UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA

CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA E MAGNETOÓPTICA
DE FILMES FINOS AMORFOS
DE TERRA RARA-Fe-Co

Carlos Eduardo Santi

Orientador: Prof. Dr. Antonio Domingues dos Santos

Handwritten signatures: A., D., and A.S.

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

Handwritten signature

Comissão
Examinadora:

Prof. Dr. Luiz Carlos Sampaio Lima
Prof. Dr. Manfredo Harri Tabacniks

Handwritten date: 11/04/00

São Paulo

2000

SyCmo

1093112

530417

SZ35c

M

ex.1

SBI-IFUSP

305M810T4300

FICHA CATALOGRÁFICA

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

Santi, Carlos Eduardo

Caracterização Magnética e Magnetoóptica de
Filmes Finos Amorfo de Terra Rara Fe-Co
São Paulo, 2000.

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

Orientador: Prof. Dr. Antonio Domingues dos Santos
Área de Concentração: Magnetismo e Materiais
Magnéticos

Unitermos: 1. Efeito Kerr Magnetoóptico;
2. Filmes Finos Magnéticos; 3. Materiais Amorfo;
4. Magnetometria.

USP/IF/SBI-042/2000

À Ilka, minha esposa, que mesmo não sabendo ao certo o que são efeitos magnetoópticos ou anisotropias magnéticas, soube ser companheira e sempre me deu forças para concluir este trabalho.

- AGRADECIMENTOS -

Às vezes fico pensando nas histórias que contaria se alguém me perguntasse sobre este projeto, se alguém quisesse saber das dificuldades em seu desenvolvimento e dos momentos de alegria que tive. Acredito que uma das maneiras de relatar o que senti durante este projeto, é apresentar as pessoas com quem convivi e falar um pouco sobre sua participação.

Toninho, meu orientador e companheiro neste trabalho. Esteve presente em todos os momentos, possibilitando discussões frutíferas e me mostrando o que é ser pesquisador. É um exemplo a ser seguido!

Prof. Frank Missell, coordenador do LMM. Mesmo à distância, manteve-se sempre atento a este projeto e auxiliou em tudo o que foi possível.

Colegas do LMM (alunos, funcionários e professores). Usaram o bom humor para tornar os dias menos monótonos e o companheirismo para deixar o trabalho mais interessante.

Julio e Cida, meus pais. Possibilitaram a minha chegada até aqui e me incentivaram desde as primeiras palavras lidas em recortes de jornal, desde os meus primeiros dias na escola até as últimas palavras desta dissertação.

Denise e Paulo Rios, amigos dos momentos fáceis e das horas difíceis.

Aos meus amigos Marcelo, Laurence, Edson, Parmênides, Ismael e aos colegas de Joinville, por terem estado por perto durante a graduação e o mestrado.

Agências de financiamento: o CNPq, me concedeu a bolsa e a FAPESP, ajudou a equipar melhor o nosso laboratório.

Muitas outras pessoas apareceram e desapareceram ao longo dos anos em que estive envolvido com este projeto e, de algum modo, participaram da história deste trabalho e merecem minha gratidão.

A todos vocês, MUITO OBRIGADO!

- ÍNDICE -

- CAPÍTULO 1 -	1
Introdução	1
- CAPÍTULO 2 -	5
Materiais usados na gravação magnetoóptica	5
Anisotropia magnética perpendicular	7
Os processos de gravação e leitura	8
<i>Gravação</i>	8
<i>Leitura</i>	9
Fenômenos Magnetoópticos	11
O efeito Kerr	12
Cálculo da intensidade de luz no fotodiodo	15
Casos particulares	16
Teoria do campo médio	20
A teoria generalizada	22
Exemplos de cálculo via TCM	24
- CAPÍTULO 3 -	27
Técnicas experimentais	27
<i>Técnica de Produção dos filmes</i>	27
Sistema de Deposição	27
<i>Técnicas de caracterização</i>	31
Magnetômetro de Amostra Vibrante	31
SQUID	32
Magnetômetro a Efeito Kerr	34
O magnetômetro Kerr polar (MEK-pol)	35
<i>Sistema óptico</i>	35
<i>Arranjo mecânico</i>	39
<i>Sistema criogênico</i>	40
Testes com o magnetômetro	41
Eliminando diferenças matematicamente	43
<i>Medidas em função da temperatura</i>	46

- CAPÍTULO 4 -	48
Resultados experimentais e análise	48
Medidas no MAV	48
Medidas com SQUID	52
<i>AMOSTRA 13 - Tb₁₉Fe₈₁, com 800Å de espessura</i>	53
<i>AMOSTRA 2 - Tb₂₃(Fe₈₅Co₁₅)₇₇ com 1000Å de espessura</i>	55
<i>AMOSTRA 3 - Tb₂₇(Fe₈₅Co₁₅)₇₃, com 800Å de espessura</i>	57
<i>AMOSTRA 7 - Tb₂₃(Fe₉₀Co₁₀)₇₇, com 1200Å de espessura</i>	59
<i>Análise por teoria do campo médio</i>	60
Medidas no Kerr	63
<i>Medidas em função do ângulo do analisador</i>	63
Medidas a 30°	64
Medidas a 45°	64
Medidas a 60°	65
<i>Caracterização magnetoóptica</i>	68
Amostra 7 - Tb ₂₃ (Fe ₉₀ Co ₁₀) ₇₇	73
Outros exemplos	75
- CAPÍTULO 5 -	78
Conclusões	78
- BIBLIOGRAFIA -	82

- RESUMO -

Construímos um magnetômetro a efeito Kerr na configuração polar (MEK-pol) que permite fazer medidas com a amostra entre 7 e 400K em campos magnéticos de até 20kOe. Esse equipamento possibilita obter informações sobre a componente perpendicular da magnetização das amostras e foi adaptado a outro que fornece dados relativos a componente planar, aumentando sua capacidade de caracterização.

Para testar esse sistema, foram utilizados filmes finos amorfos de Tb-Fe e Tb-Fe-Co, com 20 a 30% de térbio, pois eles podem apresentar anisotropia magnética perpendicular ao plano do filme. Os filmes foram produzidos por *sputtering*, têm espessura entre 800Å e 1000Å e sua caracterização magnética foi feita com um magnetômetro de amostra vibrante (MAV), à temperatura ambiente e com um SQUID. Essas informações foram usadas como parâmetro para os testes com o MEK-pol.

A partir das equações de reflexão da luz nesse sistema, demonstramos que o MEK-pol permite obter informação sobre as componentes planar e perpendicular da magnetização, dando-lhe maior versatilidade. Além disso, desenvolvemos rotinas de programação para calcular, via teoria do campo médio, a magnetização de amostras em função da temperatura e mostramos que elas são bastante eficientes.

Os resultados dos testes com o MEK-pol demonstraram que o equipamento é estável, mesmo para medidas em baixas temperaturas e que é uma ferramenta importante na caracterização magnetoóptica de filmes finos.

- ABSTRACT -

We have built a polar Kerr effect magnetometer (MEK-pol) that works with an external magnetic field up to 20kOe and the sample temperature can be set from 7 up to 400K. This equipment provides information about the perpendicular magnetic component of the samples and was adapted to another that measures the planar component, improving its characterization capabilities.

Amorphous thin films of Tb-Fe and Tb-Fe-Co, with 20 - 30% of terbium can present perpendicular magnetic anisotropy and were used to test the system. They were produced by the sputtering method, are about 800Å thick and their magnetic characterization was performed with a vibrating sample magnetometer (VSM) and a SQUID magnetometer. This information was used as a parameter for the MEK-pol tests.

The equations of the light reflection in this system show that the MEK-pol provides information about the planar and perpendicular components of the magnetization, improving its versatility. We have also developed some programming routines, using the mean-field theory, to calculate the samples' magnetization as a function of the temperature and we showed their effectiveness.

The tests with the MEK-pol demonstrates that the equipment is stable, even in low temperatures and that it is an important tool in the magneto-optical characterization of thin films.

- CAPÍTULO 1 -

Introdução

Desde o início da década de 40, a gravação magnética tem sido um dos pilares da armazenagem de informações eletrônicas por todo o mundo e as fitas de áudio representaram a primeira e mais importante aplicação de um meio magnético nesse tipo de aplicação[1].

Essas fitas foram e, em alguns casos, ainda são amplamente utilizadas como artigo de consumo (fitas de áudio e vídeo) e na armazenagem de cópias de segurança de arquivos de computadores, por exemplo, para arquivar imagens fornecidas por satélites e outras aplicações, em que se precise guardar grande quantidade de informações a baixo custo.

Os discos rígidos magnéticos têm sido usados como dispositivos de armazenagem de informações na indústria da informática desde seu advento em 1957[2]. Com uma densidade areal praticamente duplicada a cada dois anos, eles foram e continuam sendo o meio mais usado para armazenagem de dados em computadores[3]. Outro dispositivo de armazenagem magnética, o disco flexível, teve seu lugar de honra garantido sempre que os termos: compacto, removível e razoável velocidade de acesso às informações gravadas foram solicitados.

Além de fornecer possibilidade segura de armazenagem de informações, os discos flexíveis, com sua modesta capacidade (menos de 2Mb em um disco de 3,5 polegadas de diâmetro) e razoável taxa de transferência, permitiram que arquivos e informações pudessem ser transferidas entre máquinas isoladas umas das outras. Por tudo isso, estes últimos 50 anos têm sido dominados pelo progresso e domínio de mercado dos dispositivos de gravação magnética e agora também encara o desafio de desenvolver a tecnologia de gravação óptica.

Assim como na gravação magnética, a principal área de aplicação dos sistemas de armazenagem óptica de dados é a informática[4]. Como os meios magnéticos, os discos ópticos podem possibilitar densidades de gravação da ordem de 10^7 bits/cm² ou mais. As vantagens dos meios ópticos é que, como os discos flexíveis, esses discos podem ser removidos do computador e transportados para outros lugares. Desse modo, as funções do disco rígido (alta capacidade, alta taxa de transferência e rápido acesso) podem ser combinadas às dos discos flexíveis (cópia de segurança e possibilidade de remoção da unidade) em uma única unidade de disco óptico.

As aplicações dos discos ópticos não se limitam ao uso em armazenagem de dados em computadores, há um mercado bastante promissor, que é o mercado fonográfico, com os CD's de áudio, introduzidos em 1983 e que se tornaram o padrão na indústria musical, isto para citar apenas um exemplo do potencial dessa tecnologia.

Ao contrário de sua concorrente magnética, a gravação óptica permite diferentes modos de armazenagem de dados que se diferenciam pelo tipo de material utilizado. Há discos que permitem apenas leitura (read only), apenas uma gravação (WORM) e os regraváveis[5,6].

Por exemplo, nas aplicações para áudio e vídeo (read only), a informação é gravada em um disco-matriz, que serve de molde para a transferência dos padrões de sua superfície para substratos de plástico, permitindo uma produção rápida, eficiente e barata. O mesmo processo é usado para a distribuição em massa de arquivos em discos tipo CD-ROM, que são usados para distribuir software, catálogos e outros tipos de bancos de dados grandes.

No caso dos discos de apenas uma gravação* (WORM), o usuário armazena seus dados de forma permanente em um único disco e ainda pode ter acesso rápido e aleatório a eles.

O último caso a ser citado é o de discos regraváveis, que envolve ligas à base de metais de transição e terras raras[7,8,9]. Seu processo de gravação está ligado à mudança nas características magnéticas desses materiais em função da temperatura e permite gravar e desgravar dados ou músicas quantas vezes for necessário ou desejável.

Com o objetivo de ampliar as técnicas de caracterização magnetoóptica de materiais em nosso laboratório, decidimos construir um magnetômetro Kerr na configuração polar (MEK-pol). Esse equipamento permite caracterizar filmes finos com anisotropia magnética perpendicular ao plano da amostra.

Assim, produzimos filmes finos amorfos que baseia-se em ligas de Tb-Fe-Co que, além de sua forte possibilidade de aplicação tecnológica, podem, ainda, apresentar anisotropia magnética perpendicular, possibilitando-nos testar o magnetômetro.

Pretendemos apresentar no capítulo 2, as bases conceituais de sistemas ópticos de armazenagem de dados, tendo nos discos magnetoópticos o principal foco de atenção. Alguns dos tópicos abordados são dedicados aos tipos de materiais usados em gravação magnetoóptica e suas propriedades. Também será incluída uma explicação do processo físico de gravação e leitura termomagnética e algumas conclusões acerca desses tópicos.

Uma apresentação física e matemática dos efeitos Kerr magnetoópticos, bem como a análise do comportamento do feixe de luz que interage com a amostra magnética, que serviu de

* Discos que permitem apenas uma gravação são chamados WORM (Write Once Read Many) que pode ser traduzido literalmente como "grava uma vez e lê várias".

base para boa parte deste trabalho, será incluída nesse capítulo.

Ele será finalizado com a apresentação dos cálculos usados para prever algumas características desses materiais para gravação magnetoóptica que baseiam-se na teoria do campo médio[10]. Esses cálculos permitem obter as temperaturas de Curie e de compensação, bem como as constantes de anisotropia e de troca desses materiais. Essa teoria será descrita em termos gerais e, ainda no capítulo 2, serão apresentados alguns exemplos em que ela pode ser aplicada.

As técnicas de produção das amostras e os equipamentos usados nas caracterizações magnética e magnetoóptica, representados pelo magnetômetro de amostra vibrante e SQUID, no primeiro caso e pelo magnetômetro Kerr polar no segundo, serão detalhados no capítulo 3.

O magnetômetro Kerr polar, parte importante deste trabalho, terá uma seção dedicada a suas partes constitutivas (óptica, mecânica e térmica) e outra aos testes realizados com ele, sendo estes apresentados de forma abrangente.

As medidas feitas para caracterizar os filmes nos vários equipamentos aparecem no capítulo 4, acompanhadas de uma análise comparativa entre os diversos resultados obtidos

Discutiremos, no capítulo 5, os resultados deste estudo de caracterização de ligas amorfas de metais de transição e terra rara, comparando-os aos materiais produzidos em escala comercial. Também com base neste estudo, apontaremos as qualidades e limitações do MEK-pol que desenvolvemos.

- CAPÍTULO 2 -

Materiais usados na gravação magnetoóptica

As ligas amorfas à base de terras raras e metais de transição são de grande interesse para a gravação magnetoóptica[11-16]. Em geral, essas ligas são do tipo $(\text{Tb}_y\text{Gd}_{1-y})_x(\text{Fe}_z\text{Co}_{1-z})_{1-x}$, com térbio e gadolínio representando as terras raras (TR) e ferro e cobalto, os metais de transição (MT). Na prática, os metais de transição representam 80% da liga, ou seja, $x \cong 0,2$. Na sub-rede do metal de transição, a fração de cobalto é pequena, sendo que $z \cong 0,9$ e entre os metais de terras raras o elemento dominante é o térbio ($y \cong 0,9$).

Como as terras raras reagem fortemente com o oxigênio, os filmes de TR-MT oxidam muito facilmente e têm baixa resistência à corrosão. Para garantir a integridade desses filmes e aumentar suas qualidades ópticas, eles são depositados entre duas camadas dielétricas, tais como $(\text{SiO}_x, \text{Si}_3\text{N}_4$ ou $\text{Al}_2\text{O}_3)$ [17-20].

A natureza amorfa desses materiais permite que sejam feitas variações contínuas em sua composição independente de regras de estequiometria, até que se obtenha as características desejadas ou o mais próximo possível delas.

Os métodos de deposição utilizados são *electron-beam* e *sputtering* RF e DC. Em geral, os substratos são resfriados (com água gelada ou nitrogênio líquido) para diminuir a mobilidade dos átomos depositados e inibir o crescimento de estruturas cristalinas. Alguns fatores como o tipo de gás usado no processo de *sputtering* (argônio, criptônio etc), a pressão durante a deposição, natureza e temperatura do substrato, entre outros, podem afetar substancialmente a composição e ordenamentos de curto alcance dos filmes depositados[21,22].

A topologia estrutural real desses materiais é pouco conhecida, mas medidas em TbFe_2 e GdCo_2 mostram algumas diferenças entre a coordenação dos átomos das terras raras e sua correspondente fase cristalina. Na fase amorfa não há dois sítios atômicos equivalentes e disto podem resultar alguns efeitos, como: uma distribuição na magnitude dos momentos magnéticos ou na magnitude e sinal da interação de troca, ou ainda, a possibilidade de a anisotropia local dominar o comportamento magnético de terras raras altamente anisotrópicas[23-28].

A liga de TR-MT mais simples é representada pelo Gd-Co. Nesse sistema, a anisotropia local no sítio de terra rara é nula, pois o Gd é um íon no estado S[29,30]. Como a sub-rede de Co é fortemente ferromagnética e o acoplamento entre o Gd e o Co é fracamente antiferromagnético, ocorrem comportamentos ferrimagnéticos simples.

Em ligas de Nd-Co e Tb-Co, a anisotropia aleatória de um sítio de terra rara em estado não S compete com a interação de troca para determinar a orientação do momento atômico da terra rara. Entretanto, de acordo com a regra de Hund, o momento médio da terra rara será orientado de forma diferente se o átomo for leve ou pesado. No caso do NdCo, o momento médio do Nd orienta-se no mesmo sentido que o do Co, portanto, essa liga é *speromagnética*. O Tb-Co é *sperimagnético*, pois, o momento médio da terra rara orienta-se antiparalelamente ao do metal de transição[4,30].

Um fenômeno que ocorre em ligas de Tb-Fe é o espalhamento na orientação dos momentos do metal de transição e dois fatores podem fazer com que isso ocorra: a distribuição na interação de troca entre átomos de Fe ou efeitos de anisotropia local dos sítios de terra rara na sub-rede de Fe.

O comportamento *speri*/ferrimagnético é uma das principais propriedades das mídias de gravação magnetoóptica. Entretanto, os processos de deposição mencionados anteriormente podem

fazer com que qualquer liga tenha uma anisotropia estrutural que varie de uma microestrutura colunar a efeitos mais sutis de ordenação de pares. Essa última fornece uma direção preferencial à anisotropia local em sítios de terra rara em estado não S, o que se traduz numa grande anisotropia magnética uniaxial macroscópica ($K_u > 0$) na direção do crescimento.

Anisotropia magnética perpendicular

Uma propriedade importante das ligas amorfas de TR-MT é a anisotropia magnética perpendicular. A magnetização nesses filmes favorece a orientação perpendicular, embora não haja nenhuma cristalinidade ou microestrutura que possa ser responsável por esse comportamento. Vários trabalhos foram desenvolvidos na tentativa de se chegar a algum acordo sobre os mecanismos que levam essas ligas a apresentar esse tipo de anisotropia[31-33].

Alguns pesquisadores relataram resultados experimentais acerca dos mecanismos que levam a essa anisotropia e que sugerem alguns caminhos que podem ser seguidos ao se dedicar ao estudo desses materiais[34-36].

Acredita-se que uma ordem atômica de curto alcance estabelecida na deposição do filme, associada a uma quebra de simetria em sua superfície, força uma orientação perpendicular. Essa propriedade associada ao comportamento speri/ferrimagnético possibilita a gravação magnetoóptica.

Para saber de que modo estas propriedades são relevantes para a gravação magnetoóptica, devemos discorrer um pouco sobre esta técnica.

Os processos de gravação e leitura

Na gravação magnética tradicional, a reversão da magnetização local é conseguida com uma cabeça magnética que fica em contato com a mídia e sobre a qual aplica altos campos magnéticos[37] (da ordem de 1kOe^*). Na gravação termomagnética ou magnetoóptica, isto é feito aquecendo-se localmente a mídia com um laser que pulsa em alta potência e é focado sobre ela. Quando chega próximo da temperatura de Curie, a coercividade é baixa e a reversão magnética é conseguida aplicando-se um pequeno campo magnético.

Gravação

No processo de gravação, a mídia magnética recebe durante menos de $1\mu\text{s}$, um pulso de luz que é imediatamente convertido em calor. Localmente, a temperatura sobe até perto da temperatura de Curie e, ao mesmo tempo, um campo magnético de 100 a 400Oe é aplicado na direção correspondente ao sinal desejado; por exemplo, para cima *bit* 1 e para baixo *bit* 0. Deste modo inicia-se a gravação de dados invertendo-se o sentido das magnetizações locais.

Quando o pulso de laser é desligado, a mídia resfria-se e o campo coercivo aumenta rapidamente. Cria-se uma forte competição na parede de domínio recém criada, entre a energia da parede (σ_w) que age como uma força de contração e a energia coerciva, de caráter friccional, que tenta fixá-la.

No final, o domínio tem seu diâmetro[30] estabilizado em torno de:

* Neste caso, a observação está sendo feita com relação às mídias de alta densidade, pois estas são concorrentes diretas das mídias magnetoópticas em termos de densidade de gravação. Um exemplo a ser citado é o CoCr, cujo campo coercivo pode chegar a 1.2kOe .

$$d_{min} \approx \frac{\sigma_w}{\mu_0 M_s H_c} = \frac{4\sqrt{AK_u}}{\mu_0 M_s H_c} \quad [2.01]$$

que constitui a limitação da mídia para a existência de pequenos domínios estáveis. Desta equação pode-se tirar que quanto maior o campo coercivo, menor o domínio magnético.

Em algumas ligas de terra rara - metal de transição, com campos coercivos de 8 a 10kOe, pode-se conseguir pequenos domínios ($\sim 100\text{\AA}$) e assim, aumentar a capacidade de armazenagem.

Infelizmente, há também uma limitação no tamanho do domínio dada pela óptica. Este número é metade do diâmetro de um anel de difração de Airy, ou seja:

$$\phi \cong \frac{0,6\lambda}{NA} \quad [2.02]$$

sendo que λ é o comprimento de onda do laser e NA é a abertura numérica da lente objetiva.

Através desta equação fica claro o interesse em se trabalhar com pequenos comprimentos de onda e grandes aberturas numéricas. Mas, mesmo na faixa do UV, o menor diâmetro estimado é da ordem de $0,15\mu\text{m}$. De qualquer modo, os fenômenos de difração, fazem com que a óptica seja o fator limitante para as alta densidades de gravação.

Leitura

Este processo utiliza o efeito Kerr polar, que pode ser descrito da seguinte maneira. Uma onda linearmente polarizada que interage com uma mídia magnética, pode ser interpretada como uma combinação de duas ondas circularmente polarizadas, uma à direita e outra à esquerda. Como estas ondas não "vêm"

o mesmo índice de refração, elas não se propagam com a mesma velocidade e também sofrem diferentes absorções.

Após a reflexão, estas ondas se recombinaem e formam uma onda elipticamente polarizada, caracterizada por (Θ_k) uma rotação de seu plano de polarização devido a diferença de fase e por (η_k) uma elipticidade devido a diferença na absorção.

Assumindo que a elipticidade possa ser desprezada, ainda resta a rotação Θ_k , cujo sinal e magnitude dependem das magnetizações das sub-redes da terra rara e do metal de transição através da relação:

$$\Theta_k = A \cdot M_{rr} + B \cdot M_{mm} \quad [2.03]$$

A e B são os coeficientes magnetoópticos que levam em conta as interações elétricas e magnéticas via termos não diagonais do tensor permissividade. Na verdade, a gravação e leitura magnetoóptica ocorrem acima da temperatura ambiente e, nessa região, a principal contribuição a Θ_k vem dos átomos de metal de transição. As contribuições dos átomos de terras raras pesadas (Gd, Tb e Dy) é relativamente pequena na faixa do visível e do infra vermelho próximo. Em contrapartida, a transição eletrônica $f \leftrightarrow d$ em curtos comprimentos de onda torna as contribuições das terras raras leves (Pr, Nd) mais importantes.

Verifica-se com isso que no processo de leitura é o ângulo (Θ_k) que é detectado e transformado em sinal elétrico.

Fenômenos magnetoópticos

Os sistemas de armazenagem de informações, sejam dados, textos ou de qualquer outra espécie, têm grande importância em vários ramos de atividades. Os fenômenos magnetoópticos, apesar de serem conhecidos desde meados do século passado têm, atualmente, levado vários pesquisadores a se dedicarem ao seu estudo. Na segunda metade da década de 70, surgiu uma nova tecnologia de armazenagem de informações chamada *gravação magnetoóptica*.

A gravação magnetoóptica, embora bastante nova se comparada à gravação magnética, permite uma maior capacidade de armazenagem, mas ainda será necessário muito trabalho até que possa superá-la em termos comerciais.

O termo magnetoóptica é usado para descrever o processo pelo qual o eixo de polarização de um feixe luminoso linearmente polarizado é girado ao interagir com um material magnetizado. Há duas possibilidades de se estudar as interações desse feixe de luz com o material: a primeira é analisar o feixe depois de atravessar a amostra magnetizada e a outra é analisar o feixe refletido em sua superfície.

Nesses casos, chama-se *efeito Faraday* aquele relacionado à rotação da polarização de um feixe de luz após atravessar um material magnetizado e *efeito Kerr*, quando a rotação ocorre na reflexão. Além disso, podemos medir o efeito Kerr em três configurações distintas que dependem da direção da magnetização e da polarização da luz em relação ao plano luminoso e à superfície refletora. Essas configurações são chamadas de *polar*, *longitudinal* e *transversal*, esta última também chamada de *equatorial*.

No efeito Kerr polar, a magnetização é perpendicular à superfície refletora, no longitudinal, a magnetização é paralela à superfície refletora e paralela ao plano luminoso.

No efeito Kerr transversal, a magnetização também é paralela à superfície refletora, mas é perpendicular ao plano luminoso.

Na figura [3.1] são apresentadas as três possíveis configurações do efeito Kerr mencionadas anteriormente.

FIG. 2.1 - Configurações do efeito Kerr: (a) longitudinal, (b) polar e (c) transversal.

Neste trabalho foi usado um magnetômetro Kerr polar e será mostrado que alterando a configuração desse equipamento é possível obter informações a respeito das componentes magnéticas no plano dos filmes finos ou perpendicular a ele. A seguir será apresentado o embasamento teórico para esse estudo.

O efeito Kerr

Uma montagem experimental que permite detectar os efeitos Kerr inclui uma fonte luminosa monocromática, polarizadores, um fotodetector e um gerador de campo magnético que possa magnetizar a amostra.

O feixe luminoso monocromático será representado pelo campo elétrico de uma onda plana e, ao passar pelo polarizador, o campo incidente pode ser representado por:

$$\vec{E}^i = \begin{pmatrix} E_p^i \\ E_s^i \end{pmatrix} \quad \text{onde,} \quad \begin{cases} E_p^i = E_o \cdot \cos \theta_p \\ E_s^i = E_o \cdot \sin \theta_p \end{cases} \quad [2.04]$$

Os índices p e s representam, respectivamente, as componentes paralela e perpendicular ao plano luminoso. O sobrescrito i indica a onda incidente, θ_p é o ângulo que o polarizador forma com a direção p e E_o é o módulo do campo elétrico.

A reflexão é representada pela matriz de Fresnel $\mathbb{R}$ e, após a reflexão na superfície da amostra, o feixe será representado por:

$$\begin{pmatrix} E_p^r \\ E_s^r \end{pmatrix} = \mathbb{R} \begin{pmatrix} E_p^i \\ E_s^i \end{pmatrix} \quad \text{e} \quad \mathbb{R} = \begin{pmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{pmatrix} \quad [2.05]$$

Os elementos da matriz de Fresnel são [38, 39]:

$$r_{pp} = \frac{n_2 \cos \theta_1 - n_1 \cos \theta_2}{n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2} + \frac{i 2 n_1 n_2 \cos \theta_1 \sin \theta_2 m_x Q}{(n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2)^2} \quad [2.06]$$

$$r_{ps} = - \frac{i n_1 n_2 \cos \theta_1 (m_y \sin \theta_2 + m_z \cos \theta_2) Q}{\cos \theta_2 (n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2) (n_1 \cos \theta_1 + n_2 \cos \theta_2)} \quad [2.07]$$

$$r_{sp} = \frac{i n_1 n_2 \cos \theta_1 (m_y \sin \theta_2 - m_z \cos \theta_2) Q}{\cos \theta_2 (n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2) (n_1 \cos \theta_1 + n_2 \cos \theta_2)} \quad [2.08]$$

$$r_{ss} = \frac{n_1 \cos \theta_1 - n_2 \cos \theta_2}{n_1 \cos \theta_1 + n_2 \cos \theta_2} \quad [2.09]$$

Nas equações de [2.06] a [2.09], n_1 e n_2 são os índices de refração complexos dos meios 1 e 2, respectivamente, Q é a constante magneto-óptica. Os ângulos de incidência e de refração do feixe são θ_1 e θ_2 , respectivamente e $\sin \theta_2$ e $\cos \theta_2$ são números complexos definidos pelas relações:

$$n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2, \quad \sin^2 \theta_2 + \cos^2 \theta_2 = 1 \quad \text{e} \quad \Re(n_2 \cos \theta_2) > 0 \quad [2.10]$$

É interessante também observar que as componentes m_y e m_z , responsáveis, respectivamente, pelos efeitos Kerr longitudinal e polar, aparecem simultaneamente em ambos os

coeficientes r_{ps} e r_{sp} . Assim, apenas a incidência normal ($\theta_1 = \theta_2 = 0$) permite observar exclusivamente o efeito polar.

O último passo é detectar o feixe após sua passagem pelo analisador. As componentes do campo elétrico da onda que chega ao fotodetector são dadas por:

$$\vec{E}^d = \begin{pmatrix} E_p^d \\ E_s^d \end{pmatrix} \quad \text{onde,} \quad \begin{cases} E_p^d = E_p^r \cdot \cos \theta_a \\ E_s^d = E_s^r \cdot \sin \theta_a \end{cases} \quad [2.11]$$

O sobrescrito d indica o campo elétrico que chega ao detector e θ_a é o ângulo do analisador medido em relação à direção p , ou seja, em relação ao plano luminoso.

Na prática, o que se mede não é o campo elétrico, mas a intensidade luminosa, isto é, mede-se o quadrado do módulo do campo elétrico. A equação a seguir apresenta a intensidade da onda que chega ao detector.

$$I = \left| \vec{E}^d \right|^2 \quad [2.12]$$

Considerando o sistema de coordenadas a seguir e as componentes do campo elétrico que chega ao detector, é possível analisar alguns casos específicos de interesse para este trabalho.

Ao lado estão representados os eixos paralelo e perpendicular ao plano de incidência, os eixos do polarizador e do analisador e os ângulos relacionados com suas posições.

Considerando-se, por exemplo, que o feixe que incide sobre a amostra tem polarização p e usando o esquema indicado, verifica-se que θ_p

deverá ser zero. Por sua vez, θ_a está relacionado com a direção angular em que o feixe será "observado", portanto, este ângulo deverá ser alterado de acordo com a configuração de medida.

A seguir, será calculada a intensidade luminosa que chega ao detector em função dos ângulos θ_p e θ_a e dos coeficientes da matriz de Fresnel.

Cálculo da intensidade de luz no fotodiodo

A intensidade luminosa é dada pelo quadrado do módulo do campo elétrico que incide no fotodiodo. Inicialmente não serão impostas restrições às equações permitindo seu desenvolvimento geral. Em uma segunda etapa, serão analisados os casos em que o feixe incidente tem polarização nas direções p ou s e serão consideradas várias direções do analisador.

Usando [2.04], [2.05] e os elementos da matriz de Fresnel, pode-se rescrever a equação [2.11] da seguinte forma:

$$\begin{aligned}\vec{E}^d &= E_p^r \cos \theta_a \cdot \hat{e}_p + E_s^r \sin \theta_a \cdot \hat{e}_s \\ \begin{cases} E_p^d = E_o (r_{pp} \cos \theta_p + r_{ps} \sin \theta_p) \cos \theta_a \\ E_s^d = E_o (r_{sp} \cos \theta_p + r_{ps} \sin \theta_p) \sin \theta_a \end{cases} \end{aligned} \quad [2.13]$$

Multiplicando $\vec{E}^d$ por seu complexo conjugado e usando as relações trigonométricas de [2.14] a [2.16], obtemos a equação 3.14 que fornece a intensidade de luz, I_o , no fotodiodo.

$$\sin \alpha \cos \alpha = \frac{1}{2} \sin 2\alpha \quad [2.14]$$

$$\sin^2 \alpha = \frac{1}{2} [1 - \cos 2\alpha] \quad [2.15]$$

$$\cos^2 \alpha = \frac{1}{2} [1 + \cos 2\alpha] \quad [2.16]$$

$$\begin{aligned}
I_o = & \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{pp} r_{pp}^* [1 + \cos 2\theta_p] + r_{pp} r_{ps}^* [\text{sen} 2\theta_p] \} [1 + \cos 2\theta_a] + \\
& + \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{pp} r_{sp}^* [1 + \cos 2\theta_p] + r_{pp} r_{ps}^* [\text{sen} 2\theta_p] \} [\text{sen} 2\theta_a] + \\
& + \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{ps} r_{pp}^* [\text{sen} 2\theta_p] + r_{ps} r_{ps}^* [1 - \cos 2\theta_p] \} [1 + \cos 2\theta_a] + \\
& + \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{ps} r_{sp}^* [\text{sen} 2\theta_p] + r_{ps} r_{ss}^* [1 - \cos 2\theta_p] \} [\text{sen} 2\theta_a] + \\
& + \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{sp} r_{pp}^* [1 + \cos 2\theta_p] + r_{sp} r_{ps}^* [\text{sen} 2\theta_p] \} [\text{sen} 2\theta_a] + \\
& + \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{sp} r_{sp}^* [1 + \cos 2\theta_p] + r_{sp} r_{ss}^* [\text{sen} 2\theta_p] \} [1 - \cos 2\theta_a] + \\
& + \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{ss} r_{pp}^* [\text{sen} 2\theta_p] + r_{ss} r_{ps}^* [1 - \cos 2\theta_p] \} [\text{sen} 2\theta_a] + \\
& + \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{ss} r_{sp}^* [\text{sen} 2\theta_p] + r_{ss} r_{ss}^* [1 - \cos 2\theta_p] \} [1 - \cos 2\theta_a]
\end{aligned} \tag{2.17}$$

A seguir, serão apresentados alguns casos particulares da equação da intensidade no fotodiodo.

Casos particulares

Os casos a seguir apresentam as possibilidades de medidas que se tem com um arranjo experimental como o utilizado neste trabalho. Ao alterar a orientação do polarizador, do analisador ou de ambos, pode-se tirar informações do sinal que chega ao fotodiodo relacionadas com os elementos da matriz de Fresnel.

Serão abordadas as situações em que o feixe incide com polarização *p* ou *s* e, para cada uma dessas orientações, serão estudados os feixes em várias condições do analisador. Também serão apresentados os casos simétricos, ou seja, o analisador será girado no sentido horário ou antihorário e serão consideradas as duas configurações.

As expressões matemáticas para cada um desses casos são:

1. POLARIZAÇÃO S $\theta_p = \frac{\pi}{2}$

Equação geral da intensidade:

$$I_o = \frac{1}{4} E_o^2 \{ 2r_{ps} r_{ps}^* [1 + \cos 2\theta_a] + 2r_{ps} r_{ss}^* [\text{sen} 2\theta_a] + 2r_{ss} r_{ps}^* [\text{sen} 2\theta_a] + 2r_{ss} r_{ss}^* [1 - \cos 2\theta_a] \}$$

Orientações do analisador:

1.a) $\theta_a = \frac{\pi}{2}$

$$I_o = E_o^2 \cdot r_{ss} r_{ss}^*$$

1.b) $\theta_a = 0$

$$I_o = E_o^2 \cdot r_{ps} r_{ps}^*$$

1.c) $\theta_a = \pm \frac{\pi}{4}$

$$I_o^\pm = \frac{1}{4} E_o^2 \{ 2r_{ps} r_{ps}^* \pm 2r_{ps} r_{ss}^* \pm 2r_{ss} r_{ps}^* + 2r_{ss} r_{ss}^* \}$$

1.d) $\theta_a = \pm \frac{\pi}{3}$

$$I_o^\pm = \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{ps} r_{ps}^* \pm \sqrt{3} r_{ps} r_{ss}^* \pm \sqrt{3} r_{ss} r_{ps}^* + 3r_{ss} r_{ss}^* \}$$

1.e) $\theta_a = \pm \frac{\pi}{6}$

$$I_o^\pm = \frac{1}{4} E_o^2 \{ 3r_{ps} r_{ps}^* \pm \sqrt{3} r_{ps} r_{ss}^* \pm \sqrt{3} r_{ss} r_{ps}^* + r_{ss} r_{ss}^* \}$$

2. POLARIZAÇÃO P $\theta_p = 0$

Equação geral da intensidade:

$$I_o = \frac{1}{4} E_o^2 \{ 2r_{pp} r_{pp}^* [1 + \cos 2\theta_a] + 2r_{pp} r_{sp}^* [\text{sen} 2\theta_a] + 2r_{sp} r_{pp}^* [\text{sen} 2\theta_a] + 2r_{sp} r_{sp}^* [1 - \cos 2\theta_a] \}$$

Orientações do analisador:

2.a) $\theta_a = \frac{\pi}{2}$

$$I_o = E_o^2 \cdot r_{sp} r_{sp}^*$$

2.b) $\theta_a = 0$

$$I_o = E_o^2 \cdot r_{pp} r_{pp}^*$$

2.c) $\theta_a = \pm \frac{\pi}{4}$

$$I_o^\pm = \frac{1}{4} E_o^2 \{ 2r_{pp} r_{pp}^* \pm 2r_{pp} r_{sp}^* \pm 2r_{sp} r_{pp}^* + 2r_{sp} r_{sp}^* \}$$

2.d) $\theta_a = \pm \frac{\pi}{3}$

$$I_o^\pm = \frac{1}{4} E_o^2 \{ r_{pp} r_{pp}^* \pm \sqrt{3} r_{pp} r_{sp}^* \pm \sqrt{3} r_{sp} r_{pp}^* + 3r_{sp} r_{sp}^* \}$$

2.e) $\theta_a = \pm \frac{\pi}{6}$

$$I_o^\pm = \frac{1}{4} E_o^2 \{ 3r_{pp} r_{pp}^* \pm \sqrt{3} r_{pp} r_{sp}^* \pm \sqrt{3} r_{sp} r_{pp}^* + r_{sp} r_{sp}^* \}$$

Em ambos os casos, o asterisco (*) sobre os elementos da matriz de Fresnel indica o complexo conjugado.

Combinando-se os resultados simétricos em relação ao ângulo do analisador, pode-se obter informações a respeito das componentes m_x , m_y e m_z da amostra.

Para um feixe de luz que incide com polarização p e passa pelo analisador colocado em $+45^\circ$ e em -45° , a intensidade luminosa, em cada orientação do analisador é dada pela expressão (2.c). Somando e subtraindo essas quantidades, obtém-se I_{soma} e I_{subt} , respectivamente.

$$I_{soma} = E_o^2 \{ r_{pp} r_{pp}^* + r_{sp} r_{sp}^* \} \quad I_{subt} = E_o^2 \{ r_{pp} r_{sp}^* + r_{sp} r_{pp}^* \}$$

É possível evidenciar os parâmetros relevantes dos elementos da matriz de Fresnel apresentados nas equações de [2.06] a [2.09] pelas equações de [2.18] a [2.21][40].

$$r_{pp} = r_p + An_2 \sin \theta_2 m_x Q \quad [2.18]$$

$$r_{ps} = -Bn_2 (m_y \sin \theta_2 + m_z \cos \theta_2) Q \quad [2.19]$$

$$r_{sp} = Bn_2 (m_y \sin \theta_2 - m_z \cos \theta_2) Q \quad [2.20]$$

$$r_{ss} = r_s \quad [2.21]$$

Rescrevendo I_{soma} e I_{subt} com os novos termos, obtém-se as seguintes relações:

$$I_{soma} = r_p r_p^* + (r_p A^* n_2^* \sin^* \theta_2 + r_p^* A n_2 \sin \theta_2) m_x Q + (...) Q^2 \quad [2.22]$$

$$I_{subt} = (r_p B^* n_2^* \sin^* \theta_2 + r_p^* B n_2 \sin \theta_2) m_y Q - (r_p B^* n_2^* \cos^* \theta_2 + r_p^* B n_2 \cos \theta_2) m_z Q + (...) Q^2 \quad [2.23]$$

Os termos quadráticos são desprezíveis se comparados com os termos de primeira ordem. Assim, ao somar as intensidades de luz quando o analisador é colocado a $+45^\circ$ e -45° , sobram apenas os termos relativos a componente m_x e, ao subtrair esses termos, além dos termos quadráticos que são desprezíveis, aparecem as componentes m_y e m_z , simultaneamente.

Para as amostras usadas neste trabalho, é possível considerar que tenham anisotropia magnética formando um ângulo

de $\sim 10^\circ$ com a direção perpendicular ao plano do filme, o que parece bastante razoável pelas medidas obtidas com o MAV, que serão apresentadas no capítulo 4. Considerando-se, ainda, que o índice de refração da camada magnetoóptica* é $n_2 \cong (3+i3)$, verifica-se que os termos em m_y são da ordem de 1% do sinal de m_z , podendo, portanto, ser desprezados. Assim, ao somar e subtrair as medidas obtidas com o analisador colocado em ângulos simétricos, pode-se separar as componentes perpendiculares das componentes planares da magnetização.

* Este valor foi retirado da referência [1]. Outro valor encontrado na mesma referência é $n=3+i8$.

Teoria do campo médio

Nesta seção, descreveremos a teoria do campo médio[10] usada no cálculo da magnetização de materiais ferrimagnéticos amorfos[41-43], mais especificamente, das ligas à base de terras raras (TR) e metais de transição (MT) usadas na gravação termomagnética.

Devemos salientar que neste projeto, trabalhamos com amostras sperimagnéticas e não ferrimagnéticas, por isso, algumas adaptações foram feitas para se poder utilizar a teoria do campo médio. Um ponto importante é que como há distribuição espacial dos momentos atômicos do térbio e do ferro, o que se usa não é seu momento magnético total, mas um momento efetivo (médio). Este procedimento permite usar essa teoria com as amostras que estamos estudando. Tendo sempre em mente esta adaptação, faremos a descrição da teoria usando o termo ferrimagneto, mas sabendo que ela será usada com sperimagnetos.

Os ferrimagnetos são compostos de pelo menos duas espécies magnéticas diferentes e, dependendo dos pares de íons considerados, a integral de troca pode ser positiva ou negativa. Essa característica leva à formação de duas ou mais sub-redes de espécies magnéticas que, quando o ferrimagneto está a uma temperatura constante[21,22], magnetizam-se uniformemente em direções e sentidos não necessariamente iguais. Considerando-se o caso mais simples, apenas duas sub-redes, elas estarão magnetizadas antiparalelamente, ou seja, suas magnetizações terão direções iguais, mas sentidos opostos.

Filmes finos de ligas amorfas de TR-MT podem exibir anisotropia magnética microscópica perpendicular ao plano do filme, tornando-se úteis em aplicações de armazenagem de informações[7]. Por serem ferrimagnéticas, possuem uma temperatura de compensação (T_{comp}) na qual o momento magnético

médio do material se anula. Fazendo a escolha conveniente da composição da amostra, a temperatura de compensação pode ter seu valor levado para as proximidades da temperatura ambiente, para evitar que os dados gravados sejam apagados por qualquer campo magnético, pois na temperatura de compensação, os ferrrimagnetos possuem alta coercividade.

Quando as várias sub-redes de um ferromagneto estão fortemente acopladas entre si, suas temperaturas de Curie (T_c) são iguais. Pode-se dizer, em outras palavras, que a transição de fase entre o estado magneticamente ordenado e o estado paramagnético ocorre à mesma temperatura para todas as sub-redes.

A despeito da unicidade da temperatura de Curie, cada uma das sub-redes apresenta um comportamento diferente da magnetização em função da temperatura, fazendo com que a magnetização de saturação total (M_s) tenha características bastante complexas quando analisada entre zero Kelvin e a temperatura de Curie.

O estudo da gravação termomagnética exige o desenvolvimento de um modelo que explique o comportamento de $M_s(T)$ nas ligas de TR-MT. A teoria do campo médio (TCM) fornece uma solução simples para isso, mas alguns modelos apresentam problemas em sua análise, tais como:

- ◊ em alguns casos, a presença de átomos inertes nos filmes, como o argônio, é desconsiderada.
- ◊ não são considerados os casos em que há duas ou mais sub-redes magnéticas de metal de transição.
- ◊ possíveis erros sistemáticos na estimativa da densidade ou volume das amostras não são considerados.

Procurando evitar esses problemas, será apresentado um modelo para a TCM que permite estudar ligas amorfas de TR-MT com o menor número possível de parâmetros ajustáveis[10]. Este

modelo será aplicado a ligas amorfas com dois ou mais elementos.

A teoria generalizada

Considerando um sistema com n componentes, no qual X_i é a fração atômica do i -ésimo componente, a magnetização de saturação por unidade de volume à temperatura T será dada por:

$$I_s(T) = N_a \mu_B \sum_{i=1}^n X_i g_i \bar{S}_i(T) \quad [2.24]$$

Neste caso foi usado $I_s(T)$ para a saturação, pois representa $4\pi \cdot M_s(T)$ no sistema de unidades cgs., sistema escolhido para o desenvolvimento desses cálculos. Na equação [2.24], N_a é o número total de átomos por unidade de volume, μ_B é o magneton de Bohr, g_i o fator giromagnético do átomo i e $\bar{S}_i(T)$ é o máximo valor do momento angular total efetivo do átomo i à temperatura T .

A dependência térmica do momento angular total efetivo pode ser representada em termos da função de Brillouin.

$$B_J(x) = \frac{2J+1}{2J} \coth\left(\frac{(2J+1)}{2J}x\right) - \frac{1}{2J} \coth\left(\frac{1}{2J}x\right) \quad [2.25]$$

Fisicamente, esta função representa a distribuição térmica do momento angular total em torno de um eixo escolhido arbitrariamente (em geral, usa-se o eixo z) e, portanto, pode assumir valores entre -1 e $+1$. Na equação [2.26] está representada $\bar{S}_i(T)$.

$$\bar{S}_i(T) = S_i B_{S_i}(x), \text{ com } x = \frac{\mu_B g_i H_i S_i}{kT}. \quad [2.26a]$$

Assim,

$$\bar{S}_i(T) = S_i \left[\frac{2S_i+1}{2S_i} \coth\left(\frac{(2S_i+1)\mu_B g_i H_i}{2kT}\right) - \frac{1}{2S_i} \coth\left(\frac{\mu_B g_i H_i}{2kT}\right) \right] \quad [2.26b]$$

ou

$$\bar{S}_i(T) = \left[\left(S_i + \frac{1}{2} \right) \coth \left[\left(S_i + \frac{1}{2} \right) \frac{\mu_B g_i H_i}{kT} \right] - \frac{1}{2} \coth \left(\frac{\mu_B g_i H_i}{2kT} \right) \right] \quad [2.26c]$$

Quando $S_i \mu_B g_i H_i \ll kT$, esta equação pode ser expandida e simplificada, passando a ser representada por:

$$\bar{S}_i(T) \approx \frac{S_i(S_i+1)\mu_B g_i H_i}{3kT} \quad [2.27]$$

Para chegar à expressão [2.27], deve-se partir da equação de Brillouin e usar a expansão em série de Taylor da função $\coth(x)$, dada por $\coth(x) \approx \frac{1}{x} + \frac{x}{3}$. Assim, demonstra-se que:

$$\lim_{x \rightarrow 0} B_J(x) \approx \frac{J+1}{3J} x \quad [2.28]$$

O campo magnético médio (H_i) que o átomo i experimenta à temperatura T , é dado por:

$$H_i(T) = H_{apl} + \sum_{j=1}^n \omega_{ij} \bar{S}_j(T) \quad [2.29]$$

Na equação [2.29], os valores ω_{ij} são os coeficientes do campo médio independente da temperatura e sua expressão completa é:

$$\omega_{ij} = \frac{2}{\mu_B g_i} \sum_k J_{ijk} Z_{ijk} \quad [2.30]$$

Neste caso, J_{ijk} é a energia de troca independente da temperatura entre um átomo i e um átomo j que é seu k -ésimo primeiro vizinho e Z_{ijk} é o número de átomos j que são os k -ésimos primeiros vizinhos de um átomo i . Em ligas cristalinamente desordenadas ou amorfas, Z_{ijk} pode ser calculado por $Z_{ijk} = N_{cik} X_j$, onde N_{cik} é o número total de k -ésimos primeiros vizinhos do átomo i (o número de coordenação da k -

ésima camada). A soma na equação [2.30] pode ser aproximada por:

$$\sum_k J_{ijk} Z_{ijk} = J_{ij}(\text{efetivo}) N_{ci}(\text{efetivo}) X_i \quad [2.31]$$

A energia de troca efetiva J_{ij} pode ser estimada a partir das equações [2.30] e [2.31], assumindo que o valor de N_{ci} seja 12[44,45]. Também é necessário estimar o número de átomos por unidade de volume, N_a , levando em consideração que, nos sistemas metálicos, o volume por átomo é quase independente da estrutura e que a densidade de materiais cristalinos decresce de 2% a 8% quando este se torna amorfo[6].

$$N_a = 0,95 \left(\sum_{i=1}^n X_i v_i \right)^{-1} \quad [2.32]$$

A equação [2.32] permite calcular N_a sabendo que v_i é o volume por átomo das espécies do tipo i .

Exemplos de cálculo via TCM

As equações anteriormente apresentadas foram utilizadas para se criar algumas rotinas de programação em linguagem C e foram comparados alguns cálculos com resultados experimentais. Inicialmente, foram utilizados dados experimentais da literatura e depois foram feitas comparações com resultados obtidos em nossas amostras.

Para a execução dos cálculos, é necessário que se tenha algumas informações básicas das amostras, tais como, os elementos que a compõem e em que proporção, mas também é interessante conhecer parâmetros relacionados com os elementos que compõem a amostra individualmente, como o spin e fator giromagnético que podem ser obtidos em textos sobre física do

estado sólido, ou coletivamente, por exemplo, dados sobre a interação de troca entre os elementos.

Algumas dessas informações podem ser obtidas com mais facilidade, outras nem tanto. Nos casos em que o conhecimento de algum parâmetro é incerto, pode-se recorrer à literatura e utilizar os valores encontrados como parâmetros de inicialização ou "chutes iniciais". O refinamento dos cálculos pode ser feito com alguma rotina que minimize a diferença entre os resultados medidos e calculados. Tais rotinas utilizam-se de ajustes por mínimos quadrados e devem ser adaptadas à situação em questão.

FIG. 2.2 - Ajuste de dados de uma liga ternária usando TCM.

FIG. 2.3 - Ajuste de dados de uma liga binária usando TCM.

Nas figuras [2.2] e [2.3], são apresentados exemplos de aplicação das rotinas de cálculo desenvolvidas. Os pontos foram extraídos do trabalho de Hansen[15] e colaboradores e as linhas contínuas representam o cálculo das magnetizações para as amostras $\text{Tb}_{26}\text{Fe}_{61}\text{Co}_{13}$ e $\text{Tb}_{24.3}\text{Fe}_{75.7}$, respectivamente, em [2.2] e [2.3], obtidas a partir da TCM.

	Energias de troca (10^{-16} erg)					
	J_{TbTb}	J_{TbFe}	J_{TbCo}	J_{FeFe}	J_{FeCo}	J_{CoCo}
Hansen	0,6	-12 a -15	--	30 a 40	--	--
ternária	0,7	-15	-9.0	40	45	100
binária	0,6	-15	--	40	--	--

TAB. 3.1 - Dados da literatura e calculados pela TCM.

As curvas calculadas ajustam-se muito bem aos dados experimentais e os parâmetros listados na tabela [3.1] mostram a ótima concordância entre os valores obtidos na literatura e os cálculos realizados. Esses resultados demonstram que nossas rotinas de cálculos são eficientes.

- CAPÍTULO 3 -

Técnicas experimentais

Produzimos amostras de Tb-Fe e Tb-Fe-Co para estudar suas propriedades magnéticas e também para as usarmos como objeto de teste do MEK-pol. Neste capítulo detalharemos os equipamentos utilizados para a produção (*sputtering*) e caracterização (magnetômetro a efeito Kerr, magnetômetro de amostra vibrante e SQUID) das amostras usadas neste trabalho.

Técnica de Produção dos filmes

Sistema de Deposição

O processo de deposição utilizado é o de *sputtering*, que pode ser descrito como a transferência de momento mecânico de partículas energéticas (íons) para os átomos do material a ser depositado (alvo). Essa transferência se dá por meio de colisões dos íons com a superfície do alvo[46] e provoca uma sucessão de colisões, o que resulta no arrancamento de átomos superficiais. Neste caso os íons são de um plasma de argônio e parte dos átomos arrancados se depositam em um substrato formando um filme. Em geral, esses átomos arrancados também são ionizados e a presença de uma diferença de potencial elétrico entre o alvo e o substrato pode favorecer a formação do filme.

O equipamento utilizado é o ATC-2000 *Sputtering System* da AJA International e inclui uma câmara de vácuo de 17" de altura e 20" de diâmetro cuja pressão interna pode baixar até 10^{-8} Torr. Na parte inferior, desta câmara há quatro canhões do tipo *magnetron sputtering*, o que permite utilizar até quatro alvos diferentes simultaneamente. Na região superior, há um sensor de quartzo, para medidas de espessura e taxa de deposição e também um módulo que contém o porta substrato. Para produzir filmes amorfos é possível utilizar um sistema que permite o

resfriamento do porta substrato com nitrogênio líquido; para os casos em que seja necessário o aquecimento do substrato, é possível fazê-lo com o auxílio de lâmpadas, mas neste trabalho não foi utilizado. Durante as deposições o porta substrato foi colocado em rotação de 30 rpm, para que a deposição do filme fosse homogênea.

Ao lado da câmara de deposição há uma pré-câmara que permite a troca de substrato sem a necessidade de arejar a câmara principal.

Os canhões de deposição são alimentados por fontes de tensão com potência de até 500W. Há duas fontes de corrente contínua (DC) para deposição dos metais de transição (Fe e Co) e outras duas fontes de tensão alternada que operam em frequência de 13,56MHz (RF) ligadas a dispositivos de casamento de impedância. As fontes RF são utilizadas para se depositar a terra rara e o dielétrico, sendo obrigatória para este último, pois não é possível depositá-lo com o módulo DC.

FIG. 3.1 - Canhão magnetron sputtering.

O alvo é fixado sobre uma base resfriada com água e que contém um conjunto de ímãs. O campo magnético destes ímãs concentra o plasma de argônio na região do alvo e uma diferença de potencial é aplicada ao alvo, que pode ser contínua (DC) ou alternada (RF). A carcaça e o restante da câmara, incluindo o porta substrato, que não aparece na figura [3.1], são aterrados.

Para produzir as amostras, são obtidas curvas de calibração para os alvos dos elementos de interesse. Para fazer

as calibrações o sensor de quartzo é colocado na região central do porta amostra e são tomados dados de taxa de deposição em função da potência dissipada e pressão de argônio. Como ilustração, na figura [3.2] são apresentados os gráficos de calibração para o térbio, utilizando a fonte de tensão RF.

FIG. 3.2 - Curvas de calibração do térbio.

Utilizando calibrações desse tipo, feitas para o ferro e o cobalto pode-se determinar que potências usar com os diferentes alvos de modo a obter a composição desejada da camada magnética e o tempo de deposição necessário para atingir a espessura pretendida. O intervalo de tempo de deposição da camada magnética para obtenção de filmes com espessura em torno de 1000Å é de aproximadamente 6 minutos.

Durante a deposição foi criada uma atmosfera controlada de 5mTorr de argônio (Ar) e usado um fluxo de 20cm³/min deste gás. Na deposição da camada de proteção (dielétrico), além do argônio, foi colocado nitrogênio na câmara e o alvo usado foi o de silício (Si). Desse modo, produzimos um filme de nitreto de silício (Si₃N₄) por um processo chamado *deposição reativa*. Este nome vem do fato de se obter a liga através de reações químicas

entre os íons de Si e N existentes na câmara. O fluxo de N utilizado ($2\text{cm}^3/\text{min}$) é 10 vezes menor que o de argônio.

As amostras foram divididas em dois conjuntos, um deles com amostras feitas a partir de alvos simples de Tb, Fe e Co. O outro conjunto foi produzido com alvos compostos, sendo um de Tb e outro de $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$ ou $\text{Fe}_{85}\text{Co}_{15}$.

As composições conseguidas são apresentadas na tabela 3.1.

ALVOS SIMPLES		ALVOS COMPOSTOS	
Amostra	Composição	Amostra	Composição
12	$\text{Tb}_{21}\text{Fe}_{79}$	1	$\text{Tb}_{20}(\text{Fe}_{85}\text{Co}_{15})_{80}$
13	$\text{Tb}_{19}\text{Fe}_{81}$	2	$\text{Tb}_{23}(\text{Fe}_{85}\text{Co}_{15})_{77}$
30	$\text{Tb}_{16}(\text{FeCo})_{84}$	3	$\text{Tb}_{27}(\text{Fe}_{85}\text{Co}_{15})_{73}$
67	$\text{Tb}_{20}(\text{FeCo})_{80}$	4	$\text{Tb}_{21}(\text{Fe}_{85}\text{Co}_{15})_{79}$
68	$\text{Tb}_{24}(\text{FeCo})_{76}$	5	$\text{Tb}_{25}(\text{Fe}_{85}\text{Co}_{15})_{75}$
69	$\text{Tb}_{21}(\text{FeCo})_{79}$	6	$\text{Tb}_{20}(\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10})_{80}$
70	$\text{Tb}_{23}(\text{FeCo})_{77}$	7	$\text{Tb}_{23}(\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10})_{77}$
71	$\text{Tb}_{26}(\text{FeCo})_{74}$	8	$\text{Tb}_{27}(\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10})_{73}$

TAB. 3.1 - Composições das amostras produzidas.

Os valores indicados nas composições foram obtidos por RBS (*Rutherford Backscattering Spectrometry*), que pode ser literalmente traduzido como Espectroscopia de Retroespalhamento Rutherford. Apenas a quantidade de térbio pôde ser identificada, pois, o ferro e o cobalto aparecem sobrepostos nesse método de caracterização. Uma opção alternativa ao RBS é uma técnica chamada PIXE (*Proton Induced X-ray Emission*), ou seja, emissão de raio-x induzida por prótons, mas os espectros obtidos com essa última técnica não permitiram tirar conclusões significativas sobre as quantidades de Fe e Co das amostras.

Técnicas de caracterização

Magnetômetro de Amostra Vibrante

O Magnetômetro de Amostra Vibrante foi originalmente desenvolvido por Foner[50] e utiliza um sistema no qual medimos o sinal induzido pelo movimento da amostra num conjunto de bobinas *pick-up*. O sinal dessas bobinas é calibrado com uma amostra de momento magnético conhecido, em geral, níquel.

A força eletromotriz induzida nas bobinas sensoras é proporcional à variação temporal do fluxo magnético. Essa força eletromotriz é também proporcional ao produto da amplitude da vibração, por sua frequência, pelo momento da amostra e pela função sensibilidade, que representa a dependência da tensão induzida em relação à posição da amostra.

O magnetômetro utilizado* possui a escala mais sensível em 10^{-3} emu e opera com um eletroímã de campo máximo 20kOe. O porta-amostra usado é formado por uma haste de quartzo combinada com uma lâmina de vidro. Como o quartzo é paramagnético e o vidro diamagnético é possível combinar esses elementos de forma que o momento magnético total do porta-amostra seja reduzido a quase zero.

Com esse equipamento é possível medir a magnetização na direção do plano do filme ou perpendicular a ele.

* PAR-EGG modelo 4500.

SQUID

Os SQUID's* são detectores magnéticos de alta resolução que se baseiam no efeito Josephson. Eles consistem, basicamente, de um anel supercondutor com uma pequena camada isolante (junção Josephson). A resolução desses dispositivos está abaixo de 10^{-14} Tesla (10^{-10} Gauss)[47]. O fluxo magnético que passa pelo anel, quando está no estado supercondutor, é quantizado e a junção permite que este fluxo varie em quantidades discretas.

Os primeiros dispositivos desse tipo datam de 1964 e podem ser encontrados nos tipos DC(corrente contínua) ou RF(alta frequência). No primeiro o fluxo é determinado indiretamente medindo-se a diferença de potencial sobre duas junções Josephson polarizadas. No segundo a medida se dá pela interação entre uma onda eletromagnética e uma junção Josephson. O fluxo é determinado pela variação da energia da onda eletromagnética que atravessa a junção.

As alterações da diferença de potencial nos pick-up's ocorrem quando o fluxo varia de $\Delta\Phi = 2,067 \cdot 10^{-15} \text{Wb}$. Assim, esse dispositivo pode ser usado para medir variações muito pequenas de fluxo. Na verdade, com o SQUID pode-se medir qualquer quantidade física que seja transformada em fluxo, como por exemplo, um campo magnético ou seu gradiente, uma corrente ou tensão elétrica, um deslocamento ou uma susceptibilidade magnética.

O magnetômetro utilizado** tem sensibilidade de 10^{-8}emu e está representado na figura [3.3]. Ele possui uma bobina supercondutora que fornece campos de até 70kOe, gradiômetro, transformador de fluxo, eletrônica de controle e o SQUID é RF.

O gradiômetro é um enrolamento supercondutor que gera uma corrente proporcional ao fluxo que atravessa sua seção transversal. A disposição e o sentido das espiras são

* Este nome vem do inglês *Superconducting QUantum Interference Device*, que pode ser traduzido, literalmente, como "dispositivo supercondutor de interferência quântica".

organizados de tal modo que apenas fluxos com variações maiores que 0,1%, ao longo dos 4cm de altura do enrolamento, produzem corrente mensurável.

Por ser muito sensível, o SQUID não pode ficar exposto ao campo terrestre e a ruídos magnéticos ambientes. Para reduzir o ruído sobre ele, utiliza-se um bloco supercondutor como blindagem magnética. O sinal do gradiômetro é algumas ordens de grandeza maior que a sensibilidade do SQUID, sendo necessário usar um transformador (reductor) de fluxo que excita a bobina de entrada do SQUID dentro do bloco supercondutor.

O sinal de RF é injetado pela eletrônica de controle e esta avalia a energia absorvida pela junção Josephson, assim, obtém-se um sinal elétrico relacionado ao momento da amostra.

O gradiômetro, o transformador de fluxo, o SQUID e a bobina de excitação de RF são supercondutores e ficam imersos em He líquido a 4K. A eletrônica de controle é constituída, por um controlador de temperatura que condiciona a amostra, sistema de vácuo e sistema de posicionamento da amostra em relação ao eixo do gradiômetro.

FIG. 3.3 - Diagrama esquemático de um SQUID RF.

O sistema de controle do magnetômetro permite realizar medidas de momento para uma temperatura, entre 1,7 e 400K com campos entre 0 e 70kOe. É possível definir os campos e as temperaturas em que se deseja medir o momento de uma amostra. Pode-se obter gráficos de $M \times H$ e $M \times T$ entre outros.

" SQUID da Quantum Design, modelo MPMS-7.

Magnetômetro a Efeito Kerr

Desenvolvemos e construímos um magnetômetro que permite medidas na configuração Kerr polar, o que nos possibilita obter informações sobre a magnetização perpendicular à superfície das amostras. Para medidas de magnetização paralela ao plano do filme também temos um magnetômetro Kerr que permite medidas em temperaturas que variam de 4K a 300K[48].

O equipamento é baseado num laser semiconductor modulável (modelo LDA 2011 da ILEE Laser Inovation) com controlador, fotodiodo, polarizador e analisador. Algumas de suas características são: comprimento de onda de 670nm, potência de 0,5 até 3mW e frequência de modulação de 1Hz a 500kHz. A energia associada ao comprimento de onda do laser ($\sim 2\text{eV}$) permite obter informações sobre o comportamento dos elétrons magnéticos dos metais de transição, mas não é suficiente para ativar processos ópticos nos elétrons magnéticos das terras raras, pois estes encontram-se entre 4 e 7eV do nível de Fermi.

O feixe de luz gerado pelo laser é polarizado, incide sobre a amostra e é captado pelo fotodiodo após ter passado pelo analisador. O fotodiodo fornece uma diferença de potencial que está relacionada com alguma mudança no feixe luminoso em função do campo magnético aplicado. Esta mudança pode ser na polarização (efeito Kerr polar e longitudinal) ou na intensidade do feixe devido à variação na refletividade superficial da amostra (efeito Kerr transversal). A intensidade do laser é modulada com o sinal de referência de um *lock-in* e para magnetizar a amostra contamos com um eletroímã com campo máximo de 20kOe. A aquisição de dados é feita por meio de um programa de computador desenvolvido em nosso laboratório.

A seguir apresentaremos o MEK-pol com detalhes de cada uma de suas partes.

O magnetômetro Kerr polar (MEK-pol)

O desenvolvimento de um magnetômetro Kerr na configuração polar foi parte importante deste trabalho e tem como principal objetivo a caracterização magnetoóptica das amostras em estudo. O magnetômetro foi adaptado a outro já existente e foi preciso dedicar atenção especial à estabilidade mecânica do sistema. A estrutura original foi modificada, mas medidas nas configurações longitudinal e transversal são opções ainda possíveis neste equipamento.

O sistema criogênico não deveria sofrer alterações, mas fatalmente seria necessário fazer adaptações ao arranjo óptico e talvez ao mecânico.

Com relação à aquisição de dados, todo software usado anteriormente continua sendo eficiente para o novo arranjo.

Será mostrado, em detalhes, todo o sistema óptico e mecânico, seus elementos originais e atuais e será dada uma clara explicação sobre cada uma das adaptações implementadas. Também serão apresentados alguns resultados obtidos à temperatura ambiente e em baixas temperaturas.

Sistema óptico

A principal mudança entre a configuração original e a atual é a mudança no ângulo de incidência do laser sobre a amostra. No arranjo anterior, para as medidas na configuração longitudinal e transversal, o feixe incidia em um ângulo de 45° em relação à direção normal ao plano do filme. No MEK-pol, essa incidência é de aproximadamente 2° . Outras mudanças importantes foram a inclusão de lentes convergentes para garantir focalização do feixe sobre a amostra e a necessidade de se trocar o porta-amostras.

Há um porta-amostras para o arranjo polar e outro para as configurações longitudinal e transversal. O suporte do laser e do fotodiodo foi substituído por outro mais robusto em que,

além da maior rigidez na fixação desses elementos, também permite uma blindagem eletrostática do fotodiodo, evitando a possível influência de ruídos externos ao sistema.

Na figura [3.4] está representado o MEK-pol e são mostrados alguns dos elementos que compõem o sistema óptico. O que se pretende com este esboço é apresentar o caminho percorrido pelo feixe luminoso em direção à amostra e de volta ao fotodiodo. Dois espelhos planos desviam o feixe para a amostra. Os espelhos e amostra estão indicados na figura [3.4] (sem escala), onde também está indicado o feixe sendo desviado do perfilado para o porta-amostra e, dentro do porta-amostra, o segundo desvio, que faz com que o laser incida perpendicularmente à superfície da amostra e na direção do campo magnético. Este último desvio é necessário porque o eletroímã (também representado na figura) não possui furos laterais, assim sendo, é necessário que o feixe entre no criostato, da maneira indicada.

FIG. 3.4 - Esboço do magnetômetro Kerr polar e o caminho percorrido pelo feixe luminoso.

É interessante salientar que como o feixe sofre duas reflexões ortogonais, uma na direção vertical e outra horizontal, qualquer orientação de polarização poderá ser usada, p ou s .

Na figura [3.5] são apresentados o laser, o fotodiodo e a lente convergente que focaliza o feixe sobre a amostra. À direita está o porta-amostra (módulo polar) e o criostato (retângulo vertical) que será apresentado com mais detalhes na próxima seção.

FIG. 3.5 - Alguns elementos do MEK-Pol.

Na figura [3.6] pode-se ver um esboço do porta-amostra, com indicação do local em que se coloca a amostra e o sensor de temperatura, bem como a posição do espelho que direciona o laser para a amostra.

FIG. 3.6 - Esboço do porta-amostra com indicação da posição do espelho, da amostra, do feixe de luz e do sensor de temperatura.

Arranjo mecânico

A estrutura mecânica do MEK-Pol foi projetada de modo que pudesse ser adaptada a um eletroímã que é compartilhado com um magnetômetro de amostra vibrante (MAV), portanto, havia a necessidade de poder removê-la sempre que necessário. Além disso, esta estrutura precisaria suportar os módulos óptico e criogênico e não permitir que ruídos provenientes do sistema de vácuo influenciassem as medidas. Já no projeto original[48] foi possível se chegar a uma solução bastante eficiente, não sendo necessário, neste trabalho, nenhum tipo de adaptação a esta parte do equipamento. Apresentamos o arranjo mecânico na figura [3.7], detalhando todos os seus componentes.

FIG. 3.7 - Arranjo mecânico do MEK-pol. A relação entre as dimensões reais e o desenho é 4:1.

Sistema criogênico

Como no sistema mecânico, nenhuma alteração foi feita a esta parte do equipamento. É um sistema de fluxo contínuo de hélio, possui um controlador de temperatura modelo DRC91ca da Lake Shore, auxiliado por um transferidor comercial Janis e o vácuo interno à câmara (da ordem de 10^{-6} mbar) é conseguido com uma bomba turbomolecular. Na figura [3.8] apresentamos este sistema.

FIG. 3.8 - Sistema criogênico. A escala é a mesma usada na figura 3.7.

Testes com o magnetômetro

O magnetômetro Kerr polar foi submetido a uma série de testes com o intuito de se analisar suas qualidades e limitações. Um dos objetivos era verificar a existência de algum tipo de ruído sendo gerado no sistema por fontes externas e, caso existisse algum, tentar eliminá-lo. Para esta verificação foram feitas medidas em diferentes configurações de posição do analisador, várias medidas com o sistema de vácuo acionado e desligado, com e sem fluxo de hélio. Serão apresentados os resultados desses testes e algumas conclusões baseadas nessas medidas.

Em primeiro lugar, foram feitas algumas medidas com o analisador e o polarizador alinhados, ou seja, se o polarizador estivesse na direção p (paralelo ao plano de incidência da luz) o analisador seria colocado na mesma direção.

A posição do analisador foi sendo alterada para posições simétricas a da configuração inicial. Isto foi feito com base no sinal elétrico medido pelo fotodiodo quando o feixe era refletido sobre a amostra na ausência de campo magnético.

Sempre que essas posições simétricas forem mencionadas, será usado o termo *ângulo do analisador*, pois, girando o analisador no sentido horário ou anti-horário de um mesmo ângulo, obtém-se o mesmo sinal elétrico no fotodiodo. Este fato pode ser compreendido ao se verificar as equações de reflexão apresentadas no capítulo 3.

A diferença notada em medidas feitas com o analisador girado no sentido horário ou anti-horário está na orientação do ciclo de histerese. No primeiro caso o ciclo fica invertido, enquanto que no outro ele não inverte, o que pode ser melhor compreendido observando-se a figura [3.9], em que são apresentadas medidas feitas a $\pm 45^\circ$.

FIG. 3.9 - Curvas obtidas no MEK-Pol com o analisador em $+45^\circ$ e -45° .

As curvas são lisas, o que permite afirmar que o sistema é bastante estável mecanicamente, mesmo assim, os resultados foram refinados, utilizando uma técnica matemática, para verificar o nível de simetria das curvas obtidas. Atentando para este detalhe foi possível concluir que havia uma pequena falta de simetria e que ela podia ser causada por alguma instabilidade mecânica ou por outra fonte indesejável e que só podia ser detectada com uma análise mais fina. Esta manobra matemática será descrita a seguir.

Eliminando diferenças matematicamente

O primeiro fato a ser observado é que, se as curvas de histerese são geradas em situações idênticas de magnetização (mesmo campo aplicado, mesma orientação da amostra), elas não devem ser diferentes (exceto pelo fato de serem espelho uma da outra) quando o analisador estiver em ângulos simétricos em relação a uma direção predeterminada (por exemplo, direção p). Outro fato que deve ser levado em consideração é que as curvas de histerese têm características semelhantes a de funções pares, ou seja, têm simetria em relação à origem do sistema de coordenadas.

Com base nessas observações, pode-se afirmar que, como as curvas de histerese têm um caráter par, as contribuições ímpares que surgirem podem ser consideradas 'ruídos'. A questão agora é: como eliminar as contribuições ímpares destas curvas? As etapas seguidas para eliminar esses 'ruídos' foram:

1. obter a curva de histerese;
2. gerar uma curva semelhante (matematicamente com os mesmos dados) multiplicando o campo aplicado por (-1) ;
3. somar a curva original à gerada no item (b);
4. dividir este resultado por dois;
5. subtrair este valor da curva original.

Qual a razão de cada uma dessas etapas? Primeiro, geramos, matematicamente, uma curva semelhante à medida, mas simétrica em relação ao eixo vertical. Se ao somar estas duas curvas o resultado obtido for um conjunto de zeros, esta curva é absolutamente simétrica em relação à origem dos eixos coordenados, portanto, uma curva de histerese como se deseja medir. No entanto, quaisquer contribuições não simétricas (ruídos) devem ser eliminadas.

O que se obtém ao somar a curva original com sua simétrica é justamente este suposto ruído. Ele deve ser dividido por dois, pois sendo resultado da soma de duas curvas

tem valor duas vezes maior que o esperado. O último passo é subtrair esse ruído do sinal original, resultando uma curva simétrica, como esperado.

Para tornar mais claro o processo, apresentamos na figura [3.10] os resultados obtidos em uma operação desse tipo.

Esta técnica foi aplicada a todas as medidas feitas com o magnetômetro Kerr, mostrando que essas contribuições ímpares (ruídos) estão em torno de 1% a 10% na medida.

A experiência acumulada nos mostrou que esse ruído está associado a interferências no arranjo óptico ou deformações mecânicas na estrutura do sistema provocadas pelo campo do eletroímã. Pode, ainda, estar ligado à condição de fixação da amostra ou de outras partes.

FIG. 3.10 - As várias etapas da correção das curvas do MEK-pol.

Como as amostras são submetidas a campos magnéticos de até 20kOe, há a necessidade de as fixarmos bem para evitar que se movimentem no suporte durante as medidas.

No caso de haver movimento das amostras, as curvas obtidas não são lisas como as mostradas em [3.9] e [3.10], mas

se parecem com as da figura [3.11]. Este fato ocorre porque pequenos movimentos da amostra, geram grandes deslocamentos angulares do feixe luminoso.

FIG. 3.11 - Curva obtida com amostra mal fixada ao suporte.

Outro teste realizado refere-se a posição do analisador em relação ao polarizador. Optamos por usar o feixe incidente com polarização p e variar apenas a direção do analisador entre as direções p e s , paralela e perpendicular ao plano luminoso, respectivamente.

(a)

(b)

(c)

(d)

FIG. 3.12 - Nos gráficos (a), (b) e (c) são apresentadas medidas com o analisador a 60° , 45° e 30° em relação à direção p , respectivamente. Em (d) as mesmas curvas estão superpostas.

As medidas apresentadas na figura [3.12] foram obtidas com o analisador em três posições distintas, 30°, 45° e 60°. Foram escolhidos esses ângulos por serem de fácil identificação, por exemplo, sabe-se que o analisador está a 45° com a direção p (direção de incidência) quando o sinal medido no fotodiodo é metade do sinal máximo, ou seja, metade do sinal medido com o analisador na direção p.

Nas medidas apresentadas, as razões entre os valores medidos e o máximo são 1/4, 1/2 e 3/4 que, observadas as equações de reflexão do feixe, estes valores estão relacionados a $\sin^2\theta_A$, onde θ_A é o ângulo do analisador em relação a p.

Medidas em função da temperatura

Dando continuidade aos testes no equipamento, algumas medidas foram feitas em temperaturas entre 10 e 300K. Pode-se notar pelos resultados que, mesmo com o fluxo contínuo de hélio, não apareceram sinais indesejáveis nas medidas. Este fato pode ser constatado pela ausência de flutuações como as apresentadas em [3.10].

(a)

(b)

(c)

(d)

FIG. 3.13 - Medidas feitas a 15, 100, 200 e 275 K.

O controle de temperatura é feito por um controlador comercial associado a um aquecedor, acoplado ao porta-amostras. Define-se a temperatura em que será efetuada a medida e, após estabilizada, pode-se aplicar o campo magnético.

Na figura [3.13], são apresentadas algumas curvas medidas em 15, 100, 200 e 275K. As curvas têm contornos lisos, demonstrando que o sistema não sofre perturbações que influenciem o resultado, mesmo quando as medidas são realizadas em baixas temperaturas.

- CAPÍTULO 4 -

Resultados experimentais e análise

Iniciaremos este capítulo apresentando a caracterização magnética das amostras feitas com o magnetômetro de amostra vibrante e o SQUID. As medidas do MAV evidenciam a orientação perpendicular da magnetização das amostras e as do SQUID, servem para mostrar o comportamento das amostras em função da temperatura. Essas caracterizações magnéticas serão comparadas com os resultados obtidos com as medidas magnetoópticas realizadas com o magnetômetro Kerr polar que desenvolvemos ao longo deste trabalho.

As medidas obtidas com cada um desses equipamentos serão apresentadas, com comparações entre os vários resultados.

Medidas no MAV

As amostras foram medidas à temperatura ambiente, com o campo aplicado paralela e perpendicularmente à superfície do filme. Com essas medidas é possível verificar que existe uma anisotropia magnética que tende a levar a magnetização para a direção perpendicular ao plano do filme.

Isto pode ser concluído pelo formato das curvas de histerese que são estreitas nas medidas feitas no plano do filme o que pode indicar que nesta direção fica o eixo duro (magnético) da amostra e, nas medidas na direção perpendicular, o ciclo de histerese tem um formato mais retangular e tem maior coercividade.

A seguir, são apresentadas as medidas nas duas direções para várias amostras, indicando as características anteriormente descritas.

a

b

c

d

e

f

g

h

FIG. 4.1 - Medidas no MAV (eixos fácil e duro).

É importante notar que, nas figuras de [4.1a] a [4.1h], há variação na escala vertical (magnetização), indicando que as amostras possuem dimensões diferentes.

A diferença nos valores de magnetização para as duas direções de medida em cada gráfico da figura [4.1], deve-se à configuração das bobinas sensoras (pick-up) do magnetômetro. Esse arranjo supõe que as amostras sejam colocadas em seu centro, numa posição simétrica em relação às bobinas. No entanto, para algumas amostras, suas dimensões excedem a região prevista para a medida e o sinal da amostra não é devidamente computado (ver figura [4.2]). As amostras 5 e 7 são menores que as outras e como se pode observar nas figuras [4.1d] e [4.1f], as magnetizações nas duas direções têm mesma intensidade.

FIG.4.2 - Arranjos para medidas de magnetização no MAV. Em (a) eixo fácil e em (b), eixo duro. O campo aplicado é perpendicular ao plano desta página.

Outro fato a ser observado refere-se à não correção do campo desmagnetizante ao longo deste trabalho. Os resultados sempre estão apresentados sem correção alguma deste efeito, pois, o que se pretende é comparar os resultados do magnetômetro Kerr com outros métodos de caracterização.

FIG.4.3 - Exemplo de correção de campo desmagnetizante.

Assim, para calcular o valor do campo magnético corrigido (H_{cor}), subtrai-se o campo desmagnetizante do campo magnético aplicado (H_{apl}). O campo desmagnetizante[49] é dado pelo produto da magnetização da amostra (M_s) por uma quantidade que está relacionada com o formato da amostra, chamada *fator desmagnetizante* (N). Matematicamente, essa relação é dada por:

$$H_{cor} = H_{apl} - N \cdot M_s \quad [4.01]$$

A título de ilustração, na figura [4.3] há um exemplo de correção do campo desmagnetizante. A amostra 68 tem forma quadrada com 2cm de aresta e sua espessura é de 1200Å. O fator de desmagnetizante usado foi 4π .

A seguir serão apresentadas algumas medidas feitas em diferentes temperaturas, com o SQUID.

Medidas com SQUID

As medidas neste equipamento foram voltadas para o comportamento das amostras em função da temperatura. Dois tipos de medidas foram feitos: curvas de histerese em função da temperatura, com o objetivo de comparar com as medidas do MEK e magnetização em função da temperatura (campo magnético fixo), para se ter a possibilidade de análise do comportamento das amostras em função da temperatura usando a teoria do campo médio.

No primeiro caso, são definidas as temperaturas e, para cada uma delas, faz-se um ciclo de histerese completo. A partir deles, pode-se determinar o valor de magnetização de saturação, da coercividade e da remanência da amostra.

No outro caso, a amostra é submetida a um campo magnético fixo, que pode ser inclusive zero. Depois disso, o equipamento ajusta-se para fazer medidas nas várias temperaturas previamente estabelecidas.

Vários conjuntos de dados podem ser estabelecidos a partir dessas medidas e eles podem ser comparados.

A seguir serão apresentadas medidas para várias amostras, acompanhadas de comentários.

AMOSTRA 13 - $Tb_{19}Fe_{81}$, com 800Å de espessura

A primeira amostra a ser analisada (13), foi colocada de modo que o campo magnético de 40kOe estivesse paralelo ao plano do filme, ou seja, na direção do eixo duro. Nesta configuração, o que se obtém são curvas estreitas (baixa coercividade) e campo de saturação entre 10 e 20kOe, aproximadamente, como mostrado nas figura de [4.4a] a [4.4f].

a

b

c

d

e

f

FIG. 4.4 - Nas figuras de (a)-(f) estão as curvas de histerese para várias temperaturas.

Esta amostra, cuja composição esperada era $Tb_{20}Fe_{80}$, tem 19% de térbio e 81% de ferro em sua composição, valores obtidos por caracterização via RBS* e confirmados no cálculo feito com a teoria do campo médio. Essa caracterização foi feita no LAMFI-IFUSP.

A partir da espessura e composição da amostra conseguidas via RBS, foi possível calcular o valor de sua magnetização (figura [4.5]).

Na medida de magnetização em função da temperatura $M(T)$, a curva obtida é monotonicamente decrescente (figura [4.5]). Como a maior temperatura permitida no SQUID é de 390K, não é possível determinar precisamente o valor da temperatura de Curie que, para esta amostra, está em torno de 390K. Entretanto, como mostraremos no tópico seguinte, após calcular $M \times T$ (figura [4.12]) usando a teoria do campo médio, obtivemos $T_{Curie} = 390K$.

FIG. 4.5 - Dados de magnetização em função da temperatura de uma amostra binária de Tb-Fe.

Também foram caracterizadas algumas amostras ternárias com composições variadas. A seguir serão apresentados resultados das medidas nessas amostras.

* RBS é *Espectroscopia de Retroespalhamento Rutherford* (em inglês), técnica que foi usada para se determinar a composição e espessura das amostras.

AMOSTRA 2 - $Tb_{23}(Fe_{85}Co_{15})_{77}$ com 1000Å de espessura

Esta amostra foi medida com o campo aplicado perpendicularmente ao plano do filme, ou seja, na direção do eixo fácil. Nota-se que a coercividade aumenta quando a temperatura tende a 150K, seja vindo de valores maiores ou menores (figuras [4.6a] a [4.6e]).

Há uma diferença no formato dos ciclos em baixas temperaturas (pequena histerese) e altas temperaturas (ciclos retangulares) e isso provavelmente está ligado ao elemento dominante em cada uma das situações, seja o Tb em baixas temperaturas ou os metais de transição em altas. Em relação à aproximação para a saturação, verifica-se que as inclinações nas curvas são diferentes, sendo mais inclinadas em baixas e menos em altas temperaturas.

O campo de saturação reduz com o aumento da temperatura, contrário ao comportamento da magnetização de saturação a 40kOe.

Na figura [4.7a] apresentamos os valores de H_c e M_s , e verificamos que há uma tendência em respeitar a correlação clássica entre essas duas grandezas, onde H_c é proporcional ao inverso de M_s , sendo que as linhas traçadas na figura visam evidenciar essa relação.

Embora haja um conjunto reduzido de pontos experimentais, o comportamento de M_s e de H_c permitem supor que a temperatura de compensação encontra-se próxima de 150K.

a

b

c

d

e

FIG.4.6 - Nas curvas de (a)-(e) estão medidas de histerese da amostra 2 usando SQUID.

Por fim, pode-se verificar na figura [4.7b] que a medida de $M(T)$ a campo nulo e a de $M_r(T)$ (remanência) obtida a partir das histereses são bastante parecidas, exceto em 50K onde a remanência é significativamente menor que a magnetização.

a

b

FIG.4.7 - Em (a), temos o campo coercivo em função da temperatura, comparado com M quando $H=40\text{kOe}$. Em (b), a curva de $M \times T$ (medida a campo nulo) é comparada com a curva de M_r (tirado das curvas de histerese).

AMOSTRA 3 - $\text{Tb}_{27}(\text{Fe}_{85}\text{Co}_{15})_{73}$, com 800Å de espessura

O procedimento usado com a amostra 3 foi o mesmo que o da amostra 2. O comportamento geral é bastante semelhante ao anterior, mas os campos de saturação e os valores de coercividade desta amostra são um pouco maiores que os da anterior.

São apresentados os ciclos de histerese (figuras de [4.8a] a [4.8e]) evidenciando a semelhança com a amostra anterior. Os gráficos de $M_r(T)$ e $M_s(T)$, que aparecem na figura [4.9a] foram tirados dos ciclos de histerese.

a

b

c

d

e

FIG.4.8 - De (a)-(e) estão as curvas de histerese para diferentes temperaturas.

É importante salientar que a medida de $M(T)$ desta amostra foi feita com um campo de 40kOe aplicado perpendicularmente ao filme (figura [4.9a]). Na amostra anterior esta medida foi feita a campo nulo. Na mesma figura, vê-se que a curva de remanência em função da temperatura é muito parecida com a de magnetização de saturação, exceto na região de 50K.

Não foi subtraído o sinal do substrato nas medidas apresentadas. Com essa correção, a curva de M_s ficaria um pouco acima da curva de remanência.

Vale também salientar que a curva de remanência não apresenta um vale na região de compensação, como acontece com a curva de magnetização de saturação. Assim, para saber a temperatura de compensação é necessário obter a curva de saturação ou a de coercividade em função da temperatura.

Na figura [4.9b], os valores de magnetização de saturação ($H= 40kOe$) tirados das curvas de histerese são apresentados com os valores de magnetização em função da temperatura e é possível verificar que as curvas representativas dessas duas medidas concordam muito bem.

Além desses resultados também foi incluído, na figura [4.9b], um gráfico da coercividade (H_c) em função da temperatura. Nesse caso, como no anterior, quando o valor de M_s diminui a coercividade aumenta. A partir dos resultados experimentais, pode-se afirmar que a temperatura de compensação está em torno de 75K.

FIG.4.9 - Em (a), as curvas de $M(T)$ e $M_r(T)$ tiradas das curvas de histerese e em (b), $M(T)$ pelos dois métodos e $H_c(T)$.

AMOSTRA 7 - $\text{Tb}_{23}(\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10})_{77}$, com 1200Å de espessura

Novamente, o procedimento usado foi o mesmo, as curvas de histerese apresentaram comportamento semelhante ao das amostras anteriores, como pode ser visto nas figuras de [4.10a] a [4.10e]. Na medida a 300K (figura [4.10a]), o patamar de saturação não está muito bem definido e isso pode estar relacionado a algum problema na medida. Além disso, com esses dados não foi possível verificar a relação entre M_s e H_c , como no caso anterior. Porém, a partir de H_c , é possível deduzir que a compensação está em torno de 125K.

a

b

c

d

e

FIG.4.10 - De (a)-(e) estão curvas de histerese para várias temperaturas

Aqui também há diferença entre o comportamento da remanência e da saturação em função da temperatura, figura [4.11b]; essa diferença deve-se, provavelmente, à contribuição do sinal do substrato detectado pelo SQUID.

FIG.4.11 - Em (a), curvas de $M(T)$ e $H_c(T)$ tiradas das curvas de histerese e em (b), $M(T)$ e $M_r(T)$.

Análise por teoria do campo médio

A seguir serão apresentados dois casos em que a teoria do campo médio é aplicada à análise de resultados experimentais. No primeiro, será analisada a amostra binária (13) e em seguida, a amostra ternária (68).

Esta teoria foi apresentada no capítulo 2 e permite calcular a magnetização da amostra em função da temperatura usando a equação [2.24]. Os resultados dos cálculos teóricos, comparados com os dados experimentais, permitem confirmar valores de composição e definir melhor as temperaturas de Curie e compensação.

Os dados experimentais de magnetização, em função da temperatura, foram obtidos com o SQUID. Esses valores, associados à espessura obtida por RBS, foram comparados com os resultados dos cálculos teóricos obtidos via TCM.

Nas figuras [4.12a] e [4.12b], são apresentados os resultados teóricos sobrepostos aos dados experimentais, para facilitar a comparação entre ambos

Amostra 13 - $Tb_{19}Fe_{81}$

a

Amostra 68 - $Tb_{24}(FeCo)_{76}$

b

FIG.4.12 - Cálculo de $M \times T$ via teoria do campo médio.

No primeiro caso, a curva teórica acompanha muito bem os pontos experimentais. A partir desses cálculos foi possível obter a temperatura de Curie (390K) que é está no limite da capacidade do arranjo experimental. Experimentalmente, fica difícil afirmar que esse seja o valor da T_{Curie} , mas os cálculos confirmam este resultado.

Amostra	Composição			Integrais de troca ($\cdot 10^{-16}$ erg)					
	%Tb	%Fe	%Co	J_{TbTb}	J_{TbFe}	J_{TbCo}	J_{FeFe}	J_{FeCo}	J_{CoCo}
13	19	81	--	0,6	-15	--	40	--	--
68	24	64	12	0,6	-15	-9	40	45	250

TAB.4.1 - Parâmetros usados para calcular $M \times T$ via TCM.

Os parâmetros usados no cálculo estão apresentados na tabela [4.1] e são comparáveis aos valores encontrados na literatura. Ver, por exemplo, os dados de Hansen e colaboradores apresentados no capítulo 2.

Para a amostra ternária, há uma parte considerável da curva que coincide com os pontos experimentais, no entanto, a queda no valor de magnetização encontrado na região de compensação é muito mais acentuada no cálculo teórico que nos valores experimentais. Esta variação pouco pronunciada nos valores experimentais ocorreu em todas as amostras ternárias

que caracterizamos, o que dificultou a concordância entre os cálculos e as medidas.

Provavelmente, algum fator relacionado à distribuição de anisotropias magnéticas na amostra deve fazer com que essa queda na magnetização seja larga e pouco pronunciada. Neste caso também foram encontrados valores compatíveis com os dados da literatura.

É importante notar, também, a diferença nos parâmetros usados para o cálculo da magnetização. A integral de troca (J_{ij}) entre átomos de cobalto é em torno de 400 vezes maior que entre dois átomos de térbio. A grande diferença nesses valores permite entender a grande distribuição angular dos momentos magnéticos do térbio em comparação com o alinhamento dos momentos de cobalto. No caso do ferro, essa distribuição também ocorre, mas é menos acentuada que no caso do térbio.

Os sinais negativos nos valores das energias de troca entre térbio e ferro e entre térbio e cobalto reafirmam a disposição dos momentos magnéticos médios do ferro e do cobalto em sentido oposto ao do térbio, o que dá o caráter sperimagnético à amostra.

Finalmente, apresentaremos os resultados da caracterização magnetoóptica, feita com o MEK-pol em função da temperatura. Os resultados serão apresentados e comparados com as medidas feitas no SQUID.

Medidas no Kerr

As medidas no magnetômetro Kerr polar (MEK-pol) foram feitas em função do ângulo do analisador e da temperatura. A amostra utilizada nessas medidas foi a de número 30, uma amostra ternária cuja composição é $\text{Tb}_{16}(\text{FeCo})_{84}$ e sua espessura é de 800Å.

Medidas em função do ângulo do analisador

Inicialmente, foram feitas medidas com luz incidente com polarização p e com o analisador em diferentes orientações, com o objetivo de verificar o comportamento das amostras em função da configuração do MEK-pol.

As curvas de histerese apresentadas nas figuras [4.13], [4.14] e [4.15], foram obtidas com o analisador em 30° , 45° e 60° , respectivamente, em diferentes temperaturas. Elas têm contornos bastante suaves, o que demonstra a ótima estabilidade e alinhamento do sistema. Pelo seu formato retangular, concluímos que a amostra possui uma componente magnética perpendicular ao plano do filme bastante significativa.

As medidas foram feitas em ângulos simétricos do analisador e, para cada temperatura, essas medidas foram subtraídas entre si. Como mostrado no capítulo 2, essa diferença entre as medidas em ângulos simétricos fornece informações sobre a componente perpendicular da magnetização. Esses resultados demonstram claramente que as amostras têm uma significativa componente perpendicular, o que é reafirmado pelas medidas feitas no MAV e apresentadas anteriormente.

Medidas a 30°

FIG.4.13 - Medidas em várias temperaturas com o analisador a 30°.

Medidas a 45°

FIG.4.14 - Medidas em várias temperaturas com o analisador a 45°.

Medidas a 60°

FIG.4.15 - Medidas em várias temperaturas com o analisador a 60° .

Das curvas obtidas com o MEK-pol em função da temperatura, foram tirados os valores do sinal magnetoóptico para o campo aplicado em 10 e 20kOe. Esses valores foram reunidos e estão apresentados na figura [4.16]. Os símbolos cheios representam as medidas em 20kOe e os vazios, 10kOe.

Na figura [4.16], o sinal mantém-se constante quando a temperatura varia entre 15 e 275K. Este comportamento indica que a amostra não possui temperatura de compensação e, se possui, ela não se encontra nesse intervalo. Nota-se, também, que o nível do sinal para os dois campos têm valores quase idênticos, evidenciando que a amostra satura com campos menores ou próximos de 10kOe.

FIG.4.16 - Sinal magnetoóptico em função da temperatura e do ângulo do analisador, medido nos campos de 10 e 20kOe.

FIG.4.17 - Coercividade em função da temperatura e do ângulo do analisador.

A figura [4.17] reforça a idéia de não haver compensação nessa região, pois a coercividade não sofre nenhuma variação abrupta, decrescendo monotonicamente com o aumento da temperatura.

Outra característica interessante dessas medidas é a reprodutibilidade das curvas, pois mesmo com o analisador em

diferentes ângulos, o comportamento da coercividade e as curvas de histerese são muito parecidas.

Esse resultado permite afirmar que a caracterização magnetoóptica pode ser feita com o analisador em qualquer orientação, pois independentemente de sua posição, os resultados são comparáveis.

Assim, decidimos realizar as medidas com o analisador orientado a $\pm 45^\circ$ e apresentaremos os resultados dessas medidas.

Caracterização magnetoóptica

A medidas feitas com o analisador em $+45^\circ$ e -45° , em várias temperaturas, serão apresentadas a seguir, bem como os resultados das operações de soma e subtração dessas curvas.

A amostra utilizada foi a de número 70, cuja composição é $\text{Tb}_{23}(\text{FeCo})_{77}$ e sua espessura é de $800\text{\AA}$.

Os procedimentos descrito no capítulo 3 sobre eliminação de ruídos nas medidas, foram aplicados em todos os casos apresentados.

FIG.4.18 - Medidas a $+45^\circ$ e -45° .

É possível perceber que há grande simetria, quando comparadas as medidas a $+45^\circ$ e -45° e que elas são invertidas em relação ao eixo vertical. Essa inversão se deve à mudança na orientação do analisador e é um resultado esperado nesse tipo de equipamento.

Na coluna da esquerda, figura [4.19], estão as curvas com a diferença entre as medidas $+45^\circ$ e -45° . Como mostrado anteriormente, estes resultados fornecem informações sobre a componente perpendicular da magnetização, enquanto que os da coluna da direita, obtidos pela adição das curvas experimentais, representam a componente planar da magnetização.

FIG.4.19 - Soma e subtração das medidas a $+45^\circ$ e -45° .

FIG.4.19(continuação) - Soma e subtração das medidas a $+45^\circ$ e -45° .

Nas figuras de [4.20a] a [4.20c] são apresentados gráficos comparativos entre medidas obtidas por diferentes métodos e algumas relações podem ser obtidas a partir desses gráficos. É possível, por exemplo, comparar a intensidade relativa do sinal Kerr nas somas e subtrações ([4.20a]). Ambas têm um vale entre 50 e 100K, que como pode ser verificado em [4.20b], é uma região em que a magnetização sofre uma diminuição (provavelmente aí está a compensação).

Ainda em [4.20b], uma comparação interessante pode ser feita entre a medida do MEK-pol e a do SQUID. Ambas apresentam um diminuição no sinal na região entre 50 e 100K, mas a variação na medida do SQUID é menor que 30%, enquanto no Kerr há uma variação de quase 70% no sinal.

Variações no sinal magnetoóptico com picos mais estreitos foram também observadas em ligas com menor anisotropia local, tais como Gd-Co ou Dy-Co[48].

Em [4.20c], são comparados os campos nos quais ocorrem os picos nas curvas de soma ($H_{\max}$) e os campos coercivos (H_c) das curvas de subtração. Para temperaturas menores que 50K, $H_{\max}$ aproxima-se dos valores de coercividade, coincide em 50K e, depois dessa temperatura, volta a se afastar.

Considerando-se que abaixo da temperatura de compensação a componente magnética da terra rara é mais significativa que a dos metais de transição e, acima dela, menos significativa, sabendo, ainda, que o MEK-pol fornece um sinal que está ligado à magnetização dos metais de transição, é possível interpretar esse pico como mais um indício de que a compensação ocorre próximo dessa temperatura.

a

b

c

FIG.4.20 - Comparações entre diferentes medidas.

A seguir será descrita a caracterização de outra amostra em função da temperatura.

Amostra 7 - $Tb_{23}(Fe_{90}Co_{10})_{77}$

Os resultados apresentados na figura [4.21] referem-se às medidas feitas com o MEK-pol na amostra número 7 com o analisador orientado $\pm 45^\circ$ em relação ao plano luminoso.

FIG.4.21 - Medidas com MEK-pol em função da temperatura.

Nessas medidas, pode-se notar um grande aumento da coercividade quando a temperatura diminui para valores próximos de 150K.

Esse resultado concorda com os valores obtidos com SQUID, pois, próximo de 150K há um pico na coercividade.

As medidas feitas abaixo de 200K mostram que não há campo magnético suficiente para saturar a amostra, não permitindo obter corretamente os valores de coercividade nessa faixa de temperaturas. No SQUID, esta amostra satura com campo de 25kOe quando a temperatura é 100K (figura [4.10d]).

Outro detalhe é o formato retangular das curvas de histerese em 250 e 270K, o que evidencia a orientação perpendicular da magnetização dessa amostra.

Exemplos isolados

Algumas comparações entre as medidas feitas com o SQUID e o MEK-pol e entre o SQUID e o MAV estão apresentadas nas figuras de [4.14a] a [4.14d]. De modo geral, as curvas são muito parecidas, mas a coercividade obtida com o SQUID é, na maioria dos casos, menor que nas outras medidas.

Uma das possíveis explicações é que, no SQUID, devido ao método de fixação da amostra, ela pode não ficar exatamente perpendicular ao campo aplicado, saindo da orientação de eixo fácil. Outra possível explicação, está ligada ao fato de se obter informações magnéticas locais com o MEK e globais com o SQUID. Assim, no MEK, os efeitos dos arranjos de domínios magnéticos nas bordas do filme não afetam a medida, enquanto que no SQUID esses efeitos são bastante significativos. Uma combinação desses efeitos parece razoável para se explicar as diferenças.

Os resultados apresentados nas figuras de [4.14a] a [4.14d], tiveram as escalas modificadas para permitir melhor comparação entre os dados. O critério escolhido foi de normalizar o sinal em 1 para um campo aplicado de 5kOe.

Outro argumento que pode justificar os diferentes valores de coercividade está ligado à taxa de varredura do campo magnético. As medidas no MEK e no MAV foram realizadas no mesmo eletroímã e com a mesma fonte de alimentação, mas, em geral, o tempo para se variar o campo de 20kOe até -20kOe em uma medida típica do MEK está entre 5 e 10 minutos, enquanto no MAV, para a mesma variação do campo o tempo varia de 5 a 20 minutos.

No SQUID, cada medida é realizada depois de se estabilizar o campo em um valor previamente determinado, assim, a dinâmica dos processos envolvidos nas várias medidas

é diferente e, como consequência disso, a resposta do sistema também muda.

As curvas em [4.14a], dão ótimo exemplo da comparação que se pode fazer entre medidas no MAV e no SQUID. O comportamento de ambas as curvas é muito semelhante, exceto quando comparadas as coercividades, que se diferenciam por algo em torno de 5000e.

Em [4.14b] a [4.14d], a comparação se faz entre o SQUID e o MEK. Novamente, as curvas têm ótima concordância de comportamento e as curvas do SQUID apresentam menor coercividade que as do MEK, exceto a 100K ([4.14b]), quando as curvas se cruzam para alguns valores de campo.

FIG.4.14 - Comparação entre medidas com diferentes equipamentos.

Em outra situação, apresentada na figura [4.15a], o valor da coercividade obtido com o MAV ficou ligeiramente maior que o do MEK. O comportamento geral é reprodutível e as medidas apresentam ótima concordância.

FIG.4.16 - Comparações entre MEK e MAV.

- CAPÍTULO 5 -

Conclusões

Um magnetômetro a efeito Kerr (MEK-pol) foi desenvolvido para fazer medidas na configuração polar, o que nos permite caracterizar, magnetoópticamente, amostras com anisotropia magnética perpendicular. Esse equipamento permite medidas na faixa de 7 a 400K de temperatura, em vácuo de 10^{-6} Torr e com campo de até 20kOe. Foi adaptado a outro que já permitia fazer medidas das componentes planares da magnetização e, portanto, temos condições de caracterizar amostras em função da temperatura nas 3 configurações possíveis do efeito Kerr.

Conjuntos de filmes finos amorfos de Tb-Fe e de Tb-FeCo foram produzidos por *sputtering*, a partir de alvos simples e compostos, com espessura maior que 700Å. Esses filmes foram caracterizados com esse magnetômetro e algumas relações entre as medidas obtidas por diferentes métodos foram estabelecidas, permitindo tirar conclusões sobre o funcionamento do MEK-pol.

As medidas magnéticas foram feitas com um magnetômetro de amostra vibrante e um SQUID, sendo que esse último forneceu informações de magnetização em função da temperatura, possibilitando a comparação com os dados do MEK.

Os resultados fornecidos pelo MAV, mostraram que os filmes têm anisotropia magnética perpendicular ao plano do filme, característica importante nessa classe de materiais, se considerarmos que o seu principal uso é em gravação magnética. Nas curvas obtidas à temperatura ambiente, a coercividade na direção perpendicular ficou entre 2,6 e 7kOe, enquanto que na direção do plano do filme, não ultrapassou os 2kOe, tendo ficado, em média, em 500Oe. As medidas do MEK concordaram com esse resultado e isso pôde ser notado pelo formato retangular das curvas e pelos valores das coercividades.

A resposta do MEK-pol em função de sua configuração, foi analisada e constatamos que a orientação do analisador não interfere no resultado obtido. Esse comportamento foi verificado com o analisador em três diferentes orientações (30° , 45° e 60°) e nos permitiu escolher uma configuração para as medidas. Essa escolha foi arbitrária, visto que em todas as configurações, as curvas apresentaram perfil bastante liso, demonstrando ótima qualidade de medida e estabilidade do sistema.

Após a definição da configuração, aplicamos um método matemático para subtrair sinais indesejados, de caráter par, que aparecem nas medidas, provenientes de deformações mecânicas causadas pelo campo magnético sobre a estrutura do MEK. O método foi apresentado e aplicado a todos os resultados.

Foram feitas medidas em função da temperatura e o comportamento das amostras foi comparado com o obtido por SQUID. Eles apresentaram concordância satisfatória e, em alguns aspectos, o MEK mostrou-se mais versátil. Um exemplo é a possibilidade de se fazer as medidas em um tempo mais curto. Um conjunto completo de medidas com o MEK, que forneça ciclos de histerese entre 15 e 300K, pode ser realizado em 8 ou 10 horas, enquanto que o mesmo conjunto de dados, seria obtido com o SQUID em pelo menos 24 horas.

Mostramos, também, a partir das equações de reflexão da luz, que nosso sistema permite separar informações sobre as componentes planar e perpendicular da magnetização, apenas com uma mudança na orientação do polarizador. Medidas com alteração na posição do analisador foram realizadas e os resultados confirmam os resultados teóricos. Essa característica permite que o MEK-pol seja também usado em medidas que forneçam informação da magnetização planar dos filmes finos.

Para se analisar as curvas de histerese das amostras em função da temperatura, foram desenvolvidas rotinas de programação baseadas na teoria do campo médio. Algumas comparações entre os cálculos e os dados experimentais foram feitas e, em alguns casos, foi possível verificar boa concordância entre os resultados.

Não foi possível determinar exatamente a composição das amostras ternárias. Com esse dado, seria possível verificar a influência de cada elemento em determinadas características, como temperatura de compensação e de Curie, além de diminuir os parâmetros a serem ajustados nos cálculo de magnetização feitos com a teoria do campo médio. Entretanto, mesmo com essa deficiência, foi possível demonstrar que os cálculos se aplicam bem à esse estudo.

De modo geral, as amostras apresentaram temperatura de compensação muito abaixo da temperatura ambiente, o que as desqualificaria do ponto de vista comercial. No entanto, não tínhamos como objetivo primeiro, obter amostras comerciais, mas apresentar resultados de caracterização com o MEK e outras técnicas disponíveis.

Os valores encontrados para a compensação estão abaixo de 150K, sendo que o melhor parâmetro para determinar essa temperatura foi a variação na coercividade das amostras. Algumas tiveram sua coercividade aumentada de 4kOe à temperatura ambiente para até 12kOe na compensação. Essa grande variação foi explicada pela relação entre H_c e o inverso de M_s .

Essas amostras apresentaram alta qualidade superficial, bom sinal magnetoóptico e curvas limpas, com intensidade relativa do efeito Kerr em torno de 10^{-2} , como pôde ser verificado nas curvas obtidas com o MEK.

O MEK-pol, por sua vez, foi submetido a vários testes e demonstrou resultados amplamente satisfatórios acerca de seu

funcionamento e aplicabilidade na caracterização de filmes finos amorfos a base de metais de transição e terras raras.

- BIBLIOGRAFIA -

- [1] A.B. Marchand, **Optical recording - a technical overview**. Boston: Addison-Wesley Publishing Company, 1990.
- [2] M. Mansuripur, **The physical principles of magneto-optical recording**. Cambridge University Press, 1998.
- [3] M.H. Kryder, **Data storage technologies for advanced computing**. *Scientific American* **257**, 116 (1987).
- [4] G.A.N. Connell, **Magneto-optics and amorphous metals: an optical storage revolution**. *J. Mag. Magn. Mat.* **54-57**, 1561 (1988).
- [5] C.M. Goldstein, **Optical disk technology and information**. *Science* **215**, 862 (1982).
- [6] P. Hansen & H. Heitmann, **Media for erasable magneto-optical recording**. *IEEE Trans. Magn.* **MAG-25**, 4390 (1989).
- [7] P. Chaudari, J.J. Cuomo & R.J. Gambino, **Amorphous metallic films for magneto-optic applications**. *Appl. Phys. Lett.* **22**, 337 (1973).
- [8] Y. Mimura, N. Inamura, T. Kobaiashi, A. Okada & Y. Kushiro, **Magnetic properties of amorphous alloy films of Fe with Gd, Tb, Dy, Ho and Er**. *J. Appl. Phys.* **49**, 1208 (1978).
- [9] Y. Togami, **Magneto-optic disk storage**. *IEEE Trans. Magn.* **MAG-18**, 1233 (1980).
- [10] A. Gangulee & R.J. Kobliska, **Mean-field analysis of the magnetic properties of amorphous transition metal-rare earth alloys**. *J. Appl. Phys.* **49**, 4896 (1978).
- [11] G. Bate, **Materials challenges in metallic, reversible, optical recording media: a review**. *IEEE Trans. Magn.* **MAG-23**, 156 (1987).
- [12] M. Hartmann, J.M. Braat & B.A. Jacobs, **Erasable magneto-optical recording media**. *IEEE Trans. Magn.* **MAG-20**, 1013 (1984).

- [13] Y. Aoki, T. Ihashi, N. Sato & S. Miyaoka, **A magneto-optical recording system using TbFeCo.** *IEEE Trans. Magn. MAG-21*, 1624 (1985).
- [14] T. Deguchi, H. Katayama, A. Takahashi, K. Ohta, S. Kobaiashi & T. Okamoto, **Digital magnetooptic disk drive.** *Appl. Opt.* **23**, 3972 (1984).
- [15] P. Hansen, C. Clausen, G. Much, M. Rosenkraz & K. Witter, **Magnetic and magneto-optical properties of rare-earth transition-metal alloys containing Gd, Tb, Fe and Co.** *J. Appl. Phys.* **66**, 756 (1989).
- [16] N. Imamura, S. Tanaka, F. Tanaka & Y. Nagao, **Magneto-optical recording on amorphous films.** *IEEE Trans. Magn. MAG-21*, 1607 (1985).
- [17] R. Frankental, R. vanDover & D. Siconolfi, **Duplex coatings for the protection of magneto-optical alloys against oxidation.** *Appl. Phys. Lett.* **51**, 542 (1987).
- [18] M. Terao, S. Horigone, K. Shigematsu, Y. Miyauchi & M. Nakazawa, **Oxidation resistance of Pb-Te-Se optical recording films.** *J. Appl. Phys.* **62**, 1029 (1987).
- [19] M. Kobaiashi, M. Asano, Y. Maeno, K. Oishi & K. Kawamura, **High corrosion-resistant magneto-optical recording media using TbFeCoTi films.** *Appl. Phys. Lett.* **50**, 1694 (1987).
- [20] T. Niihara, F. Kirino, N. Ogihara, E. Koyama, R. Sudou, K. Shigematsu & N. Ohta, **High corrosion-resistant magneto-optical film on a new plastic substrate.** *IEEE Trans. Magn. MAG-24*, 2437 (1988).
- [21] B.D. Cullity, **Introduction to magnetic materials.** Massachusetts: Addison-Wesley Publishing Company, 1972.
- [22] S. Chikazumi & S.H. Charap, **Physics of Magnetism.** Florida: R.E. Krieger, 1964.
- [23] T. Egami, C.D. Graham Jr., W. Dmowski, P. Zhou & P.J. Flanders, **Anisotropy and coercivity of amorphous RE-TM films.** *IEEE Trans. Magn. MAG-23*, 2269 (1987).

- [24] W.H. Miklejohn, F.E. Luborsky & P.G. Frishmann, **On the origin of Ku in amorphous RE-TM magneto-optic recording materials.** *IEEE Trans. Magn.* **MAG-23**, 2272 (1987).
- [25] Y. Susuki, S. Takayama, F. Kirino & N. Ohta, **Single ion model for perpendicular magnetic anisotropy in RE-TM amorphous films.** *IEEE Trans. Magn.* **MAG-23**, 2275 (1987).
- [26] H.K. Lachowicz, **Properties and applications of heavy rare-earth transition metal amorphous films.** *IEEE Trans. Magn.* **MAG-20**, 1417 (1986).
- [27] R.J. Gambino & J.J. Cuomo, **Seletive re-sputtering-induced anisotropy in amorphous films.** *J. Vac. Sci. Technol.* **15**, 296 (1978).
- [28] M. Cyrot, **Magnetism of metals and alloys.** Amsterdam: North-Holland, 1982.
- [29] C. Kittel, **Introduction to Solid State Physics**, 5th ed., New York: Willey, 1976.
- [30] J. Daval & B. Bechevet, **Rare earth transition metal alloys for magneto-optical recording.** *J. Magn. Magn. Mater.* **129**, 98 (1994).
- [31] G.S. Cargill III & T. Mizoguchi, **Dipolar mechanisms for magnetic anisotropy in amorphous ferrimagnetic alloys,** *J. Appl. Phys.* **49**, 1753 (1978).
- [32] T. Mizoguchi & G.S. Cargill III, **Magnetic anisotropy from dipolar interactions in amorphous ferrimagnetic alloys,** *J. Appl. Phys.* **50**, 3570 (1979).
- [33] R.C. Taylor & A. Gangulee, **Magnetic anisotropy in evaporated amorphous films of the system $Gdx(Fe_{1-y}Co_y)_{1-x}$.** *J. Appl. Phys.* **48**, 358 (1977).
- [34] Y. Suzuki, J. Haimovich & T. Egami, **Bond-orientational anisotropy in metallic glasses observed by x-ray diffraction,** *Phys. Rev. B* **35**, 2162 (1987).
- [35] M. Hirscher, T. Egami & E.E. Marinero, **Atomistic study of magneto-optical amorphous thin films using synchrotron radiation.** *J. Appl. Phys.* **67**, 4932 (1990).

- [36] X. Yan, M. Hirscher, T. Egami & E.E. Marinero, **Direct observation of anelastic bond-orientational anisotropy in amorphous Tb₂₆Fe₆₂Co₁₂ thin films by x-ray diffraction.** *Phys. Rev. B* **43**, 9300 (1991).
- [37] C.D. Mee & E.D. Daniel, **Magnetic recording.** New York: Mc Graw-Hill, 1988.
- [38] R.P. Hunt, **Magneto-optic scattering from thin solid films.** *J. Appl. Phys.* **38**, 1652 (1967).
- [39] G. Metzger, P. Pluvinage & R. Torquet, **Termes linéaires et quadratiques dans l'effet magnéto-optique de Kerr.** *Ann. Phys.* **10**, 5 (1965).
- [40] A.D. Santos, T. Yonamine, A.P.B. Tufaile, L.G.C. Melo & C.E. Santi, **Técnicas magnetoópticas avançadas.** *Anais da II EBM*, Rio de Janeiro, RJ (1999).
- [41] R. Hasegawa, **Static bubble domain properties of amorphous Gd-Co films.** *J. Appl. Phys.* **45**, 3109 (1974).
- [42] R. Hasegawa & R.C. Taylor, **Magnetization of amorphous Gd-Co-Ni films.** *J. Appl. Phys.* **46**, 3606 (1975).
- [43] N. Heiman, K. Lee, R.I. Potter & S. Kirkpatrick, **Modified mean-field model for rare-earth iron amorphous alloys.** *J. Appl. Phys.* **47**, 2634 (1976).
- [44] R. Hasegawa, **Temperature and compositional dependence of magnetic bubble properties of amorphous Gd-Co-Mo films.** *J. Appl. Phys.* **46**, 5263 (1975).
- [45] R.C. Taylor & A. Gangulee, **Magnetic properties of amorphous Gd-Fe-B and Gd-Co-B alloys.** *J. Appl. Phys.* **53**, 2341 (1982).
- [46] M. Ohring, **The material science of thin films.** Boston: Academic Press Inc., 1992.
- [47] D. Jiles, **Introduction to magnetism and magnetic materials.** New York: Chapman and Hall, 1991.
- [48] A.P.B. Tufaile, **O magnetômetro a efeito Kerr em baixas temperaturas e o filme de Dy-Co.** São Paulo, IFUSP, Dissertação (Mestrado), 1996.

- [49] J.A. Osborne, Demagnetizing factors of the general ellipsoid. *Phys.Rev.* 67, 351 (1945).
- [50] S. Foner, The vibrating sample magnetometer - experiences of a volunteer. *J. Appl. Phys.* 79, 4740 (1996).