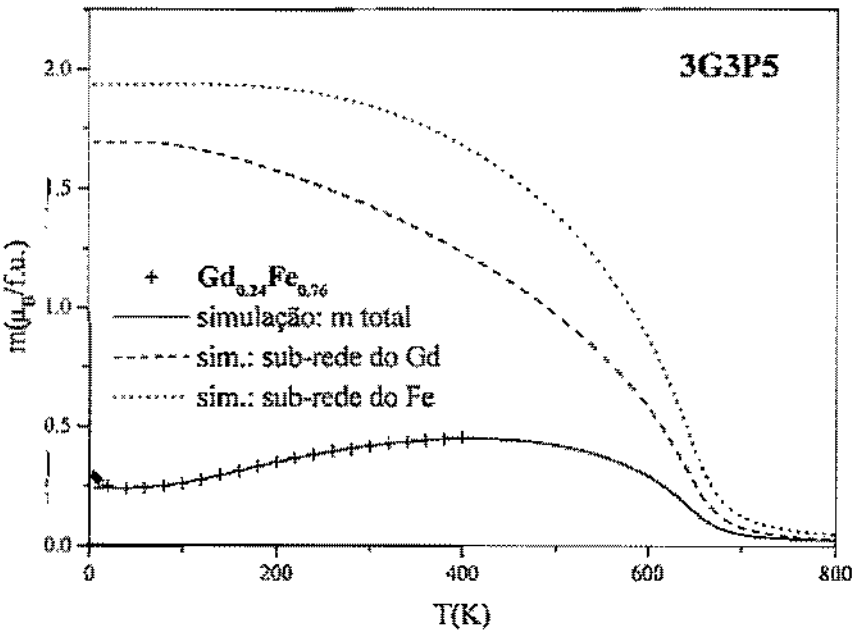


Figura 6.3. Simulação da amostra 3G3P5, onde FeCo foi substituído por Fe, com a contribuição de cada sub-rede para a curva de magnetização total simulada.

Na figura 6.3, podemos ver a simulação da curva de magnetização em função da temperatura da amostra 3G3P5 ($Gd_{0.24}Fe_{0.76}$), bem como a contribuição de cada sub-rede para a curva de magnetização total simulada. Como se pode perceber pelas curvas de cada sub-rede, a compensação magnética nunca acontecerá, porque a magnetização da sub-rede do Fe é

sempre maior que a da sub-rede do Gd, mesmo a 0K. A compensação magnética (T_{comp}) so' será observada quando a magnetização da sub-rede do Gd for maior que a da sub-rede do Co, o que pode ser conseguido aumentando-se a quantidade de Gd na liga, e/ou diminuindo-se a P_{Ar}, durante a deposição do filme.

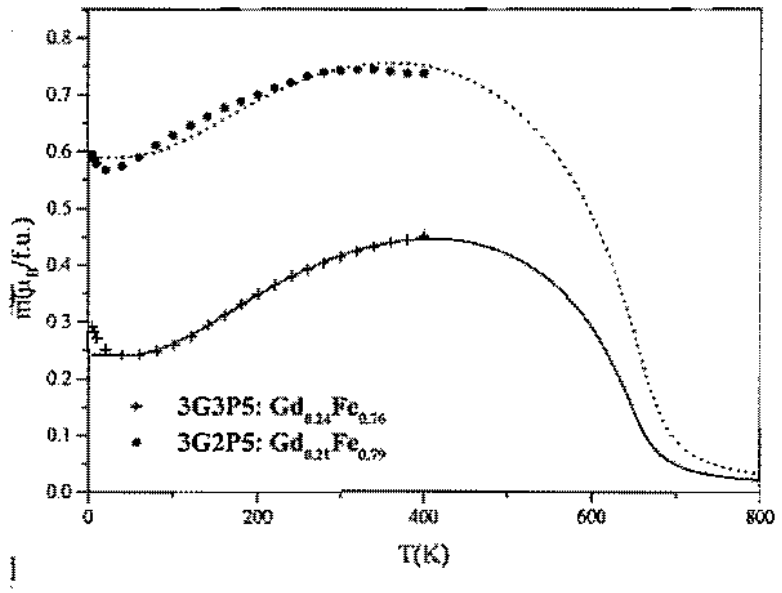


Figura 6.4. Simulações das curvas de magnetização em função da temperatura das amostras 3G2P5 e 3G3P5, depositadas com o mesmo alvo composto $Fe_{0.9}Co_{0.1}$. Simulações feitas substituindo-se FeCo por Fe.

Na figura 6.4, verificamos o efeito da variação da quantidade de Gd na liga sobre a curva de magnetização em função da temperatura. Nessa figura, apresentamos as simulações das curvas das amostras 3G2P5 e 3G3P5, depositadas com o mesmo alvo de FeCo. Como o momento do Fe aumenta com o decréscimo de Gd na liga, o esperado é o aumento do sinal magnético total, que corresponde ao sinal do Fe menos o do Gd.

Verificamos, também, o efeito da variação da quantidade de Co na liga (figura 6.5), através da utilização de alvos diferentes na produção das amostras 3G1P5 e 3G3P5, que possuem a mesma quantidade de Gd. O efeito do aumento percentual de Co, de 10 para 15% com relação à quantidade de Fe, foi o aumento do sinal magnético total. Como se sabe, ligas amorfas de

$Y_{1-x}Fe_x$, com x>0.35, apresentam ordenamento speromagnético ou comportamento de *vidros de spin*, evidenciando a presença de competição entre interações de troca positiva e negativa [HAN89]. Quando Y é substituído por um elemento de terra-rara magnético (Gd ou Tb, por exemplo), a presença de interações R-Fe reduz o efeito de frustração nos diferentes sítios de Fe e resulta em redução da dispersão angular dos momentos do Fe [MOO84]. O mesmo efeito deve ser observado quando se acrescenta Co à liga, em virtude da interação Fe-Co ser mais forte que a interação Fe-Fe.

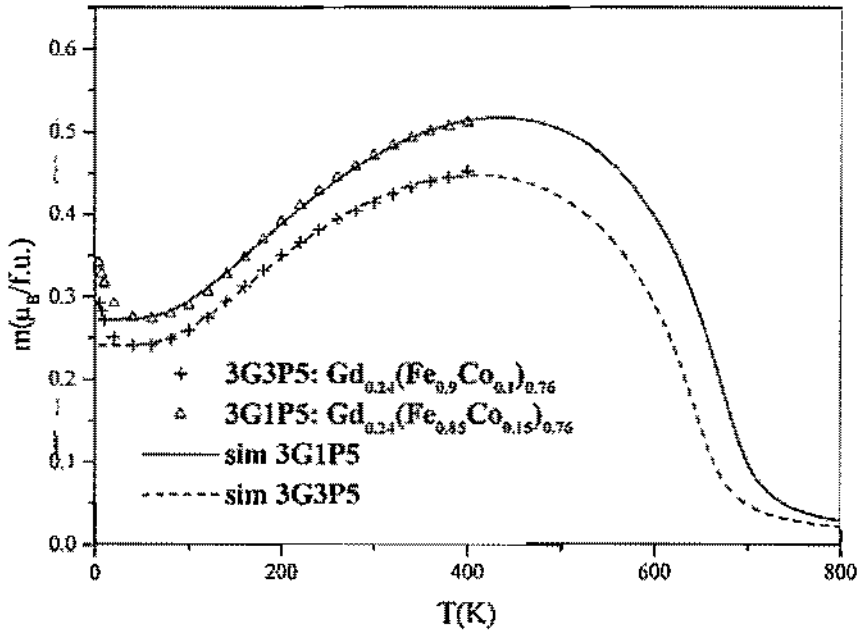


Figura 6.5. Simulações das curvas de magnetização em função da temperatura das amostras 3G1P5 e 3G3P5, que apresentam a mesma quantidade de Gd, mas foram depositadas com alvos compostos de FeCo diferentes, $Fe_{0.85}Co_{0.15}$ e $Fe_{0.9}Co_{0.1}$, respectivamente.

Os valores dos parâmetros ajustados estão na tabela 6.2. Como no caso anterior (binárias), cada linha da tabela 6.2 corresponde a uma simulação, onde os parâmetros sublinhados são os parâmetros livres para serem ajustados pelo programa.

Tabela 6.2.
Parâmetros calculados a partir da TCM.

Amostra	Chi^2	S_{Fe}	J_{Gd-Gd} (10^{-16}erg)	J_{Gd-Fe} (10^{-15}erg)	J_{Fe-Fe} (10^{-15}erg)
$Gd_{0.24}Fe_{0.76}$ (3G1P5†)	0.45	1.30	0.1	-1.8	4.0
$Gd_{0.21}Fe_{0.79}$ (3G2P5)	2.57	1.29	0.1	-1.7	4.0
$Gd_{0.24}Fe_{0.76}$ (3G3P5)	0.27	1.28	0.1	-1.9	3.8

†Filme depositado com o alvo de FeCo (15% atm de Co).

Apesar da simplicação feita ao considerar FeCo como sendo Fe puro, a concordância entre os valores de J_{Gd-Fe} e J_{Fe-Fe}, extraídos dos ajustes, e os da literatura [HAN89] foi muito boa. Para uma amostra de $Gd_{0.2}Fe_{0.8}$, *Hansen et al.* obtiveram os seguintes valores: J_{Gd-Fe}=-1.9x10^{-15}erg e J_{Fe-Fe}=4.0x10^{-15}erg. Lembrando que a incerteza associada aos valores das integrais de troca, no caso das ligas binárias, é de 10%.

Com relação ao valor do spin do Fe, o valor extraído dos ajustes ficou cerca de 30% acima do esperado, que é da ordem de 1, para uma liga de $Gd_{0.2}Fe_{0.8}$ [HAN89]. No caso das ligas ternárias, como ficou claro pelas medidas feitas no SQUID, as incertezas relativas associadas aos valores de m são maiores que no caso das ligas binárias. Além disso, a determinação de composição e espessura foi feita simulando-se os espectros de RBS, onde FeCo foi considerado como sendo Fe puro. Para que o *spin* do Fe fique em torno do valor esperado, é preciso reduzir (~4%) a quantidade de Gd na liga. As curvas simuladas após a redução apresentaram o mesmo comportamento, mas os valores das integrais de troca aumentaram cerca de 20%. Apesar do aumento, continuamos a observar boa concordância entre os valores extraídos dos ajustes e os valores da literatura, dentro do limite de erros (~20%).

B. Tb-FeCo

Na figura 6.6, apresentamos o resultado da subtração do vidro do substrato sobre as curvas de mxT das amostras 3T2P5 e 3T3P5, que correspondem a ligas ternárias à base de Tb, depositadas com o mesmo alvo composto de FeCo (10% atm de Co). Durante as medidas de mxT, foi aplicado campo magnético de 60kOe paralelo ao plano dos filmes.

Da mesma forma que no caso anterior, a subtração do vidro não foi suficiente para fazer com que a perturbação, na região de baixas temperaturas, desaparecesse. Assumindo que esse "vale", na região de baixas temperaturas, não corresponde a T_{comp}, e que o FeCo pode ser substituído por Fe, utilizaremos a TCM para analisar as curvas de magnetização em função da temperatura. Lembrando que, no caso de ligas à base de Tb, o número de parâmetros ajustáveis é maior e, como não conhecemos o valor do *spin* do Fe ou do momento angular médio do Tb $\langle J_{Tb} \rangle$, só poderemos fazer a análise qualitativa dos resultados.

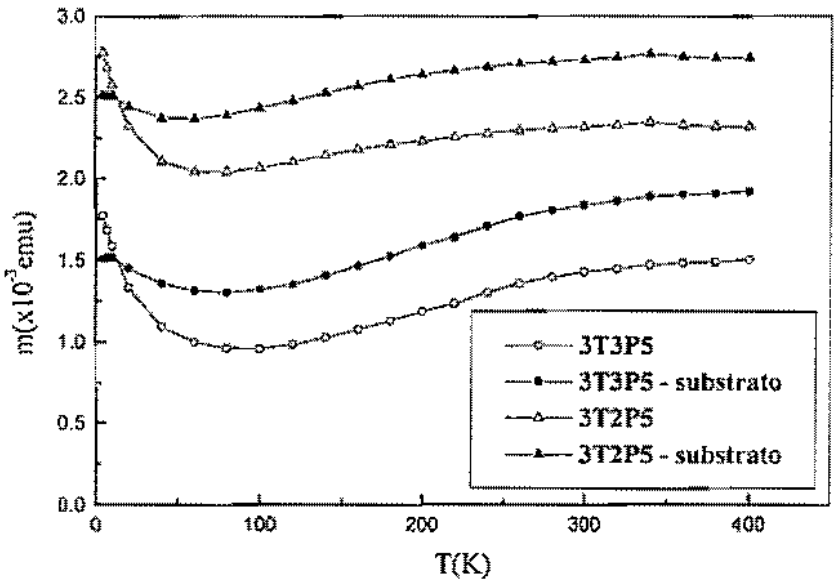


Figura 6.6. Curvas de mxT das amostras 3T2P5 e 3T3P5, antes e depois da subtração do vidro do substrato.

Para começar, utilizaremos, como momento angular médio do Tb, o valor extraído da literatura $\langle J_{Tb} \rangle$=5 [HANS89]. Desprezando-se os pontos

iniciais, as curvas simuladas ajustam bem os nossos dados experimentais (figura 6.7). Os parâmetros ajustados estão na tabela 6.3.

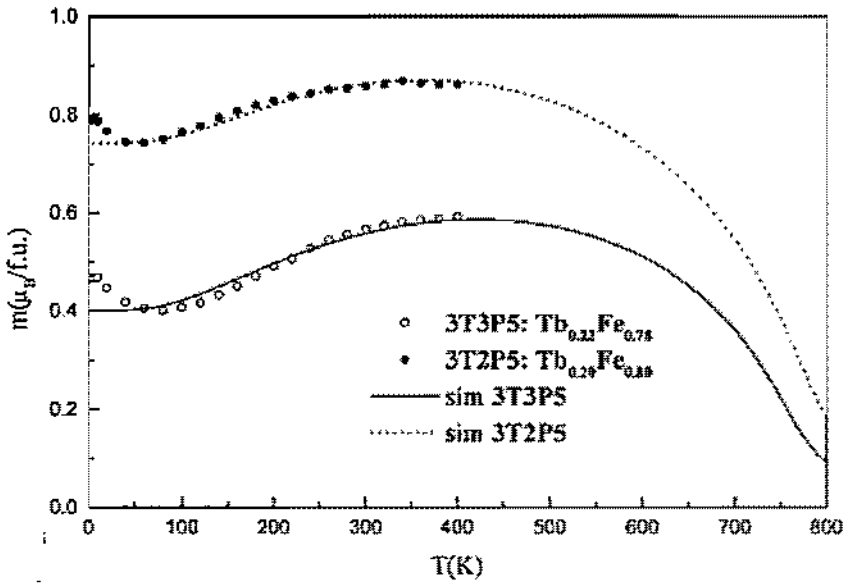


Figura 6.7. Simulações das curvas de magnetização em função da temperatura das amostras 3T2P5 e 3T3P5, depositadas com o mesmo alvo composto $Fe_{0,9}Co_{0,1}$. Simulações feitas substituíndo-se FeCo por Fe.

A partir das medidas de magnetização em função da temperatura, verificamos o efeito da variação da quantidade de Tb na liga (figura 6.7). Na figura 6.7, os pontos experimentais das amostras 3T3P5 e 3T2P5, depositadas com o mesmo alvo de FeCo, estão representados por círculos abertos e fechados e as simulações por linhas contínua e pontilhada. O aumento no sinal magnético total, o qual corresponde ao sinal do Fe menos o do Tb, ocorre devido ao aumento do momento do Fe com o decréscimo da quantidade de Tb na liga.

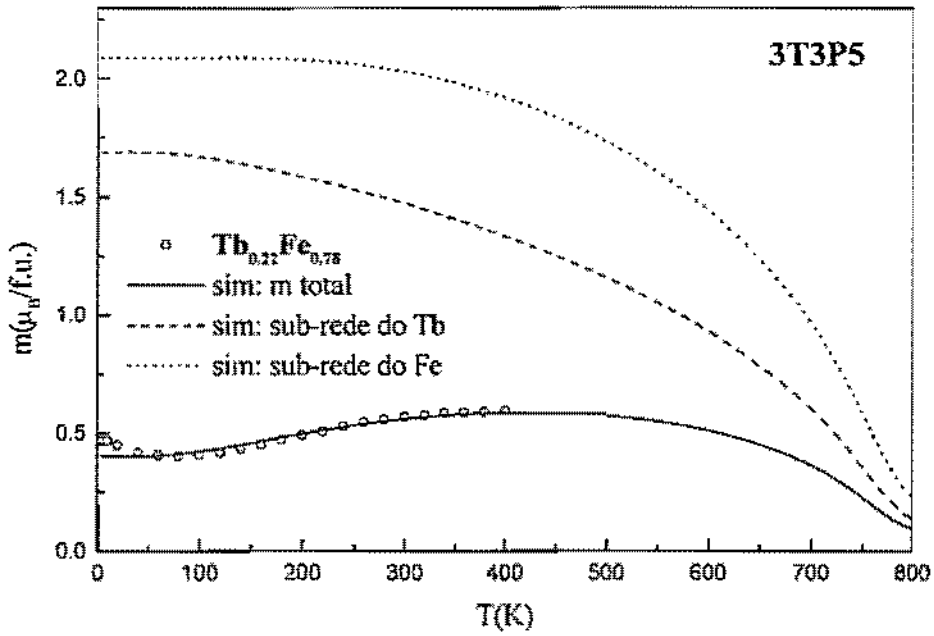


Figura 6.8. Simulação da amostra 3T3P5, onde FeCo foi substituído por Fe, com a contribuição de cada sub-rede para a curva de magnetização total simulada.

Coincidentemente, as amostras à base de Tb (figura 6.8) também não apresentaram compensação magnética, pois a magnetização da sub-rede do Fe é maior que a da sub-rede do Tb, mesmo a 0K.

Tabela 6.3.
Parâmetros calculados a partir da TCM.

Amostra	Chi^2	S_{Tb}	S_{Fe}	J_{Tb-Tb} (10^{-16}erg)	J_{Tb-Fe} (10^{-15}erg)	J_{Fe-Fe} (10^{-15}erg)
$Tb_{0.20}Fe_{0.80}$ (3T2P5)	0.17	5	1.38	0.1	-1.5	4
$Tb_{0.22}Fe_{0.78}$ (3T3P5)	1.86	5	1.35	0.1	-1.6	4

Os valores das integrais de troca, extraídos dos ajustes, apresentaram boa concordância com os da literatura [HANS89]. Para uma amostra de $Tb_{0.2}Fe_{0.8}$, *Hansen et al.* obtiveram os seguintes valores: J_{Tb-Fe}=-1.5x10^{-15}erg e J_{Fe-Fe}=4.0x10^{-15}erg. No entanto, os valores das integrais de troca, extraídos

dos ajustes, não são confiáveis. Como ficou claro através da análise das ligas binárias, sem o conhecimento prévio do $\langle J_{Tb} \rangle$, muitos pares de soluções [S_{Fe}, $\langle J_{Tb} \rangle$] são possíveis. E, como os dois parâmetros estão vinculados, a determinação do $\langle J_{Tb} \rangle$, para cada amostra, só poderá ser feita através do conhecimento do S_{Fe}. Infelizmente, considerando os dados de que dispomos, não temos como fixar nenhum dos dois parâmetros e, resultados confiáveis não poderão ser extraídos dos ajustes. Vale a pena mencionar que os valores das integrais de troca podem ser alterados, através da variação do par [S_{Fe}, $\langle J_{Tb} \rangle$], sem que a curva simulada seja significativamente alterada.

6.3.3. CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA À TEMPERATURA AMBIENTE (MAV)

Os filmes de Gd-FeCo, Tb-FeCo e Gd-FeCo/Tb-FeCo foram caracterizados magneticamente, à temperatura ambiente, com o MAV. As figuras 6.9 e 6.10 correspondem a medidas feitas em dois conjuntos de amostras, sendo cada conjunto composto por uma bicamada e dois filmes simples. Os valores de magnetização de saturação e campo coercivo, extraídos das curvas, estão na tabela 6.4. O sinal do porta-amostra já foi descontado das medidas. As amostras não foram submetidas a tratamentos térmicos, pois foi observado, experimentalmente, que o tratamento térmico acaba com a anisotropia perpendicular que esses filmes possam ter. O campo desmagnetizante não foi descontado das medidas com campo perpendicular, por se tratarem de medidas preliminares, utilizadas apenas para a análise qualitativa das amostras.

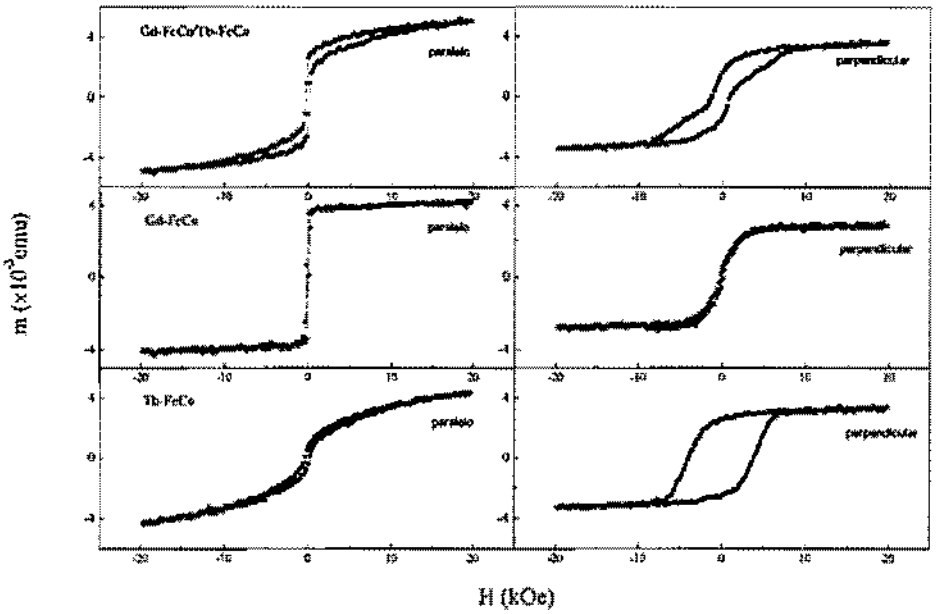


Figura 6.9. Comparação entre curvas de mxH da bicamada (3GT1P5) e dos filmes simples (3G1P5 e 3T1P5) com o campo aplicado paralela e perpendicularmente ao plano dos filmes.

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
ex. 1
SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO
3408
INSTITUTO DE FÍSICA

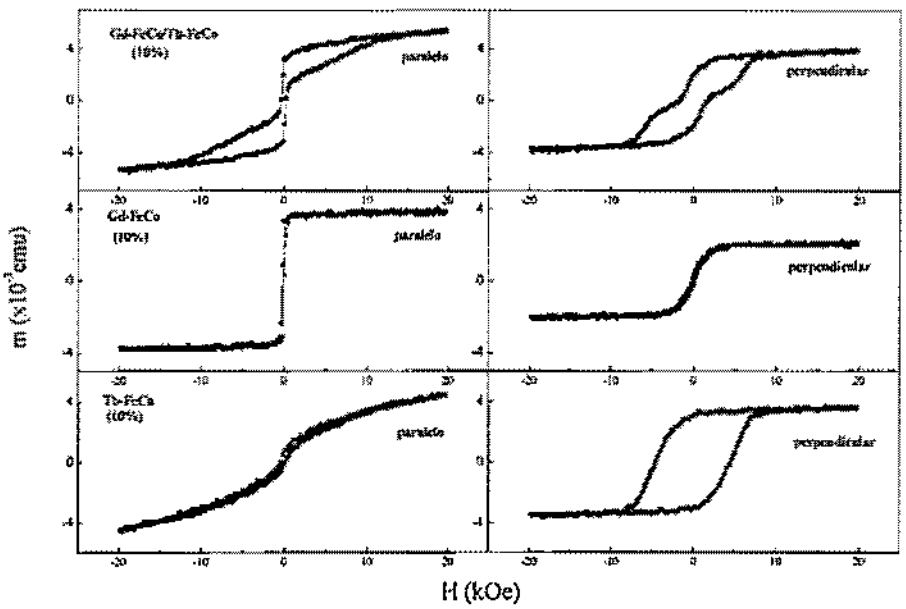


Figura 6.10. Comparação entre curvas de mxH da bicamada (3GT3P5) e dos filmes simples (3G3P5 e 3T3P5) com o campo aplicado paralela e perpendicularmente ao plano dos filmes.

Tabela 6.4.
Parâmetros experimentais extraídos das curvas de mxH (MAV).

Amostra	H paralelo		H perpendicular		$H_{aplicado}$ (kOe)
	H_c (kOe)	m_s (10^{-3} emu)	H_c (kOe)	m_s (10^{-3} emu)	
3GT1P5	~0.2	5.0		3.5	20
3G1P5	~0.1	4.1	~0.1	2.8	20
3T1P5	~0.3	4.3	3.9	3.3	20
3GT3P5	~0.3	5.4		3.8	20
3G3P5	~0.1	3.8	~0.2	2.1	20
3T3P5	~0.3	4.4	~4.5	3.6	20

A partir desses resultados iniciais, podemos tirar algumas conclusões a respeito das amostras:

1. Todos os filmes de Tb-FeCo e bicamadas de Gd-FeCo/Tb-FeCo apresentam anisotropia fora do plano.

2. Todos os filmes de Gd-FeCo apresentam anisotropia planar.

3. Os valores de M_S, medidos com campo perpendicular, são sempre menores que os medidos com campo paralelo, apesar da amostra ser a mesma. Devido à dimensão da amostra, frente à das bobinas sensoras do MAV, o sinal detectado é menor (cerca de 32%) que o sinal real, na configuração com campo perpendicular.

6.3.4. CARACTERIZAÇÃO MAGNETO-ÓPTICA À TEMPERATURA AMBIENTE (MEK-bt)

Para as medidas de Kerr Polar, foram necessárias algumas modificações no MEK-bt. O porta-amostra foi substituído por outro que permite que o

campo magnético seja aplicado perpendicularmente ao plano do filme. Além disso, alguns espelhos e lentes de focalização também foram trocados.

O procedimento para a aquisição dos dados é maximizar o sinal que chega no fotodiodo, ou seja, polarizador e analisador na mesma direção, e depois, reduzir o sinal para 10% do valor máximo. O efeito Kerr Polar corresponde à rotação do plano de polarização com a variação da magnetização da amostra. O que estamos fazendo ao fixarmos uma direção de observação do sinal é, simplesmente, detectar a componente do sinal magneto-óptico total nessa direção. Dessa forma, é possível a aquisição de curvas de maneira semelhante àquelas obtidas na configuração de Kerr Transversal.

Uma característica de ligas ternárias à base de Tb, é a necessidade de campos muito altos (20kOe) durante as medidas. O campo do eletroímã não fica totalmente confinado à região central, entre as peças polares. Quando o campo aplicado é menor que 5kOe, este comportamento não interfere nas medidas. Mas acima desse valor, o laser e o fotodiodo, bem como a estabilidade mecânica do sistema começam a ser afetados pelo campo. O efeito do campo magnético é a distorção nas curvas de histerese magneto-ópticas. Para eliminar as distorções, nós nos baseamos na propriedade de simetria das curvas de histerese. O procedimento é simples: a curva experimental original (figura 6.11(a)) tem o eixo x multiplicado por −1 (figura 6.11(b)) e a soma entre essas duas curvas resulta no cancelamento da parte simétrica da curva. O que sobra é a soma da distorção das duas curvas (figura 6.11(c)), que é, então, dividida por 2 e subtraída da curva original (figura 6.11(d)). Este procedimento foi adotado nas medidas de Kerr Transversal e Kerr Polar, quando o campo aplicado era maior que 5kOe.

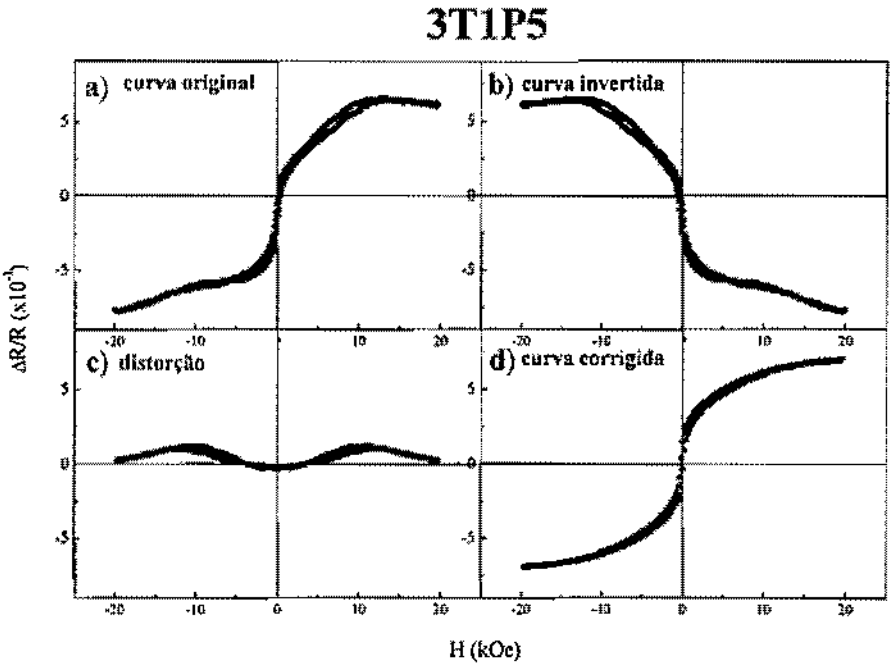


Figura 6.11. Correção da curva de histerese magneto-óptica da amostra 3T1P5: (a) curva original, (b) curva invertida, (c) distorção = curva (a) + curva (b) e (d) curva corrigida = curva (a) – [curva (c)]/2. Medida com o MEK-bt na configuração de Kerr Transversal.

Os filmes de Gd-FeCo, Tb-FeCo e Gd-FeCo/Tb-FeCo foram caracterizados magneto-opticamente, à temperatura ambiente, com o MEK-bt, nas configurações para medidas de Kerr Transversal e Kerr Polar. As figuras 6.12 e 6.14 correspondem a medidas feitas nas duas configurações dos dois lados das bicamadas 3GT1P5 e 3GT3P5, respectivamente. As figuras 6.13 e 6.15 correspondem a medidas, nas duas configurações, dos filmes simples.

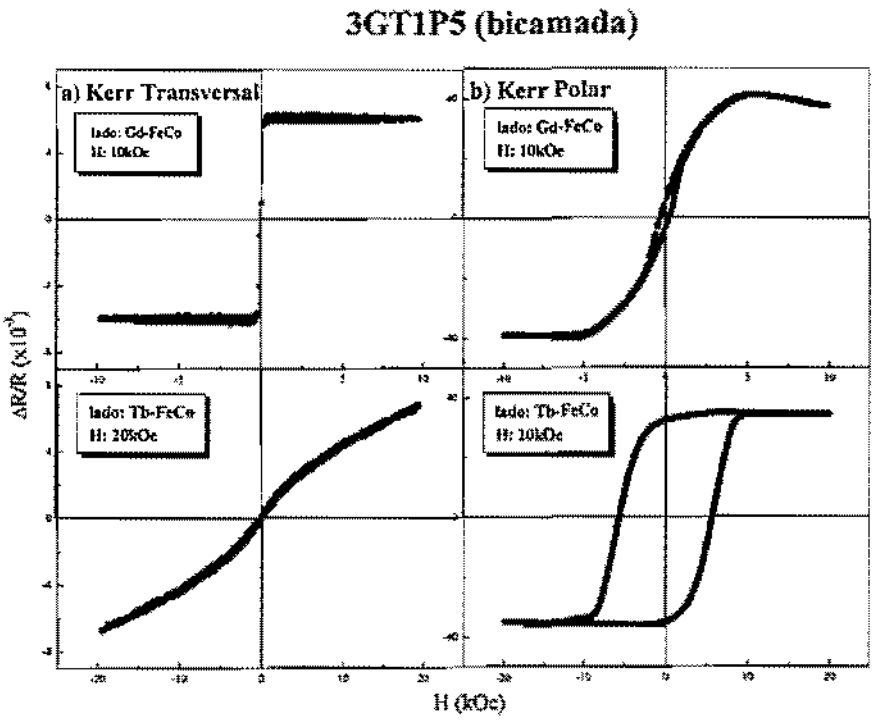


Figura 6.12. Medidas feitas no MEK-bt, nas configurações: Kerr Transversal e Kerr Polar, dos dois lados da amostra 3GT1P5.

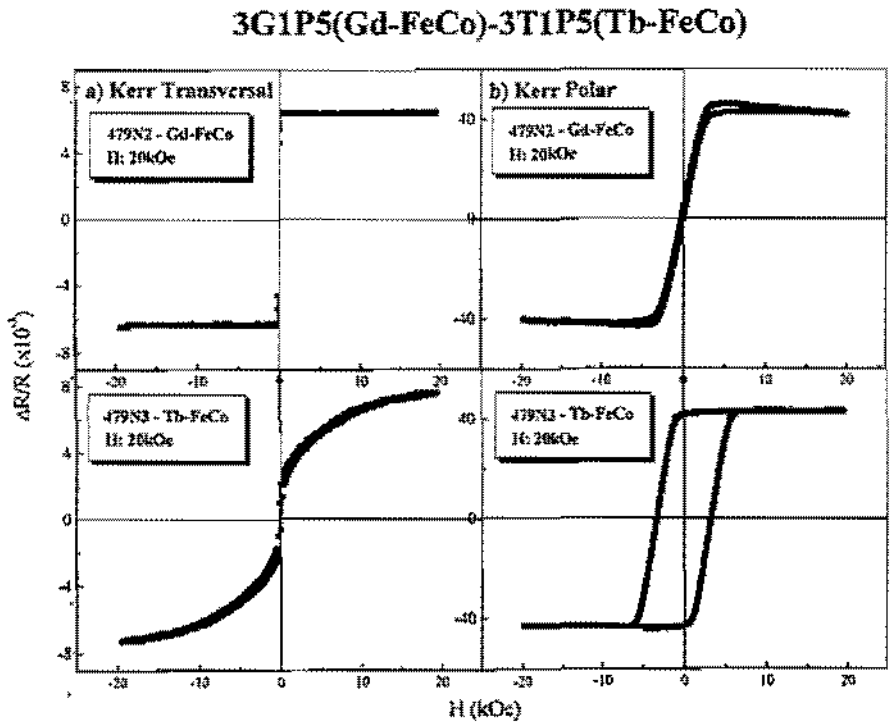


Figura 6.13. Medidas feitas no MEK-bt, nas configurações: Kerr Transversal e Kerr Polar, nos filmes simples Gd-FeCo (3G1P5) e Tb-FeCo (3T1P5).

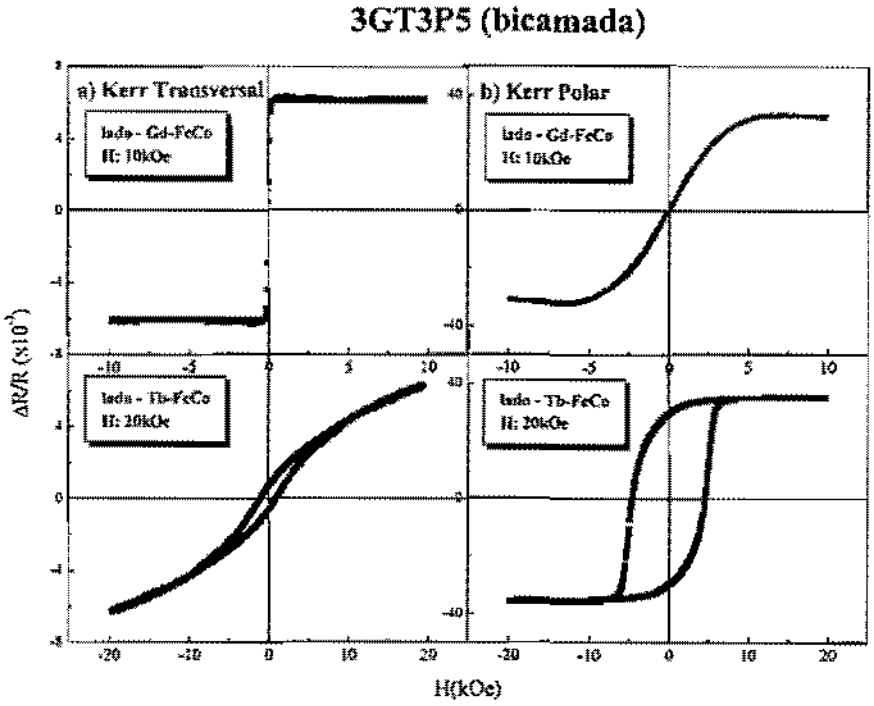


Figura 6.14. Medidas feitas no MEK-bt, nas configurações: Kerr Transversal e Kerr Polar, dos dois lados da amostra 3GT3P5.

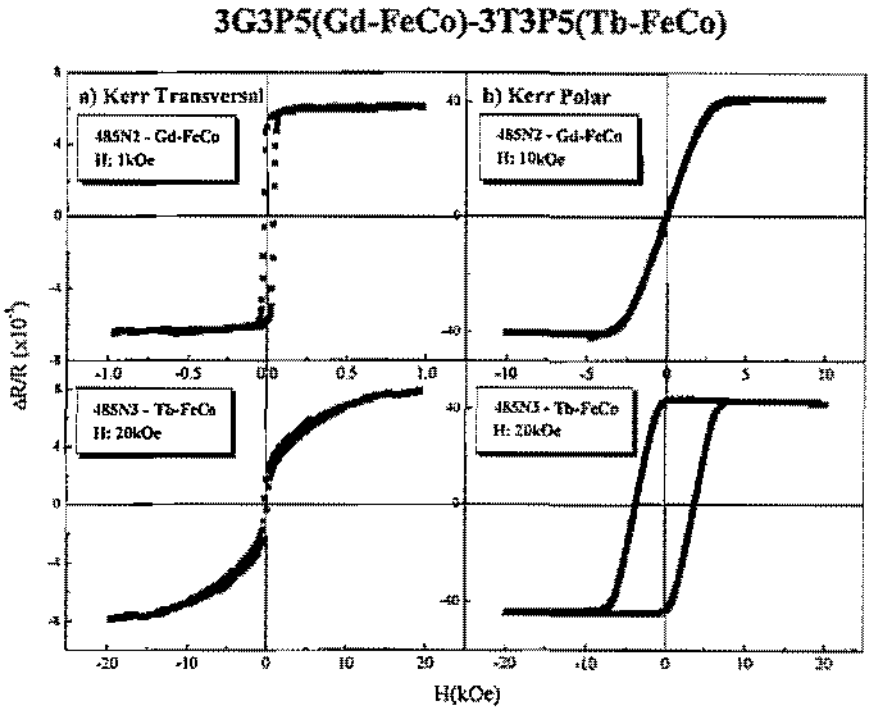


Figura 6.15. Medidas feitas no MEK-bt, nas configurações: Kerr Transversal e Kerr Polar, nos filmes simples Gd-FeCo (3G3P5) e Tb-FeCo (3T3P5).

Tabela 6.3.
Parâmetros experimentais extraídos das curvas MO com o MEK-bt, nas configurações para medidas de Kerr Transversal e Kerr Polar

Amostra	Tipo de Amostra	Kerr Transversal H_c (kOe)	Kerr Polar H_c (kOe)
3GT1P5 (bicamada)	lado Gd-FeCo	<0.05	~0.25
	lado Tb-FeCo	<0.05	~5.6
3G1P5	$Gd_{0.24}(Fe_{0.85}Co_{0.15})_{0.76}$	<0.05	<0.05
3T1P5	$Tb_{0.25}(Fe_{0.85}Co_{0.15})_{0.75}$	~0.1	~3.3
3GT3P5 (bicamada)	lado Gd-FeCo	<0.05	<0.05
	lado Tb-FeCo	~2.7	~4.6
3G3P5	$Gd_{0.24}(Fe_{0.9}Co_{0.1})_{0.76}$	<0.05	<0.05
3T3P5	$Tb_{0.22}(Fe_{0.9}Co_{0.1})_{0.78}$	~0.1	~3.7

Com base nesses dados, podemos tirar algumas conclusões a respeito das amostras:

1. Através da caracterização magneto-óptica, pudemos confirmar a anisotropia planar das amostras de Gd-FeCo.

2. Todas as curvas magneto-ópticas são "normais", ou seja, apresentam sinal positivo na região de campo positivo e sinal negativo na região de campo negativo. Isso quer dizer que, em todos os casos, a soma dos momentos dos metais de transição é maior que a da terra-rara. Portanto, à temperatura ambiente, o Tb e o Gd estão invertidos com relação ao campo magnético aplicado.

3. As amostras de Tb-FeCo apresentam altos valores de coercividade na direção perpendicular e baixos valores na planar, indicando que a anisotropia desses filmes deve ser perpendicular. Além disso, as curvas obtidas com o Kerr Polar são bem quadradas, sinal de que o eixo perpendicular deve ser o eixo de fácil magnetização dessas amostras.

4. A bicamada 3GT3P5 apresenta alto valor de coercividade na direção perpendicular e na planar, indicando que a anisotropia da camada Tb-FeCo está numa direção intermediária entre essas duas. As curvas obtidas com o Kerr Polar do lado do Tb-FeCo da amostra são arredondadas, o que reforça a idéia de que o eixo perpendicular não é o eixo de fácil magnetização.

5. A coercividade da bicamada 3GT1P5, do lado do Tb-FeCo, é bem maior que a do filme simples correspondente. Esse comportamento pode ser indício de acoplamento entre as camadas dessa bicamada.

6.4. CONCLUSÕES

As medidas de mxT das amostras ternárias apresentaram dificuldades de interpretação devido ao comportamento magnético do vidro do substrato. Através de medidas de mxT do vidro, pudemos observar que o sinal de m passa de positivo para negativo, quando a temperatura passa de 10K (em direção a altas temperaturas). Como resultado, as curvas de mxT das amostras ternárias à base de Gd apresentaram um "vale" na região de baixas temperaturas, que foi atribuído à combinação de baixo sinal magnético da amostra ternária com o sinal positivo do vidro.

As curvas de magnetização em função da temperatura das amostras de Gd-FeCo foram analisadas em termos da TCM, após assumirmos que, em virtude da baixa concentração de Co, o FeCo pode ser considerado como sendo Fe puro. Esse procedimento reduz o número de parâmetros a serem ajustados pelo programa de simulação.

Apesar da simplicação feita ao considerar FeCo como sendo Fe puro, a concordância entre os valores de $J_{Gd\text{-}Fe}$ e $J_{Fe\text{-}Fe}$, extraídos dos ajustes, e os da literatura [HAN89] foi muito boa. Para uma amostra de $Gd_{0.2}Fe_{0.8}$, *Hansen et al.* obtiveram os seguintes valores: $J_{Gd\text{-}Fe}$=-1.9x10^{-15}erg e $J_{Fe\text{-}Fe}$=4.0x10^{-15}erg. Os valores de $J_{Gd\text{-}Fe}$ e $J_{Fe\text{-}Fe}$, extraídos dos ajustes, ficaram entre -1.7 e -1.9 x10^{-15} erg e entre 3.8 e 4.0x10^{-15}erg, respectivamente.

Com relação ao *spin* do Fe, o valor extraído dos ajustes ficou cerca de 30% acima do esperado. De acordo com as simulações feitas, a única maneira de reduzir o valor do spin do Fe é alterando a composição da amostra. Para que o spin do Fe ficasse em torno do valor esperado (~1), foi preciso reduzir (~4%) a quantidade de Gd na liga. As curvas simuladas após a redução apresentaram o mesmo comportamento, mas os valores das integrais de troca aumentaram cerca de 20%. Apesar do aumento, continuamos a observar boa concordância entre os valores extraídos dos ajustes e os valores da literatura, dentro do limite de erros (~20%).

A TCM foi usada para analisar as curvas de magnetização em função da temperatura de filmes de Tb-FeCo, após assumirmos que o "vale", na região de temperaturas baixas, não corresponde a T_{comp}, e que o FeCo pode ser susbtituído por Fe. Mas, como no caso de ligas à base de Tb, não conhecemos o valor do *spin* do Fe ou do momento angular médio do Tb $\langle J_{Tb} \rangle$, nós só pudemos fazer a análise qualitativa dos resultados.

Ao simular as curvas de mxT das ligas à base de Tb, mostramos que, apesar da boa concordância com a literatura, os valores das integrais de troca, extraídos dos ajustes, não são confiáveis. Como ficou claro através da análise das ligas binárias, sem o conhecimento prévio do $\langle J_{Tb} \rangle$ ou do S_{Fe}, muitos pares de soluções [S_{Fe}, $\langle J_{Tb} \rangle$] são possíveis.

A partir da caracterização magnética (MAV) e MO (MEK-bt), à temperatura ambiente, feita em dois conjuntos de amostras (3GT1P5, 3G1P5, 3T1P5 e 3GT3P5, 3G3P5, 3T3P5), verificamos anisotropia planar nas amostras de Gd-FeCo, perpendicular em filmes de Tb-FeCo e fora do plano nas bicamadas. Através da caracterização MO, determinamos qual elemento magnético é dominante em cada filme, à temperatura ambiente. Como as curvas de histerese MO são "normais", conclui-se que, tanto o Tb como o Gd estão invertidos com relação ao campo magnético aplicado.

Capítulo 7

CONCLUSÕES

Apresentaremos, a seguir, as conclusões a que chegamos em cada capítulo de análise de dados desta tese. Começamos pelo capítulo 4, onde fazemos a análise de filmes simples amorfos de R-Co (R=Y, Gd, Tb), através da TCM. Passamos pelo capítulo 5, onde estudamos bicamadas amorfas à base de Gd e à base de Tb, utilizando o modelo desenvolvido para descrever a parede de domínios que se forma na região da interface da bicamada. E, finalizamos no capítulo 6, onde fazemos um estudo introdutório de filmes ternários do tipo Gd-FeCo e Tb-FeCo, os quais são atualmente utilizados comercialmente como mídia de gravação magneto-óptica.

Filmes simples de R-Co (R=Y, Gd, Tb) foram analisados pela TCM no capítulo 4. Através da análise das curvas de magnetização em função da temperatura de filmes amorfos de $Y_{0.33}Co_{0.67}$, verificamos a dependência de S_{Co} com a pressão de Ar (P_{Ar}), utilizada durante a deposição dos filmes. O aumento de 35.5% no μ_{Co}, quando a P_{Ar} passa de 1 para 5mTorr, foi atribuído à redução da densidade da amostra, que está associada à redução da transferência de carga do Y para o Co. Os comportamentos distintos das amostras produzidas a 1 e a 5mTorr, observados nas curvas de magnetização em função da temperatura, foram confirmados por medidas magneto-ópticas e explicados através da variação da densidade com a P_{Ar}.

A TCM foi usada para explicar a dependência térmica da magnetização de filmes amorfos de Gd_xCo_{1-x}. Para simular as curvas de mxT, foi necessária a elaboração de um programa em C, que faz o ajuste dos dados experimentais. Os valores de μ_{Co}, extraídos do ajuste, apresentaram boa concordância com os valores calculados, considerando-se a correção de 35.5% no μ_{Co}, no caso da amostra produzida à P_{Ar} de 5mTorr. Esse resultado confirma a hipótese de redução da densidade com o aumento da P_{Ar}. As integrais de troca, extraídas dos ajustes, apresentaram os seguintes comportamentos: o valor de $J_{Gd\text{-}Gd}$ passou de 1 para 0.1×10^{-16} erg para as amostras produzidas à P_{Ar} de 1 e 5mTorr, respectivamente; o $J_{Gd\text{-}Co}$ ficou em torno de 2.2×10^{-15} erg, resultado que concorda com a literatura [HAS75], e o

$J_{Co\text{-}Co}$ não pôde ser definido exatamente, pois depende do conhecimento da T_C da amostra.

Devido ao sperimagnetismo do filme amorfo de Tb_xCo_{1-x}, o momento angular orbital total médio do Tb ($\langle J_{Tb}\rangle$) é menor que o valor para o íon livre (J_{Tb}=6). Considerando-se $\langle J_{Tb}\rangle$ dependente da composição, S_{Co} dado pela equação 4.4 e fazendo-se a correção de 35.5% no μ_{Co} da amostra depositada à P_{Ar} de 5mTorr, resultados consistentes foram obtidos ($J_{Tb\text{-}Co}$=-(2.2 ± 0.2)x10^{-15} erg). A partir dos resultados das simulações, determinamos a dependência composicional do momento angular total médio do Tb ($\langle J_{Tb}\rangle$): o $\langle J_{Tb}\rangle$ aumenta com a quantidade de Tb na liga. Este comportamento, não relatado na literatura, está relacionado à variação da distância interatômica entre os pares Tb-Tb com a densidade. Os poucos trabalhos existentes simplificam o problema, considerando $\langle J_{Tb}\rangle$ independente da composição [UCH95].

A partir do modelo de Hasegawa [HAS74], determinamos o comportamento térmico e composicional da constante de troca *A* para filmes de R-Co (R=Gd, Tb). Verificamos que *A* decresce com o aumento de R na liga e que, assim, como o μ_{Co} aumenta com a variação de P_{Ar} de 1 para 5mTorr, o valor de *A* também aumenta. Os valores calculados de *A*, para os filmes de Gd-Co e Tb-Co, estão consistentes com os da literatura [RAA94, VIT88].

No capítulo 5, estudamos paredes de domínios que se formam em sistemas amorfos na forma de bicamadas. Para o caso da bicamada amorfa de Y-Co/Gd-Co, determinamos o comportamento térmico da posição relativa da parede de domínios (Δ), da espessura total da parede (δ) e da constante de troca (*A*) para os pares atômicos Co-Co. Para a faixa de temperaturas 25 a 300K, cerca de 60% da parede de domínios fica localizada na camada Y-Co, δ permanece aproximadamente constante, em torno de 150nm (~ 64% da espessura total do filme), e a constante de troca (*A*) decresce suavemente com a temperatura. O valor de *A* (2.0±0.9)x10^{-7} erg/cm a 300K, apresentou excelente concordância com a literatura [RAA94].

Filmes amorfos à base de Tb são sperimagnéticos e apresentam, como principal característica, um campo de anisotropia muito maior que o observado em filmes à base de Gd. O efeito da alta anisotropia sobre a bicamada Y-Co/Tb-Co é uma parede de domínios quase que totalmente localizada na camada Y-Co. Outra característica do filme analisado é que o campo de transição (H_t) e o campo coercivo (H_c) coincidem de forma que a transição ferri-ferromagnética na bicamada Y-Co/Tb-Co não é tão evidente como na bicamada à base de Gd. Quando H_t é igual a H_c, a única indicação de transição é dada pelo caminho invertido da curva de histerese MO (da camada que inverte), como se essa camada possuísse uma coercividade negativa.

O procedimento para a determinação dos parâmetros associados à parede de domínios (δ e A), no caso da bicamada à base de Tb, foi subtrair a curva de histerese MO da camada Y-Co da curva da camada Tb-Co, ambas normalizadas pelo momento magnético do respectivo filme simples. A concordância entre a curva subtraída e a curva de MxH (SQUID) só foi alcançada quando descontamos da curva subtraída a perda de momento magnético, devido à parede de domínios ($\Delta m = M_b\ \delta\ S$). Para a espessura da parede de domínios δ, nós usamos uma expressão obtida a partir da expressão (5.2) do nosso modelo, onde assumimos que a parede de domínios estava totalmente localizada na camada Y-Co.

A partir desses ajustes, determinamos a dependência de δ com o campo magnético aplicado e o valor da constante de troca (A), para as diferentes temperaturas. Os valores de A variaram de 1.8×10^{-7} erg/cm a 150K para 1.4×10^{-7} erg/cm a 300K e δ, para todas as temperaturas, diminuiu de ~100nm ($H=H_t$~15Oe) para ~20nm (H=1kOe). Considerando-se as diferenças entre composição e elemento de terra-rara envolvido, uma boa concordância com a literatura foi obtida [RAA94].

No capítulo 6, apresentamos uma introdução ao estudo de ligas de Gd-FeCo, Tb-FeCo e bicamadas Gd-FeCo/Tb-FeCo. Utilizamos a TCM para analisar as curvas de magnetização em função da temperatura dos filmes

simples à base de Gd e à base de Tb. As curvas de mxT das amostras ternárias à base de Gd (Tb) apresentaram um "vale" na região de baixas temperaturas, que foi atribuído à combinação de baixo sinal magnético da amostra com o sinal positivo (negativo) do vidro, para T<10K (T>10K).

Apesar da simplificação feita ao considerar FeCo como sendo Fe puro, a concordância entre os valores de $J_{Gd\text{-}Fe}$ e $J_{Fe\text{-}Fe}$, extraídos dos ajustes, e os da literatura [HAN89] foi muito boa. Os valores de $J_{Gd\text{-}Fe}$ e $J_{Fe\text{-}Fe}$ ficaram entre -1.7 e -1.9×10^{-15}erg e entre 3.8 e 4.0×10^{-15}erg, respectivamente. Mas a concordância entre os valores de *spin* do Fe só foi alcançada com a redução (~4%) da quantidade de Gd na liga. Apesar do aumento nos valores das integrais de troca com a redução da quantidade de Gd, continuamos a observar boa concordância entre os valores extraídos dos ajustes e os valores da literatura.

Ao simular as curvas de mxT das ligas à base de Tb, verificamos que, apesar de concordarem com a literatura, os valores das integrais de troca, extraídos dos ajustes, não são confiáveis, pois sem o conhecimento prévio do $\langle J_{Tb}\rangle$ ou do S_{Fe}, muitos pares de soluções [S_{Fe}, $\langle J_{Tb}\rangle$] são possíveis.

A partir da caracterização magnética e MO, à temperatura ambiente, determinamos anisotropia planar nas amostras de Gd-FeCo, perpendicular em filmes de Tb-FeCo e fora do plano nas bicamadas. Além disso, a caracterização MO nos permitiu determinar qual elemento magnético é dominante em cada filme, à temperatura ambiente. Como as curvas de histerese MO são "normais", conclui-se que tanto o Tb como o Gd estão invertidos com relação ao campo magnético aplicado.

SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

O caminho natural a ser seguido para dar continuidade a este trabalho de doutorado seria a caracterização magnética e magneto-óptica completa das amostras ternárias, em função da temperatura.

Apesar de não termos apresentado as medidas de mxH em diferentes temperaturas (SQUID) dos filmes ternários, algumas tentativas foram feitas. A dificuldade na centralização da amostra e, por conseguinte, na subtração adequada do substrato, impossibilitou a análise desses dados. Para se dar uma idéia sobre tempo de medida, foram necessárias aproximadamente 27 horas para se obter um conjunto com sete curvas de histerese, feitas no SQUID, para sete temperaturas diferentes.

A análise das amostras ternárias com a TCM exigiria a produção de amostras com quantidade maior de terra-rara, de forma que a T_{comp} fosse observada na faixa de temperaturas 4.2-300K. O programa de ajuste não linear, desenvolvido durante o meu doutorado, permite simulações de curvas de mxT de amostras com até três elementos magnéticos. Para que resultados físicos razoáveis sejam extraídos dos ajustes, é preciso utilizar outras técnicas de caracterização, que permitam fixar o momento angular médio do Tb $\langle J_{Tb} \rangle$ e o *spin* do Fe.

A caracterização MO em função da temperatura exigiria a utilização do MEK-bt nas configurações para medidas de Kerr Transversal para amostras de Gd-FeCo e bicamadas, com anisotropia planar, e medidas de Kerr Polar para amostras de Tb-FeCo e bicamadas, com anisotropia perpendicular.

Referências

[BAC93] L.T.Baczewski, D.Givord, J.M.Alameda, B.Dieny, J.P.Nozieres, J.P.Rebouillat e J.J.Prejean, Acta Physica Polonica A **83** (1993) 629.

[BEN99] J.Benjelloun, M.Baran, H.Lassri, H.Oukris, R.Krishnan, M.Omri e M.Ayadi, J.Magn.Magn.Mater. **204** (1999) 68.

[CAM72] I.A.Campbell, J.Phys.F. (Met.Phys.) **2** (1972) L47.

[CAR74] G.S.Cargill III, AIP Conf.Proc.**18** (1974) 631.

[CHA73] P.Chaudhari, J.J.Cuomo e R.J.Gambino, Appl.Phys.Lett. **22** (1973) 337.

[CHI64] S.Chikazumi, *Physics of Magnetism*, John Wiley & Sons, Inc., New York, (1964).

[CLA73] A.E.Clark, Appl.Phys.Lett. **23** (1973) 642.

[CLA94] J.Clarke, Scientific American, 36 (1994).

[COE73] J.M.D.Coey e P.W.Readman, Nature **246** (1973) 476.

[COE76] J.M.D.Coey, J.Chappert, J.P.Rebouillat e T.S.Wang, Phys.Rev.Lett. **36** (1976) 1061.

[COE78] J.M.D.Coey, J.Appl.Phys. **49** (1978) 1646.

[CUG92] O.Cugat, D.Givord, J.P.Rebouillat e Y.Souche, J.Magn.Magn.Mater. **104-107** (1992) 397.

[CUL72] B.D.Cullity, *Introduction to Magnetic Materials*, Addison-Wesley Publishing Company (1972).

[CYR79] M.Cyrot e M.Lavagna, J.Appl.Phys. **50** (1979) 2333.

[CYR99] M.Cyrot, *Magnétisme (II-Matériaux et Applications)*, Presses Universitaires de Grenoble, chapitre 19 (1999) 237.

[DIE90] B.Dieny, D.Givord, J.M.B.Ndjaka e J.M.Alameda, J.Appl.Phys. **67** (1990) 5677.

[DIR77] A.G.Dirks, J.W.M.Biesterbos e K.H.J.Buschow, Physica **86-88B** (1977) 761.

[ERS73] J.L.Erskine e E.A.Stern, Phys.Rev.B **8** (1973) 1239.

[FLO90] J.M.Florczak e E.Dan Dahlberg, J.Appl.Phys. **67** (1990) 7520.

[FRE68] M.J.Freiser, IEEE Trans.Magn. **MAG-4** (1968) 152.

[GAN78] A.Gangulee e R.J.Kobliska, J.Appl.Phys. **49** (1978) 4896.

[GAV88] J.P.Gavigan, D.Givord, H.S.Li e J.Voiron, Physica B **149** (1988) 345.

[GIG81] D.Gignoux, R.Lamaire, P.Molho e F.Tasset, J.Appl.Phys. **52** (1981) 2087.

[GIV74] D.Givord e R.Lamaire, IEEE Trans. Magn. **MAG-10** (1974) 109.

[GIV79] D.Givord, A.Liénard, J.P.Rebouillat e J.F.Sadoc, J.Phys., Coll. C 5, Suppl. n°5, t40, C5-237 (1979).

[GIV93] D.Givord, A.D.Santos, Y.Souche, J.Voiron e S.Wüchner, J.Magn. Magn.Mater. **121** (1993) 216.

[HAR73] R.Harris, M.Plischke e M.J.Zuckermann, Phys.Rev.Lett. **31** (1973) 160.

[HAN89] P.Hansen, C.Clausen, G.Much, M.Rosenkranz e K.Witter, J.Appl.Phys. **66** (1989) 756.

[HAS74] R.Hasegawa, J.Appl.Phys. **45** (1974) 3109.

[HAS75] R.Hasegawa, B.E.Argyle e L-J. Tao, AIP Conf.Proc.**24** (1975) 110.

[HAS75b] R.Hasegawa, J.Appl.Phys. **46** (1975) 5263.

[HAS75c] R.Hasegawa, J.Appl.Phys. **46** (1975) 3606.

[HAS99] A Hassini, M.Slimani, M.Seqqat, H.Oukris, M.Hamdoun, A.Bouhdada e H.Lassri, Phys.Stat.Sol.(a) **174** (1999) 239.

[KAN92] T.Kaneyoshi, *Introduction to Amorphous Magnets*, World Scientific Publishing, (1992).

[LEE74] K.Lee e N.Heiman, AIP Conf.Proc.**24** (1974) 108.

[LUI92] A.Moysés Luiz, *Aplicações da Supercondutividade*, ed. Edgard Blücher Ltda (1992).

[MIM78] Y.Mimura, N.Imamura, T.Kobayashi, A.Okada, e Y.Kushiro, J.Appl.Phys. **49** (1978) 1208.

[MOO84] K.Moordjani e J.M.D.Coey, *Magnetic Glasses, Methods and Phenomena* **6** (Elsevier, New York, 1884).

[NDJ90] J.M.B.Ndjaka, *Proprietes Magnetiques et Magneto-Optiques de Couches Minces et Multicouches D'Alliages Amorphes Terre Rare-Cobalt*, Tese de Doutorado, L'Université Joseph Fourier de Grenoble (1990).

[O'HA87] R.C.O'Handley, J.Appl.Phys. **62** (1987) R15.

[PER67] P.S.Pershan, J.Appl.Phys. **38** (1967) 1482.

[RAA94] D.Raasch, J.Reck, C.Mathieu e B.Hillebrands, J.Appl.Phys. **76** (1994) 1145.

[RHY74] J.J.Rhyne, S.J.Pickart e H.A.Alperin, AIP Conf.Proc. **18** (1974) 563.

[RHY74B] J.J.Rhyne, J.H.Schelleng e N.C.Koon, Phys.Rev.B **10** (1974) 4672.

[SUN76] K.Sunago, S.Matsushita e Y.Sakurai,, IEEE Trans. Magn. **MAG-12** (1976) 776.

[TAO73] L.J.Tao, S.Kirkpatrick, R.J.Gambino e J.J.Cuomo, Solid State Com. **13** (1973) 1491.

[TAO74] L.J.Tao, R.J.Gambino, S.Kirkpatrick, J.J.Cuomo e H.Lilienthal, AIP Conf.Proc. **18** (1974) 641.

[TAY71] K.N.R.Taylor, Advan.Phys. **20** (1971) 551.

[TAY76] R.C.Taylor and A.Gangulee, J.Appl.Phys. **47** (1976) 4666.

[TUF96] A.P.B.Tufaile, *O Magnetômetro a Efeito Kerr em Baixas Temperaturas e o Filme Amorfo de Dy-Co*, Dissertação de Mestrado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo (1996).

[UCH95] S.Uchiyama, Materials Chemistry and Physics **42** (1995) 38.

[UCH95b] S.Uchiyama, X.Y.Yu e S.Tsunashima, J.Phys.Chem.Solids **56** (1995) 1557.

[VIT78] C.Vittoria, P.Lubitz e V.Ritz, J.Appl.Phys. **49** (1978) 4908.

[YON95] T.Yonamine, *Bicamadas Ferrimagnéticas Macroscópicas Y-Co/Gd-Co Amorfas*, Dissertação de Mestrado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo (1995).

[YON96] T.Yonamine, Y.Souche e A.D.Santos, J.Appl.Phys. **79** (1996) 5266.

[YON97] T.Yonamine, A.P.B.Tufaile, Y.Souche e A.D.Santos, J.Appl.Phys. **81** (1997) 5722.

ARTIGOS PUBLICADOS

The macroscopic ferri-ferromagnetic transition in amorphous Y-Co/Gd-Co bilayers
T. Yonamine,Y. Souche, A. D. Santos,
Journal of Applied Physics **79** (1996) 5266.

Temperature dependence of the macroscopic ferri-ferromagnetic transition in amorphous Y-Co/Gd-Co bilayers
T. Yonamine, A. P. B. Tufaile, A. D. Santos, Y. Souche,
Journal of Applied Physics **81** (1997) 5722.

Characterisation of magnetisation processes in Y-Co/Tb-Co amorphous bilayers from SQUID and TMOKE hysteresis loops
T. Yonamine, A. D. Santos,
a ser publicado no *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.*

Magnetic characterisation and X-ray magnetic circular dichroism study of amorphous YCo_2 films
T. Yonamine, A.P.B. Tufaile, J. Vogel, A.D. Santos, F.C. Vicentin, H. Tolentino,
a ser publicado no *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.*

ANEXO I

A1. SUSCEPTIBILIDADE TRANSVERSAL MAGNETO-ÓPTICA (χ_t)

O método da susceptibilidade transversal magneto-óptica (χ_t) consiste em se medir a susceptibilidade magnética em função de um campo contínuo H_{dc}, quando da aplicação de um pequeno campo alternado H_{ac} a 90° do primeiro, ambos no plano da amostra. Isto permite a H_{ac} atuar como sonda direta das mudanças da projeção da magnetização na direção perpendicular ao campo contínuo. Esse método foi anteriormente utilizado por Salas em seu trabalho de doutorado [A1]. A diferença entre seu método e o nosso é que, enquanto ele utiliza a projeção no eixo H do inverso da susceptibilidade transversal, nós usamos o ponto de máximo da curva de χ_t x H, para a obtenção do campo de anisotropia. Podemos definir [A1] a susceptibilidade transversal magneto-óptica da seguinte forma:

$$\chi_t(H_{dc}) \equiv \lim_{\Delta H_{ac} \to 0} \frac{\Delta M}{\Delta H_{ac}} \qquad (A1.1)$$

A teoria clássica utilizada no desenvolvimento da susceptibilidade transversal magnética pode ser utilizada no desenvolvimento da susceptibilidade transversal magneto-óptica (χ_t), lembrando que o sinal detectado no MEK-bt ($\Delta R/R$) é proporcional à magnetização M, e portanto, na configuração para a medida de χ_t, o sinal será proporcional a ΔM. Através das curvas de χ_t em função do campo H_{dc} podemos determinar a anisotropia magnética de cada camada que constitui o filme.

O campo H_{dc} é aplicado na direção do eixo difícil da amostra (figura A1.1).

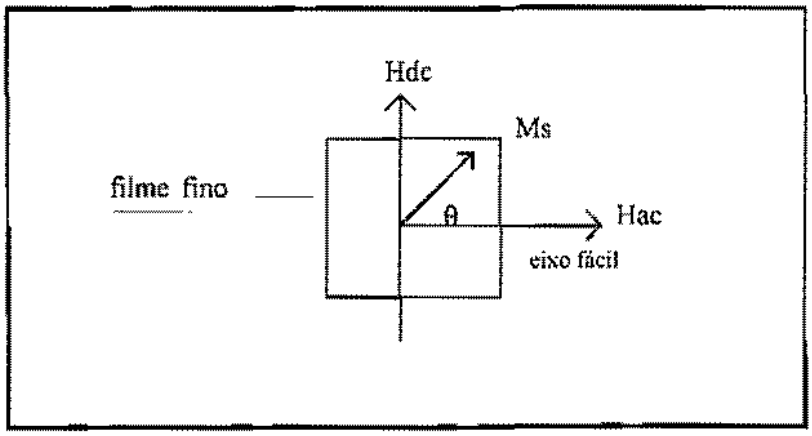


Figura A1.1. Configuração geométrica da medida de susceptibilidade transversal magneto-óptica.

A energia total (E) do sistema corresponde à soma:

$$E_{dc} + E_{ac} + E_K = E \qquad \text{(A1.2)}$$

$$-H_{dc}\, M_S \sin\theta - H_{ac}\, M_S \cos\theta + (H_K\, M_S \sin^2\theta)/2 = E \qquad \text{(A1.3)}$$

onde:

E_{dc} é a energia Zeeman devido ao campo contínuo H_{dc},

E_{ac} é a energia Zeeman devido ao campo alternado H_{ac}, no valor de pico,

E_K é a energia de anisotropia.

Normalizando a equação (A1.3) para H_K, obtemos:

$$-\frac{H_{dc}\,\sin\theta}{H_K} - \frac{H_{ac}\cos\theta}{H_K} + \frac{\sin^2\theta}{2} = \frac{E}{M_S\, H_K} = E' \qquad \text{(A1.4)}$$

O mínimo de E' em relação a θ, pode ser obtido resolvendo-se a equação (A1.4) numericamente (figuras A1.2, A1.3 e A1.4).

O valor ΔM, dado por: $\Delta M = M_S \cos\theta_1 - M_S \cos\theta_2$, é calculado a partir dos θ's correspondentes ao mínimo de energia. A partir da análise das figuras A1.2, A1.3 e A1.4, verificamos que o máximo de variação (ΔM) é alcançado quando $H_{dc} = H_K$ (figura A1.3). O campo H_{ac} utilizado para a obtenção das

figuras A1.2, A1.3 e A1.4 corresponde a 1% do campo de anisotropia H_K. A figura A1.5, foi montada a partir dos valores calculados de ΔM em função do campo contínuo normalizado para H_K (H_{dc}/H_K).

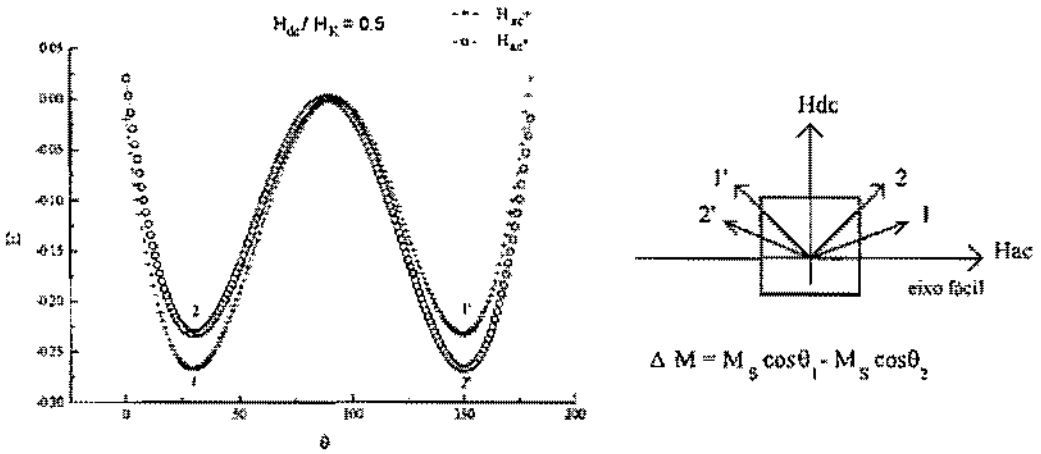


Figura A1.2. Solução numérica da equação (A1.4) para $H_{dc}/H_K = 0.5$.

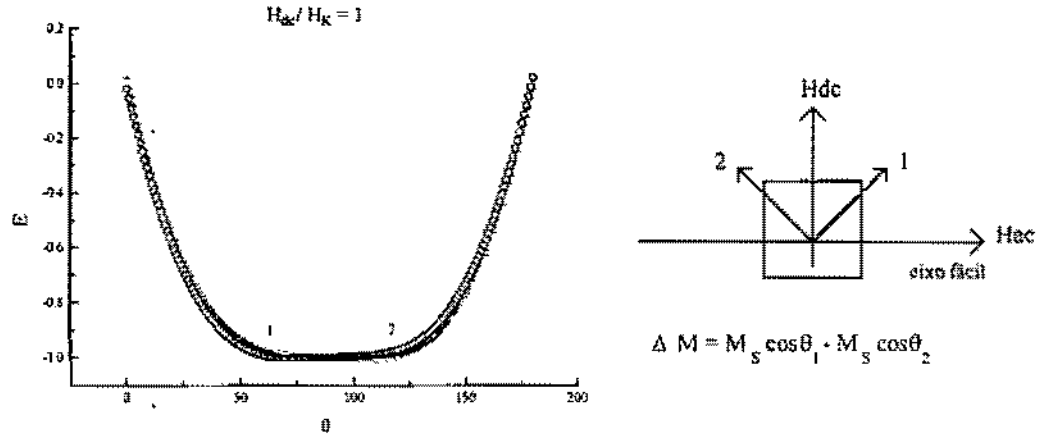


Figura A1.3. Solução numérica da equação (A1.4) para $H_{dc}/H_K = 1$.

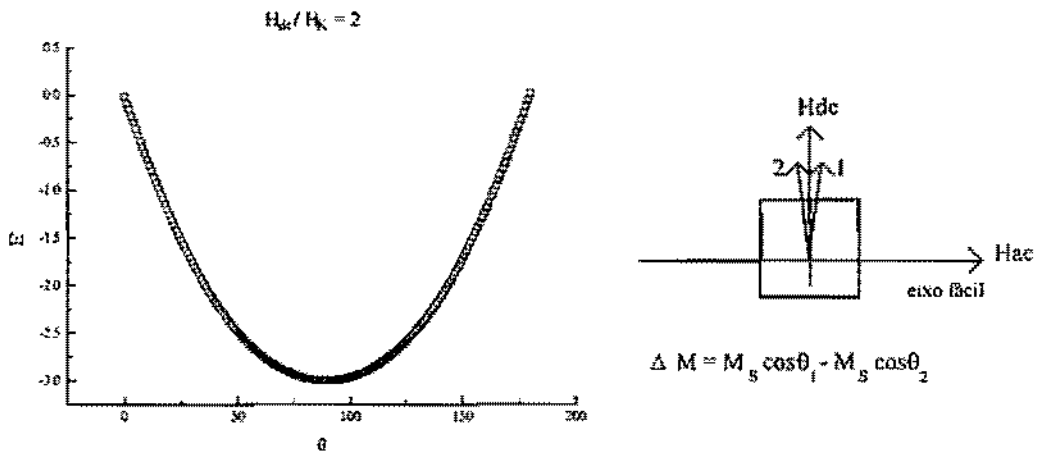


Figura A1.4. Solução numérica da equação (A1.4) para $H_{dc}/H_K = 2$.

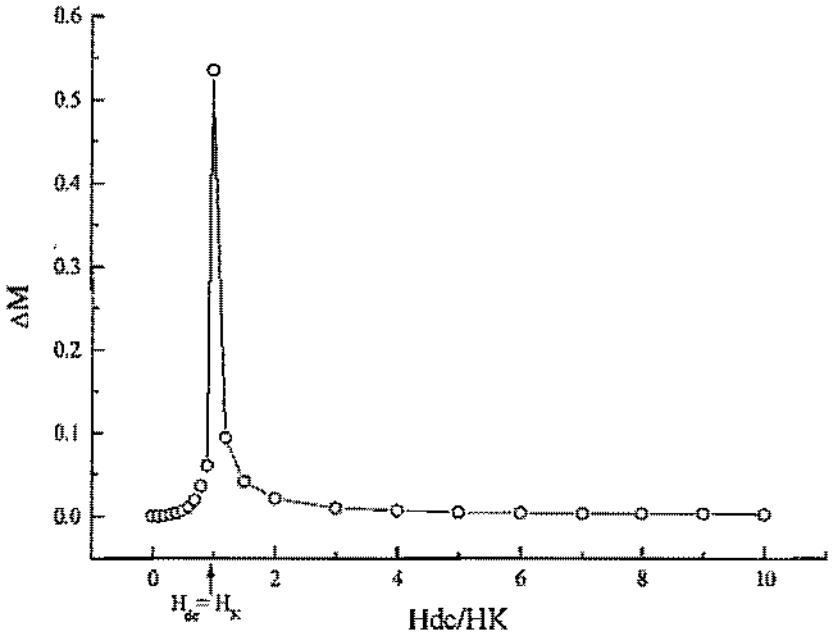


Figura A1.5. Curva de ΔM em função de H_{dc}/H_K.

Os valores de campo de anisotropia H_K apresentados no capítulo 5, foram obtidos tomando o valor de H_{dc} correspondente ao ponto de máximo na curva de (χ_tx H_{dc}). A principal vantagem deste método é o de permitir a determinação do campo de anisotropia (H_K) de cada camada da amostra, pois

a profundidade de penetração.da luz utilizada como sonda é, em geral, inferior à espessura de cada camada magnética.

Referência

[A1]. F.H.Salas Ramírez, "Acoplamiento Magnético en Multicapas Amorfas NdFeB/FeB y RCo/R'Co (R, R'= Y, Gd), Tese de Doutorado, Facultad de Ciencias de la Universidad de Oviedo (1993).