

Alma Mater Studiorum · Università di Bologna

---

---

Scuola di Scienze  
Corso di Laurea Magistrale in Fisica

Accoppiamento magnetico di  
scambio e confinamento spaziale in  
film e nanodot di IrMn/NiFe

Relatore:  
Dott.ssa Lucia Del Bianco

Presentata da:  
Federico Chinni

Correlatore:  
Dott. Federico Spizzo

Sessione I  
Anno Accademico 2013/2014



## Sommario

*L'exchange bias, fenomeno legato allo spostamento del ciclo di isteresi lungo l'asse del campo magnetico, è osservato nei materiali ferromagnetici(FM)-antiferromagnetici(AFM) accoppiati per scambio. Il suo studio, soprattutto nelle nanostrutture, è interessante sia da un punto di vista fenomenologico sia per ragioni tecnologiche. In campo teorico, la riduzione delle dimensioni laterali nei sistemi FM-AFM può portare a sostanziali cambiamenti nell'entità dello spostamento del ciclo e nella coercitività. Da un punto di vista tecnologico, lo studio del fenomeno di exchange bias è incentivato dal grande sviluppo dello storage magnetico e della spintronica; le testine di lettura sono tipicamente composte da valvole di spin o strutture a giunzione tunnel, nelle quali i bistrati FM-AFM accoppiati per scambio costituiscono una parte essenziale. Inoltre, è stato recentemente dimostrato che le interazioni di scambio FM-AFM possono essere usate per migliorare la stabilità dei mezzi di registrazione magnetica.*

*Questo lavoro di tesi riporta lo studio del fenomeno di exchange bias in film sottili di  $\text{IrMn}/\text{NiFe}$  ed in dots di uguale composizione ma con diverse dimensioni (1000, 500 e 300 nm), allo scopo di comprendere come il confinamento spaziale influenzi il meccanismo di accoppiamento di scambio e la sua evoluzione magnetotermica. I campioni sono stati preparati mediante litografia a fascio di elettroni e dc-magnetron sputtering e caratterizzati strutturalmente attraverso tecniche di microscopia elettronica.*

*Lo studio delle proprietà magnetiche è stato realizzato mediante magnetometria ad effetto Kerr magneto-ottico, tecnica molto efficace per indagini su film sottili e nanostrutture, di cui la tesi riporta un'ampia trattazione.*

*Infine, i risultati sperimentali sono stati affiancati a simulazioni micromagnetiche, così da ottenere un quadro completo dell'effetto di exchange bias nel sistema  $\text{IrMn}/\text{NiFe}$ .*



# Indice

<b>Introduzione</b>	<b>iii</b>
<b>1 Principi di magnetismo</b>	<b>1</b>
1.1 Il concetto di magnetizzazione . . . . .	2
1.2 Ferromagnetismo ed antiferromagnetismo . . . . .	4
1.3 Forme di anisotropia . . . . .	12
1.3.1 Anisotropia magneto-cristallina . . . . .	12
1.3.2 Anisotropia di forma . . . . .	13
1.3.3 Anisotropia da deformazione . . . . .	15
1.3.4 Anisotropia di superficie . . . . .	16
1.4 Domini e processi di magnetizzazione . . . . .	17
1.4.1 Pareti di dominio . . . . .	17
1.4.2 Formazione di strutture a multi-dominio . . . . .	19
1.4.3 Il modello di Stoner-Wohlfarth: particelle a singolo dominio . . . . .	21
1.5 Superparamagnetismo . . . . .	24
1.6 Effetto di <i>exchange bias</i> . . . . .	28
1.6.1 Fenomenologia . . . . .	29
<b>2 Modalità di realizzazione dei <i>nanodots</i></b>	<b>37</b>
2.1 Deposizione per <i>sputtering</i> . . . . .	38
2.1.1 <i>Planar magnetron discharge</i> . . . . .	40
2.2 Sistema di deposizione <i>dc-magnetron sputtering</i> . . . . .	42

---

2.2.1	Oscillatore al quarzo . . . . .	45
<b>3</b>	<b>Effetto Kerr per misure magneto-ottiche</b>	<b>47</b>
3.1	Modello classico per l'effetto magneto-ottico nei dielettrici . .	48
3.1.1	Il tensore suscettività . . . . .	49
3.1.2	Gli indici di rifrazione . . . . .	50
3.1.3	Effetto Faraday . . . . .	52
3.2	Effetti magneto-ottici nei ferromagneti . . . . .	53
3.2.1	Formalismo macroscopico per l'effetto Kerr longitudinale	56
3.3	Descrizione dell'apparato sperimentale . . . . .	57
<b>4</b>	<b>Risultati</b>	<b>61</b>
4.1	Le regioni analizzate . . . . .	63
4.2	Risultati sperimentali . . . . .	64
4.2.1	Proprietà magnetiche e strutturali del film continuo di IrMn/NiFe . . . . .	67
4.2.2	Effetto di <i>exchange bias</i> nei <i>nanodots</i> . . . . .	72
<b>5</b>	<b>Simulazioni micromagnetiche</b>	<b>77</b>
5.1	L'equazione di Landau-Lifshitz-Gilbert . . . . .	78
5.2	Risultati conseguiti su sistemi accoppiati per scambio . . . . .	79
	<b>Conclusioni</b>	<b>87</b>
	<b>Bibliografia</b>	<b>91</b>

# Introduzione

Oggi, la crescente domanda per la miniaturizzazione dei dispositivi magnetici ha portato ad un sempre maggiore interesse per lo studio delle proprietà magnetiche di strutture nanometriche. Il magnetismo su scala nanometrica ha dimostrato di possedere notevoli potenzialità nel campo delle applicazioni tecnologiche, quali lo sviluppo dello *storage* magnetico e della spintronica. I recenti progressi nel settore della litografia elettronica ad alta risoluzione hanno favorito lo studio del comportamento magnetico di sistemi confinati spazialmente. In tali strutture due o più dimensioni sono generalmente limitate a lunghezze dell'ordine del nanometro ed i materiali utilizzati per fabbricarle possono essere, ad esempio, leghe con proprietà ferromagnetiche od antiferromagnetiche.

L'accoppiamento tra un ferromagnete(FM) ed un antiferromagnete(AFM) può far nascere un'anisotropia unidirezionale nel FM, la quale si manifesta nel fenomeno di *exchange bias*. La sua principale caratteristica è lo *shift* del ciclo di isteresi del FM lungo l'asse del campo magnetico. Tale forma di anisotropia deriva presumibilmente dal modo in cui si dispongono gli spin AFM all'interfaccia [29], anche se manca ancora una conoscenza dettagliata del fenomeno. Una comprensione dell'*exchange bias* è importante per molte applicazioni magneto-elettroniche dal momento che, grazie ad essa, è possibile controllare l'orientazione di uno strato FM, il quale servirà come *layer* di riferimento per una grande varietà di dispositivi come valvole di spin ed elementi per memorie magnetiche (MRAM, *Magneto-resistive Random Access Memory*).

Il passaggio da film continui a *nanodots* porta a notevoli cambiamenti nella configurazione magnetica e nel modo in cui la magnetizzazione si inverte, con conseguenti modifiche nella manifestazione dell'*exchange bias*. Quando le dimensioni dell'elemento nanometrico diventano paragonabili a lunghezze di scala critiche, come la larghezza delle pareti di dominio o la taglia critica di singolo dominio, la struttura a multi-dominio del materiale *bulk* diventa energeticamente sfavorita e possono nascere stati di magnetizzazione non uniforme (ad esempio, stati a vortice). Inoltre, la diminuzione delle dimensioni rende la magnetizzazione soggetta ad instabilità termica e può portare, infatti, sino ad uno stato superparamagnetico caratterizzato da assenza di coercitività. In quest'ottica, scopo principale di questa tesi è stato lo studio del fenomeno di *exchange bias* in film sottili di *IrMn/NiFe* ed in *dots* di uguale composizione e dimensioni diverse (1000, 500 e 300 nm), al fine di comprendere come il confinamento spaziale influenzi il meccanismo di accoppiamento di scambio e la sua evoluzione magnetotermica. Questo lavoro si inserisce nel progetto FIRB2010 ('*Tailoring the magnetic anisotropy of nanostructures for enhancing the magnetic stability of magnetoresistive devices - NANOREST*').

La tesi è suddivisa in cinque capitoli. Nel primo capitolo si introducono alcuni argomenti generali del magnetismo, necessari per comprendere il fenomeno di *exchange bias* e la problematica della stabilità termica della magnetizzazione. Il secondo capitolo riguarda le tecniche di produzione dei campioni: essi sono stati realizzati mediante litografia a fascio elettronico con *lift-off* e *dc-magnetron sputtering*, grazie alla collaborazione tra il Dipartimento di Fisica ed Astronomia dell'Università di Bologna, il Dipartimento di Fisica e Scienze della Terra dell'Università di Ferrara e l'Istituto di Fotonica e Nanotecnologie (CNR-IFN) di Roma. Il terzo capitolo tratta in maniera approfondita l'effetto Kerr magneto-ottico (MOKE) e descrive il *set up* sperimentale che si è utilizzato, installato presso il Dipartimento di Fisica e Scienze della Terra dell'Università di Ferrara. L'effetto Kerr magneto-ottico consiste nella variazione della polarizzazione di un fascio di luce riflesso da una superficie magnetica; le proprietà ottiche di quest'ultima risultano legate all'orientazione degli spin degli elettroni, cioè allo stato di magnetizzazione del mezzo. Il quarto capitolo è dedicato alla presentazione dei risultati otte-

---

nuti sul sistema  $Ir_{25}Mn_{75}/Ni_{80}Fe_{20}$  in forma di film continuo e di *patterns* di *dots* quadrati di differenti dimensioni. Anche grazie al supporto di indagini strutturali mediante tecniche di microscopia elettronica, è stato possibile ottenere un modello fenomenologico in grado di spiegare le proprietà di *exchange bias* e la loro dipendenza dalla temperatura, unitamente agli effetti del confinamento spaziale. Infine, nel quinto capitolo, sono descritte le simulazioni micromagnetiche effettuate tramite il software *OOMMF* (*Object Oriented MicroMagnetic Framework*) che hanno costituito un ulteriore importante supporto all'interpretazione dei risultati sperimentali.



# Capitolo 1

## Principi di magnetismo

Esistono diverse classificazioni dei materiali in base alle loro proprietà magnetiche. La classificazione che distingue le sostanze *diamagnetiche*, *paramagnetiche* e *ferromagnetiche* è basata sulle diverse reazioni dei materiali sottoposti all'azione di un campo magnetico esterno. Quando un materiale diamagnetico viene immerso in un campo magnetico, esso reagisce indebolendo il campo esterno con un piccolo momento magnetico diretto in verso opposto. Questo fenomeno è l'effetto macroscopico di correnti elettriche atomiche nel materiale, i cui momenti magnetici hanno verso contrario al campo applicato. Il comportamento paramagnetico riguarda materiali i cui atomi sono dotati per loro natura di un momento magnetico proprio. In presenza di un campo magnetico esterno i singoli momenti magnetici tendono ad allinearsi lungo la direzione del campo applicato, rinforzandolo. I fenomeni paramagnetici dipendono generalmente dalla temperatura; più precisamente l'intensità del momento magnetico indotto è inversamente proporzionale alla temperatura. Ad alte temperature l'allineamento dei momenti magnetici atomici lungo la direzione del campo è ostacolato dal moto vibrazionale di agitazione termica degli atomi stessi. Una sostanza si dice ferromagnetica se è in grado di conservare un momento magnetico anche una volta rimosso il campo magnetizzante. Questo effetto è il risultato di una forte interazione tra i momenti magnetici atomici. I materiali ferromagnetici sono divisi in piccole aree chiamate domini; in presenza di un campo magnetico esterno i domini, che normalmente hanno un'orientazione casuale, si allineano lun-

go la direzione del campo applicato determinando la magnetizzazione del materiale. L'energia spesa per smagnetizzare il materiale ferromagnetico magnetizzato si manifesta in un ritardo nella risposta, detto isteresi. Al di sopra della cosiddetta temperatura di Curie i materiali ferromagnetici perdono le loro caratteristiche.

In seguito alle scoperte sulle origini atomiche delle proprietà magnetiche sono state formulate altre classificazioni dei materiali. Si conoscono sostanze per le quali risulta energeticamente favorevole che i momenti si allineino in modo antiparallelo, queste sono dette *antiferromagnetiche*. Al di sopra della temperatura di Néel, l'equivalente della temperatura di Curie, le proprietà antiferromagnetiche scompaiono. Le sostanze cosiddette *ferrimagnetiche* hanno almeno due tipi diversi di momento magnetico atomico, l'uno antiparallelo all'altro. Questi momenti sono di intensità differente e quindi non si annullano, come nel caso antiferromagnetico. Il risultato è un momento magnetico netto in una direzione cristallografica.

I materiali di cui sopra sono di grande importanza nella magneto-elettronica ed il loro utilizzo è in continuo aumento dal momento che svolgono un ruolo cruciale nei fenomeni fisici che si basano sui moderni dispositivi magnetici. In particolare, l'interazione di scambio all'interfaccia tra un antiferromagnete con alta anisotropia ed un ferromagnete dolce fa nascere, nello strato ferromagnetico, una anisotropia di scambio che ha caratteristiche unidirezionali ed è dovuta all'azione del momento torcente esercitato dagli spin dell'antiferromagnete. L'anisotropia di scambio si manifesta in uno spostamento del ciclo di isteresi: questo è l'effetto di *exchange bias*.

## 1.1 Il concetto di magnetizzazione

Ogni materiale sottoposto ad un campo magnetico acquisisce un momento magnetico. Il momento di dipolo per unità di volume è definito *magnetizzazione* ed è indicato con il vettore  $\mathbf{M}$ . In molti materiali  $\mathbf{M}$  è proporzionale ad  $\mathbf{H}$  e vale la seguente relazione

$$\mathbf{M} = \chi_m \mathbf{H} , \quad (1.1)$$

ove  $\chi_m$  è chiamata *suscettività* magnetica del materiale. Solitamente le equazioni di Maxwell sono scritte per il campo  $\mathbf{B}$  di induzione magnetica

$$\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H} + 4\pi\mathbf{M}) , \quad (1.2)$$

dove  $\mu_0$  indica la permeabilità magnetica del vuoto e corrisponde all'unità nel sistema *CGS*<sup>1</sup>. Se l'equazione (1.1) è soddisfatta, sostituendola nella (1.2), si ottiene

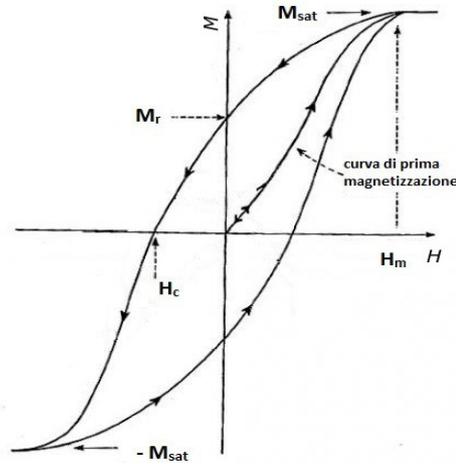
$$\mathbf{B} = \mu\mathbf{H} , \quad (1.3)$$

con

$$\mu = \mu_0(1 + 4\pi\chi_m) = \mu_0\mu_r , \quad (1.4)$$

parametro conosciuto come *permeabilità magnetica*: prodotto fra permeabilità relativa,  $\mu_r$ , e permeabilità del vuoto. Un materiale è classificato come paramagnetico se  $\chi_m > 0$ , cioè  $\mu_r > 1$ , e come diamagnetico se  $\chi_m < 0$ , cioè  $\mu_r < 1$ . In alcuni materiali però la magnetizzazione non è proporzionale al campo applicato e può assumere valori diversi da zero per  $H = 0$ . Per di più la magnetizzazione non è neanche una funzione a singolo valore di  $H$  e dipende dalla storia magnetica del materiale. Essi presentano il fenomeno dell'isteresi magnetica. In figura 1.1 è mostrata la componente di  $\mathbf{M}$  nella direzione del campo applicato come funzione dell'intensità del campo. Si supponga di avere un materiale che non sia mai stato sottoposto ad alcun campo magnetico. Facendo crescere il valore di  $H$ ,  $M$  (ma anche  $B$ ) si dispone su di una curva detta di prima magnetizzazione; quando  $H$  supera un certo valore,  $H_m$ , la magnetizzazione resta costante al suo valore di saturazione. Si indica con  $M_s$  la magnetizzazione di saturazione. Successivamente, se si fa decrescere il valore di  $H$ , il valore di  $M$  non ripercorre la curva di prima magnetizzazione ma ne segue una nuova che si interseca con l'asse delle ordinate al valore  $M_r$ : il materiale è rimasto magnetizzato anche in assenza di campo esterno. Per annullare la magnetizzazione è necessario diminuire ancora  $H$  fino ad arrivare al valore negativo  $H_c$ , detto campo coercitivo, per il quale  $M = 0$ . Se si fa decrescere  $H$  ulteriormente la curva continua fino al valore di saturazione; un'inversione del campo sino ad  $H_m$  consente al ciclo di chiudersi.

<sup>1</sup>Tale sistema di misura verrà adottato in tutto il corso della tesi, eccezion fatta per il Cap.2.



*Figura 1.1: Ciclo di isteresi.*

La forma del ciclo di isteresi dipende dalla composizione del materiale: i materiali cosiddetti duri sono caratterizzati da un ciclo largo mentre quelli definiti dolci hanno un ciclo stretto. La coercitività è, per quanto detto, l'intensità del campo magnetico che è necessario applicare per annullare la magnetizzazione di un materiale che ha raggiunto la saturazione. Quest'ultimo valore di magnetizzazione è un parametro che affonda le sue radici nella teoria a domini di Weiss e rappresenta una proprietà intrinseca del campione.

## 1.2 Ferromagnetismo ed antiferromagnetismo

Qualunque teoria ferromagnetica dovrebbe essere in grado di spiegare sia la presenza del ciclo di isteresi sia la dipendenza della magnetizzazione dalla temperatura.

Alcune osservazioni sono inspiegabili all'interno della teoria microscopica del paramagnetismo ove il materiale è considerato come un sistema di dipoli magnetici non interagenti all'equilibrio termico. In particolare, nei materiali ferromagnetici si possono ottenere valori della magnetizzazione dell'ordine di  $10^3 \text{ emu/cm}^3$  applicando campi esterni di circa  $10 \text{ mOe}$ ; per di più, nonostante il materiale abbia un alto valore di magnetizzazione in campi così

poco intensi, è possibile che lo stesso, in assenza di campo magnetico appaia smagnetizzato. Tali osservazioni sperimentali hanno validità in un ampio intervallo di temperature del sistema; quest'ultimo ha come limite superiore la temperatura di Curie che varia da materiale a materiale ed è usualmente dell'ordine delle centinaia di gradi Celsius.

Fu Weiss nel 1907 [2] il primo ad introdurre una teoria che giustificasse quanto detto sopra. Per comprendere l'alto valore della magnetizzazione spontanea, ossia della magnetizzazione in assenza di campi magnetici esterni, a temperature così elevate, Weiss propose di aggiungere al modello microscopico del paramagnetismo l'ipotesi dell'esistenza di un campo magnetico fittizio, detto campo molecolare, che assume intensità proporzionale alla magnetizzazione. Tale quantità, che va aggiunta ad eventuali campi magnetici esterni, deve essere d'intensità tale che, alla temperatura di Curie, l'energia potenziale associata ad un dipolo del sistema nel campo molecolare sia dell'ordine della sua energia termica

$$H_{mol} \approx \frac{k_B T}{\mu_B} \approx 1.3 \cdot 10^7 \text{ Oe} , \quad (1.5)$$

con  $k_B$  e  $\mu_B$  rispettivamente costante di Boltzmann ( $\approx 1.38 \cdot 10^{-16} \text{ erg/K}^{-1}$ ) e magnetone di Bohr ( $\approx 9.3 \cdot 10^{-21} \text{ erg/G}$ ).

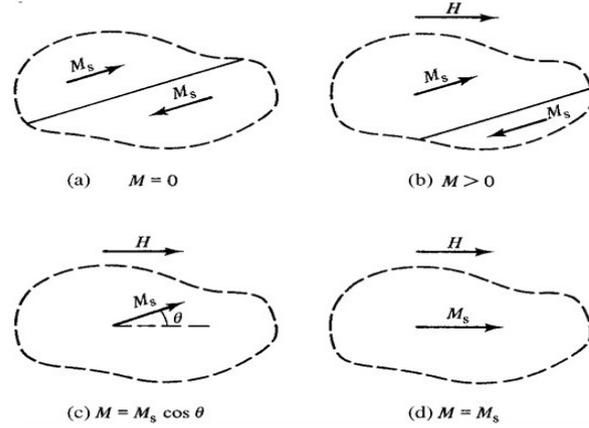
Da tale stima, Weiss concluse che l'origine del campo molecolare non potesse risiedere nelle interazioni di dipolo magnetico tra i vari elettroni del reticolo cristallino del ferromagnete. L'intensità del campo magnetico prodotto dal momento magnetico di un elettrone nel sito reticolare adiacente è

$$H_e \approx \frac{\mu_B}{a^3} \approx 1.3 \cdot 10^3 \text{ Oe} , \quad (1.6)$$

con  $a$  parametro di cella. Come è evidente, tale campo è inferiore di quattro ordini di grandezza rispetto al campo molecolare e condurrebbe ad una stima della temperatura di Curie di circa  $0.1 \text{ K}$ .

Per giustificare poi la presenza dei mezzi smagnetizzati, Weiss propose di introdurre il concetto di dominio magnetico. Un materiale ferromagnetico può essere pensato come costituito da un insieme di regioni, le cui dimensioni dipendono dalla forma e dal campione stesso. Ogni dominio è spontaneamente magnetizzato al valore di saturazione  $M_s$  ma le direzioni di magnetizzazione

dei vari domini sono tali che il materiale, come un tutto, non appare magnetizzato. Il processo di magnetizzazione è allora quello di convertirlo da uno stato a multi-dominio ad uno stato a singolo dominio con magnetizzazione nella stessa direzione del campo applicato.



**Figura 1.2:** Processo di magnetizzazione in cui si passa da una configurazione a multi-dominio ad una configurazione a singolo dominio. Le linee tratteggiate includono una porzione del cristallo che è divisa in due domini mentre la linea continua che li separa è chiamata parete di dominio [4].

Come è chiaro da quanto detto, paramagneti e ferromagneti possono essere considerati come un insieme di atomi, ciascuno dei quali trasporta un momento magnetico  $\mathbf{m}_S$  la cui intensità è proporzionale allo spin totale trasportato dagli elettroni e soggetto alle stesse regole di quantizzazione:

$$m_S = g\mu_B\sqrt{S(S+1)}, \quad (1.7a)$$

$$m_{S_z} = g\mu_B S_z, \quad (1.7b)$$

ove  $g$  è il cosiddetto fattore di Landé e  $S$  è il numero quantico associato al momento angolare di spin;  $S_z$ , componente lungo l'asse  $z$  di  $S$ , può assumere valori discreti nell'intervallo  $[-S, S]$ .

Gli spin atomici nei materiali ferromagnetici interagiscono fra loro ed ognuno

cerca di allineare gli altri nella sua stessa direzione (nel rispetto del principio di esclusione di Pauli); tale interazione è di natura elettrostatica ed emerge, per l'appunto, all'interno della trattazione quantomeccanica dei sistemi a molti elettroni.

L'effetto del campo molecolare è associato a tale interazione, la quale può essere espressa come un'energia di scambio tra gli spin. Il fatto che si stia trattando con sistemi a molti elettroni rende inevitabile qualche approssimazione: si considera, in particolare, l'approssimazione di campo medio [3]. Quest'ultima consiste nel prendere uno spin come riferimento per controllare con maggiore precisione il suo andamento statistico ( $\mathbf{S}_i$ ) mentre gli altri sono sostituiti dal loro valore di aspettazione ( $\langle \mathbf{S}_j \rangle$ ). In quest'ottica, l'energia totale del sistema sarà data dalla somma di due termini, uno dovuto all'interazione fra lo spin  $\mathbf{S}_i$  ed il campo magnetico, l'altro all'interazione di scambio

$$E_i = -2 \sum_j J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \langle \mathbf{S}_j \rangle - g\mu_B \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{H} . \quad (1.8)$$

I parametri  $J_{ij}$  sono chiamati integrali di scambio. Nel caso di interazione ferromagnetica, caratterizzata da una configurazione a spin paralleli, il termine di scambio viene minimizzato nel caso di coefficienti  $J_{ij}$  positivi. L'equazione può essere riscritta in maniera più elegante nel modo seguente

$$E_i = -\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{H}_i , \quad (1.9)$$

con

$$\mathbf{H}_i = g\mu_B \mathbf{H} + 2 \sum_j J_{ij} \langle \mathbf{S}_j \rangle . \quad (1.10)$$

Come si può notare, l'interazione di scambio tra gli spin è del tutto equivalente all'interazione di ogni spin con un campo effettivo che non svanisce anche nel caso in cui il campo esterno applicato sia nullo. Quest'ultima considerazione permette di apprezzare le analogie e le differenze fra l'energia associata rispettivamente ad un paramagnete ed a un ferromagnete

$$E = -g\mu_B \mathbf{S} \cdot \mathbf{H} , \quad (1.11a)$$

$$E_i = -\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{H}_i . \quad (1.11b)$$

Se si sceglie come direzione del campo applicato l'asse  $z$ , il valor medio di  $\mathbf{m}_S$  nella stessa direzione, alla temperatura  $T$ , può essere scritto, in accordo con

la meccanica statistica, in termini del valore di aspettazione del momento angolare di spin come

$$\langle S_{iz} \rangle = \frac{\langle m_{Siz} \rangle}{g\mu_B} = SB_s \left( \frac{SH_i}{k_B T} \right), \quad (1.12)$$

ove  $H_i$  è definito dall'equazione (1.10) e  $B_s$  è la cosiddetta funzione di Brillouin

$$B_s(x) = \frac{2S+1}{2S} \coth\left(\frac{2S+1}{2S}x\right) - \frac{1}{2S} \coth\left(\frac{x}{2S}\right). \quad (1.13)$$

Come è evidente, non c'è alcuna differenza tra gli spin che descrivono il valore di aspettazione del momento e quelli che compaiono nell'equazione (1.10); l'espressione (1.12) diventa

$$\langle S_z \rangle = SB_s \left( \frac{S}{k_B T} \left[ g\mu_B H + 2 \langle S_z \rangle \sum_j J_{ij} \right] \right). \quad (1.14)$$

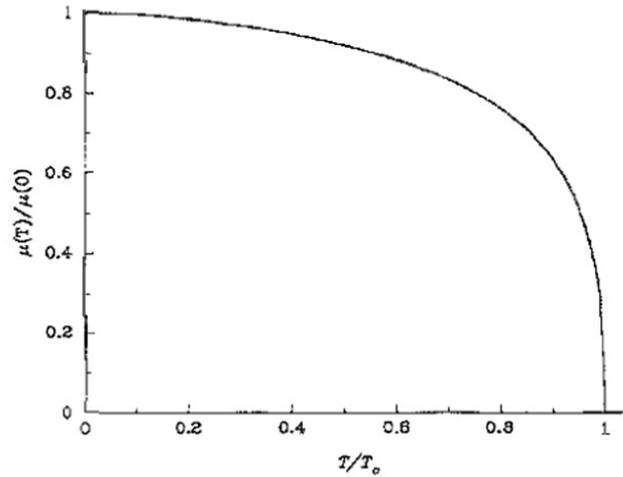
La (1.14) presenta però un inconveniente dal momento che la somma sui  $j$  dipende dagli  $i$ . Si assume allora che  $J_{ij}$  sia nullo per spin che non sono primi vicini e che abbia un valore non nullo,  $J_{ex}$ , nel caso di atomi primi vicini. L'espressione può così essere riscritta in forma compatta come

$$\mu = B_s(h + \alpha\mu), \quad (1.15)$$

ove

$$\begin{aligned} \mu &= \frac{\langle S_z \rangle}{S}, \\ h &= \frac{g\mu_B S H}{k_B T}, \\ \alpha(T) &= \frac{2S^2}{k_B T} \sum_j J_{ij} = \left[ \frac{2S^2}{k_B T} p J_{ex} \right], \end{aligned}$$

con  $p$  numero di primi vicini. Un caso significativo che fa apprezzare, anche se solo in maniera qualitativa, l'andamento della magnetizzazione in funzione della temperatura e la consistenza dell'interazione di scambio è quello per cui  $h = 0$ , mostrato nella figura 1.3 .

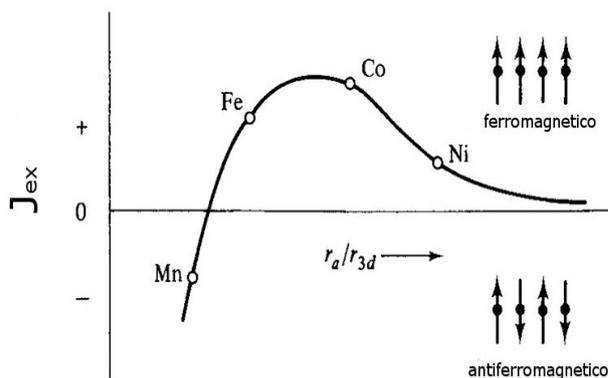


**Figura 1.3:** Soluzione grafica dell'equazione (1.15) nel caso  $h = 0$ . La temperatura è normalizzata rispetto alla temperatura di Curie ( $T_C$ ) sopra la quale l'unica soluzione di questa equazione è  $\mu = 0$  [3].

La trattazione appena esposta è il risultato di due fondamentali assunzioni. In primo luogo, il momento magnetico atomico dovrebbe essere dovuto alla somma di due componenti: una di spin ed una orbitale. Per la maggior parte delle sostanze ferromagnetiche, quest'ultima si trascura dal momento che i campi elettrici prodotti dagli atomi fanno sì che le orientazioni delle orbite elettroniche siano ben fissate al reticolo cristallino. I momenti magnetici orbitali risultano congelati ed il tutto si traduce in una forte interazione orbita-reticolo. Quando si applica un campo magnetico lungo una generica direzione all'interno del cristallo, mentre le orbite ed i loro momenti associati non si girano, gli spin sono liberi di ruotare ed orientarsi lungo la direzione del campo. Ciò significa che soltanto i momenti magnetici associati agli spin contribuiscono al processo di magnetizzazione ed al momento magnetico totale del campione. In secondo luogo, il concetto di interazione tra gli elettroni è molto semplificato. Un forte accoppiamento di scambio implica una grande sovrapposizione spaziale delle funzioni d'onda elettroniche che, però, non può essere realizzata se questi elettroni sono fortemente localizzati. Gli elettroni di conduzione, responsabili della conduzione nei metalli come  $Fe$ ,

*Co* e *Ni*, sono liberi di vagare attraverso la sequenza ionica ed interagiscono in qualche modo con gli elettroni situati in corrispondenza dei siti reticolari. Per tenere conto di questi aspetti si assume valida la *teoria ferromagnetica ad elettrone itinerante*. Si considera, sostanzialmente, un gas di elettroni delocalizzati il cui moto avviene su di un *jellium* uniforme di cariche positive fisse. Tale modello permette, attraverso il calcolo delle bande energetiche di questi elettroni, di ricavare le proprietà magnetiche del sistema come, ad esempio, i valori teorici per gli andamenti della magnetizzazione in funzione della temperatura.

Allo scopo di descrivere un materiale ferromagnetico, caratterizzato da una configurazione a spin paralleli, si sono assunti i coefficienti  $J_{ij}$  positivi; ciò non è valido in generale. La figura 1.4, chiamata curva di Bethe-Slater, mostra la variazione dell'integrale di scambio con il rapporto  $r_a/r_d$ , dove  $r_a$  e  $r_d$  sono rispettivamente il raggio di un atomo ed il raggio della sua *shell 3d*.



**Figura 1.4:** Curva di Bethe-Slater [4].

Quando questa quantità è grande allora  $J_{ex}$  è piccolo e positivo mentre, una volta che diminuisce e gli elettroni nella *shell 3d* sono più vicini, il termine di scambio, che ora favorisce una configurazione a spin paralleli, diventa sempre

più grande per poi decrescere a zero. Un ulteriore decremento nella distanza interatomica porta gli elettroni della *shell 3d* così vicini che gli spin diventano antiparalleli tra loro e, di conseguenza, l'integrale di scambio assume valori negativi. Questa configurazione è chiamata antiferromagnetica.

Tale stato magnetico fu descritto per la prima volta da Luis Néel ancor prima che fosse osservato sperimentalmente. Si consideri un materiale cristallino costituito da due sottoreticoli disposti in modo tale che il primo vicino di ogni spin appartenga all'altro sottoreticolo con il quale interagisce attraverso un accoppiamento di scambio antiferromagnetico  $-J_{ex}$ , con  $J_{ex} > 0$ . Si assuma inoltre che ogni spin, oltre che con  $p$  primi vicini dell'altro sottoreticolo, interagisca anche con  $p'$  vicini all'interno dello stesso grazie ad un accoppiamento di scambio ferromagnetico  $J'_{ex}$ , con  $J'_{ex} \ll J_{ex}$ . Denotando con  $S_1$  e  $S_2$  rispettivamente la componente lungo  $z$  dello spin associato ad ogni sottoreticolo, i campi effettivi agenti su ciascuno spin, in accordo con l'equazione (1.10), sono

$$H_1 = g\mu_B H + 2p'J'_{ex} \langle S_1 \rangle - 2pJ_{ex} \langle S_2 \rangle, \quad (1.16a)$$

$$H_2 = g\mu_B H + 2p'J'_{ex} \langle S_2 \rangle - 2pJ_{ex} \langle S_1 \rangle. \quad (1.16b)$$

Sostituendo queste espressioni nell'equazione (1.12) si ottengono rispettivamente

$$\langle S_1 \rangle = SB_s \left[ \frac{S}{k_B T} (g\mu_B H + 2p'J'_{ex} \langle S_1 \rangle - 2pJ_{ex} \langle S_2 \rangle) \right], \quad (1.17a)$$

$$\langle S_2 \rangle = SB_s \left[ \frac{S}{k_B T} (g\mu_B H + 2p'J'_{ex} \langle S_2 \rangle - 2pJ_{ex} \langle S_1 \rangle) \right]. \quad (1.17b)$$

Nel caso  $H = 0$ , le due equazioni sono simmetriche e diventano uguali con la sostituzione  $\langle S_1 \rangle = -\langle S_2 \rangle$ . La magnetizzazione è la stessa in entrambi i sottoreticoli, solo orientata in direzione opposta. Si può quindi scrivere la seguente:

$$\langle S \rangle = SB_s \left[ \frac{2S}{k_B T} (p'J'_{ex} + pJ_{ex}) \langle S \rangle \right] \quad (1.18)$$

analoga alla (1.14). Si può concludere che, per campo applicato nullo, la magnetizzazione associata ad ogni sottoreticolo di un materiale antiferromagnetico è paragonabile a quella di un mezzo ferromagnetico, con una dipendenza dalla temperatura analoga a quella di figura 1.3. Risulta chiaro, comunque,

come la magnetizzazione totale,  $\langle S_1 \rangle + \langle S_2 \rangle$ , sia nulla nel caso specifico. Quest'ordine strutturale scompare al di sopra di una temperatura di transizione, equivalente al punto di Curie, chiamata temperatura di Néel.

### 1.3 Forme di anisotropia

Nella sezione precedente si è potuto notare come il termine che descrive l'interazione di scambio sia essenzialmente isotropo. La magnetizzazione spontanea può puntare in qualsiasi direzione, senza modificare in alcun modo l'energia interna del sistema; nella realtà preferisce giacere lungo determinate direzioni, privilegiate rispetto ad altre. Ciò significa che le proprietà magnetiche dipendono dalla direzione in cui vengono misurate. Questo fenomeno influenza la forma del ciclo di isteresi ed è chiamato anisotropia magnetica. Ci sono diversi meccanismi che conducono ad essa ed i principali tipi di anisotropia sono [3]:

- – **anisotropia magneto-cristallina**;
- – **anisotropia di forma**;
- – **anisotropia da deformazione**;
- – **anisotropia di superficie**;
- – **anisotropia di scambio** (si veda la sezione 1.6).

#### 1.3.1 Anisotropia magneto-cristallina

L'anisotropia magneto-cristallina è dovuta sostanzialmente all'interazione spin-orbita. Come già sottolineato, nella maggior parte dei materiali ferromagnetici, l'interazione orbita-reticolo è molto forte; di conseguenza, le orbite elettroniche influenzano gli spin causando un allineamento di questi ultimi lungo assi cristallografici ben definiti. È lecito perciò pensare all'anisotropia cristallina come ad una forza che tende ad orientare la magnetizzazione in determinate direzioni cristallografiche. In quest'ottica, se si vogliono allineare i momenti magnetici lungo la direzione di un generico campo applicato è necessario compiere un lavoro contro questa forza. Ci deve quindi

essere un'energia immagazzinata in ogni cristallo, chiamata appunto energia di anisotropia cristallina.

La densità di energia cristallina può essere espressa in termini dei coseni direttori degli angoli che la magnetizzazione di saturazione forma con gli assi cristallini: per un cristallo a struttura cubica vale la formula di Akulov [4]

$$\varepsilon_{mc} = K_0 + K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) + \dots \quad , \quad (1.19)$$

ove  $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$  sono, per l'appunto, i coseni direttori e  $K_0, K_1, K_2$  sono dette costanti di anisotropia. Queste ultime variano a seconda del materiale utilizzato e della temperatura di lavoro e da esse dipende la direzione di facile magnetizzazione. Quando la densità di energia di anisotropia è funzione di un solo angolo,  $\theta$ , l'equazione (1.19) può essere riscritta come

$$\varepsilon_{mc} = K_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + \dots \quad . \quad (1.20)$$

L'energia di anisotropia associata è detta uniassiale: un esempio di cristallo uniassiale è quello con struttura esagonale compatta. A seconda del segno delle costanti di anisotropia e del loro valore relativo si è in presenza di un asse, di un piano o di un cono di facile magnetizzazione.

### 1.3.2 Anisotropia di forma

L'origine di questo tipo di anisotropia è dovuta alle proprietà magnetostatiche della materia. Quando una particella macroscopica o microscopica non è perfettamente sferica la magnetizzazione non è uguale in tutte le direzioni a causa della presenza di un campo smagnetizzante,  $\mathbf{H}_d$ , che dipende direttamente dalla geometria del materiale magnetico. Se si considera un mezzo magnetico di dimensioni finite, uniformemente magnetizzato, la divergenza della magnetizzazione non è nulla sul contorno e si genera, di conseguenza, una carica magnetica fittizia che agisce da sorgente per il campo smagnetizzante che, in assenza di correnti libere e campi elettrici, è conservativo. Quest'ultimo agisce su tutto il volume  $V$  ed è diretto antiparallelamente rispetto alla magnetizzazione. L'energia magnetostatica del materiale si può scrivere come

$$E_{ms} = -\frac{1}{8\pi} \int_V \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_d \, d\tau \quad . \quad (1.21)$$

Nel caso di una particella di forma ellissoidale con magnetizzazione uniforme  $\mathbf{M}$ , il campo  $\mathbf{H}_d$  è descritto dalla seguente espressione

$$\mathbf{H}_d = -\mathcal{N}_d \mathbf{M} , \quad (1.22)$$

ove  $\mathcal{N}_d$  è il tensore di smagnetizzazione a traccia unitaria. Scegliendo come sistema di riferimento cartesiano quello lungo gli assi principali dell'ellissoide, la densità di energia diventa approssimativamente

$$\varepsilon_{ms} = \frac{1}{2} (N_x M_x^2 + N_y M_y^2 + N_z M_z^2) , \quad (1.23)$$

ove  $N_x, N_y, N_z$  sono chiamati fattori smagnetizzanti.

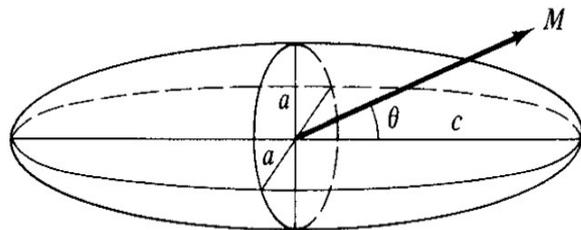
Si consideri, come esempio, la figura 1.5 sottostante in cui è disegnato un campione nella forma di ellissoide prolato con semiasse maggiore  $c$  e semiasse minore  $a$ . Supponendo che il vettore di magnetizzazione  $\mathbf{M}$  formi un angolo  $\theta$  con l'asse  $c$ , l'equazione (1.23) si può riscrivere come

$$\begin{aligned} \varepsilon_{ms} &= \frac{1}{2} \left[ (M \sin \theta)^2 N_a + (M \cos \theta)^2 N_c \right] \\ &= \frac{1}{2} \left[ M^2 N_c + M^2 (N_a - N_c) \sin^2 \theta \right] . \end{aligned} \quad (1.24)$$

L'equazione (1.24) ha le stesse caratteristiche e la stessa dipendenza angolare di una anisotropia uniassiale: l'asse  $c$  gioca lo stesso ruolo dell'asse di facile magnetizzazione. La costante di anisotropia è data dalla seguente espressione:

$$K_{ms} = \frac{1}{2} M^2 (N_a - N_c) . \quad (1.25)$$

È chiaro quindi che l'anisotropia di forma dipende dal rapporto  $c/a$  e dall'intensità della magnetizzazione. Se il campione fosse di forma sferica, il che comporterebbe  $c = a$ ,  $K_{ms}$  sarebbe nullo e l'anisotropia scomparirebbe.



*Figura 1.5: Elissoide prolato [4].*

### 1.3.3 Anisotropia da deformazione

Uno *stress* meccanico può alterare il comportamento magnetico di un materiale conducendo ad un anisotropia magnetica. Una tensione od una compressione si traducono in una deformazione del reticolo cristallino; modificando quest'ultimo è possibile alterare la giacitura della magnetizzazione. In maniera analoga, questa deformazione potrebbe essere dovuta all'effetto della magnetostrizione: quando un materiale è esposto ad un campo magnetico la sua dimensione cambia. Il parametro che esprime questa deformazione è indicato con  $\lambda$  ed il suo valore alla saturazione magnetica è chiamato magnetostrizione di saturazione  $\lambda_{si}$ <sup>2</sup>. Fisicamente questo fenomeno può essere pensato come dovuto ad un aumento del grado di ordine degli spin. La magnetostrizione, indotta dal campo magnetico, è causata dalla conversione di un campione smagnetizzato, costituito da domini spontaneamente deformati in direzioni casuali, in un campione a singolo dominio saturato, deformato in una precisa direzione. Come per l'anisotropia magneto-cristallina anche la magnetostrizione è dovuta principalmente all'accoppiamento spin-orbita.

<sup>2</sup>In questo contesto ci si riferisce al valore ideale misurato a partire dallo stato smagnetizzato; esso costituisce una costante caratteristica del materiale.

Quest'ultimo causa una deformazione delle nuvole elettroniche ed il loro piccolo riorientamento è sufficiente per produrre un effetto misurabile su tutto il campione. In conclusione, sia deformazione magnetostrittiva che *stress* meccanico hanno conseguenze sulle proprietà magnetiche di un materiale, come, ad esempio, permeabilità e rimanenza.

Si consideri un cristallo cubico e si supponga che lo *stress* meccanico applicato su di esso sia di tipo elastico, di intensità inferiore rispetto alla tensione di snervamento. La densità di energia magneto-elastica può essere scritta come [4]

$$\begin{aligned} \varepsilon_{me} = & -\frac{3}{2}\lambda_{si}^{100}\sigma(\alpha_1^2\gamma_1^2 + \alpha_2^2\gamma_2^2 + \alpha_3^2\gamma_3^2) \\ & - 3\lambda_{si}^{111}\sigma(\alpha_1\alpha_2\gamma_1\gamma_2 + \alpha_2\alpha_3\gamma_2\gamma_3 + \alpha_3\alpha_1\gamma_3\gamma_1) , \end{aligned} \quad (1.26)$$

ove  $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$  e  $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$  sono rispettivamente i coseni direttori degli angoli che il vettore di magnetizzazione di saturazione forma con gli assi cristallini e con lo *stress* applicato  $\sigma$  mentre  $\lambda_{si}^{100}$  e  $\lambda_{si}^{111}$  sono le deformazioni magnetostrittive di saturazione lungo le direzioni cristallografiche indicate. Considerando una situazione di sostanziale isotropia magnetostrittiva, per la quale  $\lambda_{si}^{100} = \lambda_{si}^{111} = \lambda_{si}$ , l'equazione (1.26) viene riscritta nel modo seguente

$$\varepsilon_{me} = -\frac{3}{2}\lambda_{si}\sigma + \frac{3}{2}\lambda_{si}\sigma \sin^2 \theta , \quad (1.27)$$

con  $\theta$  angolo tra  $\mathbf{M}_s$  e  $\sigma$ . L'equazione (1.27) ha la stessa forma di una anisotropia uniassiale e, come si può notare, il modo in cui un materiale risponde allo *stress* dipende solo dal segno del prodotto  $\lambda_{si}\sigma$ ; un materiale con  $\lambda_{si}$  positivo sotto tensione si comporta in maniera equivalente ad uno con  $\lambda_{si}$  negativo sotto compressione.

### 1.3.4 Anisotropia di superficie

Il principale fattore che influenza questo tipo di anisotropia è la ridotta simmetria alla superficie. In prossimità di quest'ultima gli spin hanno primi vicini solo da un lato e di conseguenza l'interazione di scambio è differente rispetto a quella dovuta agli spin che si trovano all'interno del materiale ferromagnetico. Da un punto di vista fenomenologico ogni termine energetico superficiale dovrebbe tendere ad orientare gli spin parallelamente o perpendicolarmente rispetto alla superficie. In quest'ottica, il contributo energetico

che descrive l'anisotropia superficiale assume la seguente forma

$$\varepsilon_s = \frac{1}{2} K_s \int_S (\mathbf{n} \cdot \mathbf{v})^2 dS, \quad (1.28)$$

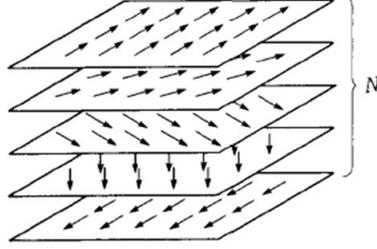
ove  $\mathbf{v}$  è il versore parallelo al vettore di magnetizzazione,  $\mathbf{v} = \frac{\mathbf{M}}{|\mathbf{M}|}$ ,  $\mathbf{n}$  è il versore parallelo alla normale alla superficie e  $K_s$  è un parametro ricavabile sperimentalmente. L'equazione (1.28) esprime, in un certo senso, la possibilità di una dipendenza spaziale della magnetizzazione. Se l'anisotropia superficiale e quella all'interno del materiale sono differenti, il vettore di magnetizzazione modifica gradualmente la sua direzione passando dal *bulk* alla superficie. Naturalmente ciò accade solo se l'energia di anisotropia superficiale è abbastanza intensa da vincere l'energia di scambio che tende a mantenere gli spin allineati.

## 1.4 Domini e processi di magnetizzazione

### 1.4.1 Pareti di dominio

Come risulta evidente dalle sezioni precedenti, mentre la forza magnetostatica controlla il comportamento del sistema su grande scala e non cambia in maniera considerevole anche nel caso due domini siano separati da una distanza pari a molte centinaia di celle unitarie, lo scambio è una forza a corto raggio: è molto intensa tra gli spin primi vicini ed è piuttosto debole od assente tra gli spin molto lontani tra loro. Se le direzioni degli spin primi vicini differiscono di piccoli angoli, grandi cambiamenti, su una distanza di molti atomi, non coinvolgeranno un'intensa energia di scambio.

Al fine di valutare l'energia introdotta da una parete di dominio, si procederà sviluppando un semplice modello [5] per una parete di Bloch a  $180^\circ$ ; essa separa due domini con magnetizzazione opposta in presenza di anisotropia uniaassiale in cui i momenti magnetici atomici ruotano nel piano della parete. La figura 1.6 mostra gli *steps* attraverso i quali gli spin invertono la loro direzione di  $180^\circ$  passando attraverso  $N$  piani atomici. L'angolo  $\phi$  tra gli spin di due strati primi vicini è perciò  $\pi/N$ .



**Figura 1.6:** Rotazione degli spin all'interno della parete di dominio [5].

Si consideri un semplice reticolo cubico con costante reticolare  $a$ . Nell'approssimazione a primi vicini, la variazione di energia di scambio immagazzinata in un'area unitaria, rispetto alla configurazione in cui tutti gli spin sono paralleli, è

$$\delta\xi_{ex} = \frac{2J_{ex}S^2}{a^2} \sum_{i=1}^N (1 - \cos \phi_i) = \frac{4J_{ex}S^2}{a^2} \sum_{i=1}^N \sin^2 \frac{\phi_i}{2}. \quad (1.29)$$

Dal momento che il numero di atomi per unità di area è  $1/a^2$ , il numero di coppie di spin per unità di area della parete è  $N/a^2$  così da poter approssimare l'equazione (1.29), nel caso di  $N$  grande, come

$$\delta\xi_{ex} \approx \frac{J_{ex}S^2\pi^2}{Na^2}. \quad (1.30)$$

Questa formula mostra come la variazione di energia di scambio sia inversamente proporzionale allo spessore della parete; in altre parole, più è spessa la parete più l'energia di scambio si riduce.

D'altra parte un ulteriore contributo energetico è dovuto all'anisotropia uniaassiale. In accordo con la sezione 1.3, l'energia di anisotropia immagazzinata per unità di area della parete è

$$\delta\xi_u = K_u a \sum_{i=1}^N \sin^2 \left( \frac{\pi}{N} i \right) \approx \frac{K_u N a}{2}, \quad (1.31)$$

con  $K_u$  generica costante di anisotropia uniaassiale. L'approssimazione, ottenuta come nel caso della (1.30) per  $N$  grande ma finito, mostra come l'energia di anisotropia sia proporzionale allo spessore della parete: più la

parete è spessa più l'energia di anisotropia è alta.

In conclusione, i parametri che caratterizzano la parete sono determinati dal bilanciamento di queste due fonti energetiche in competizione tra loro. Minimizzando l'energia totale

$$\gamma_w = \delta\xi_{ex} + \delta\xi_u \quad (1.32)$$

rispetto al numero di piani atomici, lo spessore e l'energia per unità di area della parete possono rispettivamente scriversi

$$d_w = \pi \sqrt{\frac{A_{ex}}{K_u}} , \quad (1.33a)$$

$$\gamma_w = \pi \sqrt{A_{ex} K_u} , \quad (1.33b)$$

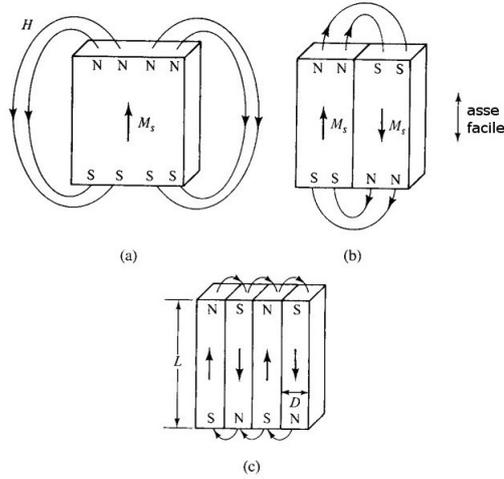
dove, con  $A_{ex} = \frac{2J_{ex}S^2}{a}$ , si è indicata la rigidità di scambio, espressione della forza dello scambio.

#### 1.4.2 Formazione di strutture a multi-dominio

La formazione dei domini all'interno di un materiale ferromagnetico nasce dall'esigenza del sistema di minimizzare l'energia dei dipoli nel campo da essi generato, ossia di rendere minima l'energia magnetostatica. L'equazione (1.21) descrive quantitativamente questa forma di energia. Si consideri, ad esempio, un singolo cristallo con anisotropia uniassiale e si supponga sia costituito da un singolo dominio spontaneamente magnetizzato parallelamente all'asse facile (fig.1.7(a)). L'energia magnetostatica può essere scritta come

$$E_{ms} = \frac{1}{8\pi} \int (\mathbf{H}')^2 d\tau , \quad (1.34)$$

ove  $\mathbf{H}'$  è il campo generato dal materiale magnetizzato e l'integrale è esteso su tutto lo spazio. Questa energia può essere ridotta di almeno un fattore due se il cristallo si divide in due domini magnetizzati in direzioni opposte (fig.1.7(b)) dal momento che i poli opposti si avvicinano l'un l'altro diminuendo così l'estensione del campo smagnetizzante. Se la struttura iniziale passa da una configurazione a singolo dominio ad una a quattro domini (fig.1.7(c)) l'energia magnetostatica decresce di circa un fattore quattro dal valore iniziale.



**Figura 1.7:** Divisione del cristallo in domini. Sono mostrate solo le linee di campo esterne [4].

Tale suddivisione porta alla formazione di pareti di dominio che, come si è visto, sono dotate di una certa quantità di energia. È necessario raggiungere una condizione di equilibrio.

L'energia magnetostatica per unità di superficie del cristallo a singolo dominio è

$$\xi_{ms} = \frac{2}{3}\pi M_s^2 L, \quad (1.35)$$

ove  $L$  indica la lunghezza che separa i poli opposti del dominio (fig.1.7(c)). L'equazione è scritta supponendo una forma cubica del cristallo in modo da poter considerare il fattore smagnetizzante, in direzione parallela ad uno spigolo, pari a  $(4/3)\pi$ . L'energia magnetostatica per unità di superficie superiore del cristallo di figura 1.7(c), calcolata nell'approssimazione in cui  $L$  sia molto maggiore rispetto allo spessore del singolo dominio  $D$ , si può scrivere invece come [5]

$$\xi_{ms} = 0.85M_s^2 D. \quad (1.36)$$

L'energia totale, somma del contributo magnetostatico e di quello di parete, è

$$\xi = 0.85M_s^2 D + \gamma_w \frac{L}{D}, \quad (1.37)$$

ove il rapporto  $L/D$  identifica l'area di parete per unità di area della superficie superiore del cristallo. Minimizzando l'equazione (1.37) rispetto a  $D$  si

ottengono rispettivamente

$$D = \sqrt{\frac{\gamma_w L}{0.85 M_s^2}}, \quad (1.38a)$$

$$\xi = 2M_s \sqrt{0.85 \gamma_w L}. \quad (1.38b)$$

È possibile quindi stimare la diminuzione di energia prima e dopo la suddivisione in domini tramite il rapporto tra la (1.35) e la (1.38b), in particolare

$$\frac{\xi(\text{singolo dominio})}{\xi(\text{multi - dominio})} \approx M_s \sqrt{\frac{L}{\gamma_w}}. \quad (1.39)$$

Per il ferro, ad esempio, per il quale  $M_s = 1714 \text{ emu/cm}^3$  e  $\gamma_w = 2.5 \text{ erg/cm}^2$ , la (1.39) restituisce circa 1000 (supponendo  $L = 1 \text{ cm}$ ), ciò significa che la suddivisione in domini ha abbassato notevolmente l'energia totale del sistema.

### 1.4.3 Il modello di Stoner-Wohlfarth: particelle a singolo dominio

Ci sono buone ragioni per credere che una particella sufficientemente piccola possa essere formata da un singolo dominio. A supporto di questa ipotesi, si può pensare ad una particella con dimensioni minori rispetto allo spessore di una parete di dominio; ci sarà quindi una dimensione critica per cui è energeticamente favorevole la configurazione a singolo dominio.

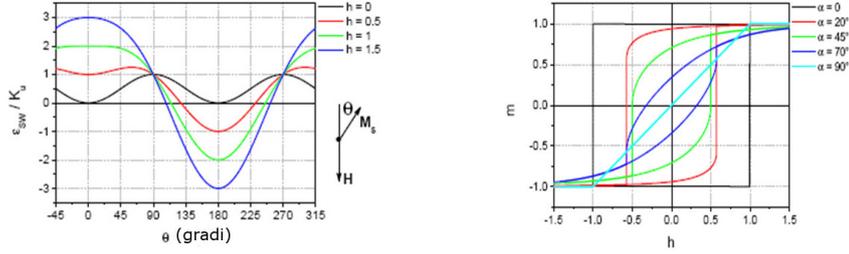
Si consideri, ad esempio, una particella sferica di raggio  $r$ . Il raggio critico è qualitativamente determinato eguagliando le energie magnetostatica e di parete

$$\frac{1}{2} \left( \frac{4}{3} \pi \right) \left( \frac{4}{3} \pi r_{sd}^3 \right) M_s^2 = \gamma_w (\pi r_{sd}^2), \quad (1.40)$$

da cui

$$r_{sd} = \frac{9}{8\pi} \left( \frac{\gamma_w}{M_s^2} \right). \quad (1.41)$$

Il processo di magnetizzazione in tale struttura è idealmente dovuto ad una rotazione coerente del vettore di magnetizzazione descritta quantitativamente dal modello di Stoner-Wohlfarth [7].



(a) Densità di energia.

(b) Cicli di isteresi.

**Figura 1.8:** (a) Densità di energia normalizzata al valore  $K_u$  in funzione dell'angolo  $\theta$  che il vettore di magnetizzazione forma con l'asse facile per diversi valori di campo ridotto nella condizione  $\alpha = 180^\circ$ . (b) Cicli di isteresi per particelle a singolo dominio con anisotropia uniassiale;  $\alpha$  è l'angolo che il campo magnetico forma con l'asse facile. Si veda il testo per maggiori dettagli.

La densità di energia totale di una particella a singolo dominio dotata di anisotropia uniassiale e sottoposta ad un generico campo magnetico si può scrivere come [4]

$$\varepsilon_{SW} = K_u \sin^2 \theta - HM_s \cos(\alpha - \theta) , \quad (1.42)$$

ove  $\theta$  e  $\alpha$  indicano rispettivamente gli angoli che  $\mathbf{M}_s$  e  $\mathbf{H}$  formano con l'asse facile per  $K_u > 0$ . Per una determinata direzione del campo, la posizione di equilibrio di  $\mathbf{M}_s$  è data dalla seguente

$$\frac{d\varepsilon_{SW}}{d\theta} = K_u \sin 2\theta - HM_s \sin(\alpha - \theta) = 0 \quad (1.43)$$

e la componente della magnetizzazione, detta magnetizzazione ridotta, risulta

$$m = \frac{M}{M_s} = \cos(\alpha - \theta) . \quad (1.44)$$

Si supponga inizialmente che il campo sia diretto lungo l'asse facile ( $\alpha = 0^\circ$ ) e che pure la magnetizzazione punti lungo la stessa direzione ( $\theta = 0^\circ$ ). Sia poi l'intensità di  $\mathbf{H}$  ridotta a zero e successivamente incrementata nella direzione opposta a quella iniziale ( $\alpha = 180^\circ$ ). Benché in quest'ultima configurazione  $\mathbf{H}$  e  $\mathbf{M}_s$  siano antiparalleli e che, quindi, non sia esercitato alcun momento

torcente su quest'ultima, la magnetizzazione tenderà ad invertire la sua direzione fino ad essere parallela al campo. Tale stato si raggiunge per un certo valore critico del campo ( $h_c$ ). La situazione appena descritta è riassunta nel grafico 1.8(a) che mostra l'andamento del rapporto  $\varepsilon_{SW}/K_u$  in funzione dell'angolo  $\theta$  per diversi valori del parametro  $h$ . Quest'ultimo si scrive come

$$h = \frac{H}{H_K} , \quad (1.45)$$

ove

$$H_K = \frac{2K_u}{M_s} \quad (1.46)$$

è chiamato campo di anisotropia e rappresenta il massimo valore di campo coercitivo idealmente raggiungibile in una particella a singolo dominio.

Per trovare il valore critico di campo è necessario notare come una soluzione dell'equazione (1.43) non corrisponda necessariamente ad un punto di equilibrio stabile: ciò dipende dal segno della derivata seconda. Esso è quindi determinato dalla seguente

$$\frac{d^2\varepsilon_{SW}}{d\theta^2} = 2K_u \cos 2\theta + HM_s \cos(\alpha - \theta) = 0 . \quad (1.47)$$

Le soluzioni comuni delle equazioni (1.43) e (1.47) conducono a due espressioni dalle quali si possono ricavare i valori di campo critico e di angolo critico ( $\theta_c$ ) ai quali la magnetizzazione si inverte, in particolare

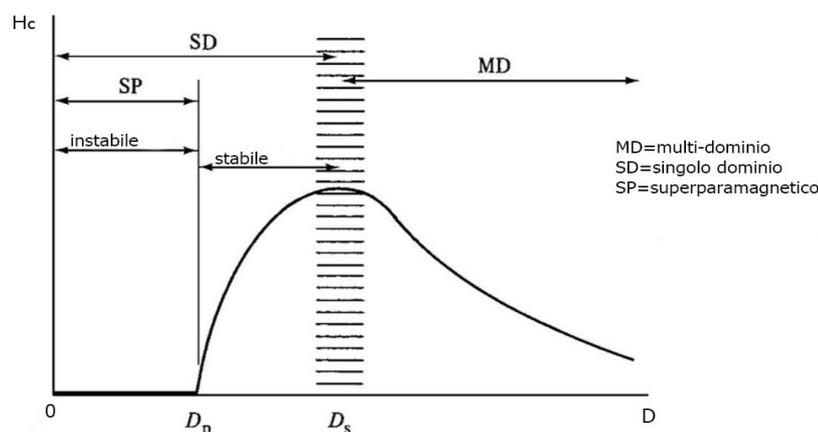
$$\tan^3 \theta_c = -\tan \alpha , \quad (1.48a)$$

$$h_c^2 = 1 - \frac{3}{4} \sin^2 2\theta_c . \quad (1.48b)$$

La figura 1.8(b) mostra i cicli di isteresi calcolati per differenti angoli  $\alpha$ . Il valore critico di campo decresce da 1 a 0.5, passando da  $\alpha = 0^\circ$  ad  $\alpha = 45^\circ$ , per poi incrementare nuovamente ad 1 per  $\alpha = 90^\circ$ . In generale, i cicli sono costituiti sia da porzioni reversibili che da porzioni irreversibili; queste ultime sono dovute a singoli grandi salti detti salti di Barkhausen. Il valore di  $m$ , a causa di questi salti irreversibili, varia da un massimo ad  $\alpha = 0^\circ$  a zero per  $\alpha = 90^\circ$ .

## 1.5 Superparamagnetismo

Nello studio delle particelle magnetiche, una proprietà di grande rilevanza teorica e sperimentale è la forte dipendenza della coercitività dalle dimensioni. La figura 1.9 mostra questa dipendenza: la riduzione della taglia di una particella comporta inizialmente un aumento di coercitività poi una repentina diminuzione fino all'annullamento.



**Figura 1.9:** Andamento della coercitività in funzione del diametro della particella [4].

Il meccanismo con il quale la magnetizzazione della singola particella muta è differente nelle diverse regioni individuate in figura; si distinguono:

- una zona a multi-dominio in cui la magnetizzazione cambia per via del moto delle pareti di dominio. Per la maggior parte dei materiali la dipendenza della coercitività dalle dimensioni segue sperimentalmente il seguente andamento

$$H_c = a + \frac{b}{D}, \quad (1.49)$$

ove  $a$  e  $b$  sono costanti;

- una zona a singolo dominio, raggiunta in corrispondenza di un diametro critico  $D_s$ , in cui la coercitività assume il valore massimo. Il

meccanismo con cui ruota il vettore di magnetizzazione può essere descritto tramite il modello di Stoner-Wohlfarth (si veda la sottosezione 1.4.3) ma, più in generale, possono essere coinvolti altri tipi di moti rotazionali. Oltre alla rotazione coerente, dipendente dalla forma e dalle dimensioni delle particelle considerate, gli spin possono anche disporsi in strutture a vortice per ridurre l'energia magnetostatica ed, in ultima analisi, raggiungere una condizione di minima energia. È da sottolineare come tale configurazione sia piuttosto dispendiosa in termini di scambio e perciò favorita, per lo più, in materiali a bassa anisotropia. Nella regione a singolo dominio la coercitività presenta caratteristiche piuttosto particolari. Quando la dimensione della particella diminuisce sotto  $D_s$  l'andamento della coercitività, a causa degli effetti termici, è descritto dalla seguente equazione

$$H_c = g - \frac{h}{D^{3/2}}, \quad (1.50)$$

dove  $g$  e  $h$  sono parametri costanti. Un'ulteriore diminuzione della dimensione sotto un certo valore critico ( $D_p$ ) porta all'annullarsi della coercitività nuovamente a causa degli effetti termici che, ora, sono abbastanza intensi da smagnetizzare spontaneamente una particella prima saturata. Quest'ultima si trova in un regime detto *superparamagnetico*.

Il superparamagnetismo si contraddistingue per due sostanziali fenomeni:

1. le curve di magnetizzazione ottenute a diverse temperature si sovrappongono quando  $M$  è *plottato* in funzione del rapporto  $H/T$ ;
2. non si ha isteresi magnetica.

In base a queste considerazioni, è chiaro che tale comportamento svanisce quando una particella di una determinata dimensione è raffreddata sotto una certa temperatura o quando, a temperatura costante, la sua dimensione aumenta oltre il valore critico  $D_p$ .

Al fine di ricavare questi parametri critici di temperatura e di taglia, è necessario individuare l'intervallo in cui è raggiunto l'equilibrio termico. Si consideri un insieme di particelle a singolo dominio con anisotropia uniassiale. Si

supponga poi che le particelle siano magnetizzate ad un certo valore  $M_i$  da un campo magnetico esterno e che, successivamente, quest'ultimo svanisca al tempo  $t = 0$ ; alcune di queste invertiranno immediatamente la loro magnetizzazione per effetto termico causando una diminuzione della magnetizzazione d'insieme. Il tasso di diminuzione ad un certo istante sarà proporzionale alla magnetizzazione a quell'istante ed al fattore di Boltzmann che definisce la probabilità che una particella, dotata di sufficiente energia termica, ha di oltrepassare il *gap* energetico  $\Delta E = K_u V$ , richiesto per l'inversione. In particolare

$$-\frac{dM}{dt} = f_0 M e^{-\frac{K_u V}{k_B T}}, \quad (1.51)$$

ove  $f_0$  è chiamato fattore di frequenza e, pur avendo una piccola dipendenza dal campo, può essere assunto in buona approssimazione costante con un valore di circa  $10^9 \text{ Hz}$ . La relazione che descrive in che modo la rimanenza decresce col tempo può essere trovata risolvendo l'equazione (1.51) ed è

$$M_r = M_i e^{-t/\tau}, \quad (1.52)$$

con  $\tau$  tempo di rilassamento definito nel seguente modo

$$\frac{1}{\tau} = f_0 e^{-\frac{K_u V}{k_B T}}. \quad (1.53)$$

Se il tempo richiesto per una misura sperimentale è dell'ordine di  $t_{exp}$  allora, attraverso la (1.53), è possibile definire un limite superiore  $V_p$ , oltre il quale il comportamento superparamagnetico non si presenta. Ponendo  $\tau = t_{exp}$  si ottiene

$$V_p = \frac{k_B T}{K_u} \ln(f_0 t_{exp}) \quad (1.54)$$

ed il corrispondente diametro  $D_p$  può essere calcolato per una qualsiasi forma della particella. Dal momento che  $\tau$  varia molto rapidamente con  $V$  è consuetudine porre  $\tau = 100 \text{ s}$ , tempo tipicamente richiesto per misurare la rimanenza di un campione [4]. Sostituendo questo valore nella (1.54) si ottiene

$$V_p = \frac{25 k_B T}{K_u}, \quad (1.55)$$

da cui il passaggio al comportamento stabile si verifica quando l'energia di barriera è uguale a  $25 k_B T$ . In maniera analoga, per una particella di dimensioni fissate, ci sarà una temperatura  $T_b$ , detta temperatura di bloccaggio,

sotto la quale la magnetizzazione sarà stabile

$$T_b = \frac{K_u V}{25k_B} . \quad (1.56)$$

Si è voluto sottolineare come il superparamagnetismo sia un fenomeno di rilassamento e non una transizione di fase; non caratterizzato quindi da una temperatura critica fissa ma piuttosto da una temperatura di bloccaggio che dipende dalla tecnica di misura adottata.

Il passo successivo è quello di considerare l'effetto di un campo magnetico esterno sul sistema all'equilibrio termico. Si consideri nuovamente l'insieme di particelle con anisotropia uniassiale il cui asse facile è diretto lungo l'asse  $z$  in un sistema di riferimento cartesiano. Applicando un campo lungo l'asse  $-z$ , in accordo con il modello di Stoner-Wohlfarth nel caso  $\alpha = 180^\circ$ , l'energia totale per particella è

$$E = V(K_u \sin^2 \theta + HM_s \cos \theta) . \quad (1.57)$$

L'altezza di barriera è la differenza tra il valore massimo ed il valore minimo di  $E$ , in particolare

$$\Delta E = K_u V \left( 1 - \frac{HM_s}{2K_u} \right)^2 . \quad (1.58)$$

La relazione mette in luce come particelle più larghe di  $D_p$  possano essere instabili per  $\tau = 100$  s con l'applicazione di un opportuno campo: l'altezza di barriera si è ridotta rispetto al caso precedente. Questo valore di campo, che identifica la coercitività si può scrivere come

$$H_c = H_K \left[ 1 - \left( \frac{25k_B T}{K_u V} \right)^{1/2} \right] , \quad (1.59)$$

con  $H_K$  dato dall'equazione (1.46). Quando il volume aumenta o la temperatura si avvicina a zero,  $H_c$  è circa uguale a  $H_K$ , valore di coercitività in assenza di energia termica. Sfruttando quest'ultima definizione ed inserendo l'equazione (1.55) nella (1.59) si ottiene il parametro che definisce la coercitività ridotta in funzione del diametro della particella

$$h_c = \frac{H_c}{H_K} = 1 - \left( \frac{V_p}{V} \right)^{1/2} = 1 - \left( \frac{D_p}{D} \right)^{3/2} . \quad (1.60)$$

L'equazione (1.60) ha la stessa forma della (1.50) ed il suo andamento è mostrato in figura 1.9: la coercitività cresce quando  $D$  oltrepassa il valore

corrispondente a  $D_p$ . Nel caso in cui la particella abbia dimensione costante, sostituendo la (1.56) nella (1.59), si ottiene

$$h_c = \frac{H_c}{H_K} = 1 - \left( \frac{T}{T_b} \right)^{1/2}. \quad (1.61)$$

L'andamento della coercitività in funzione della temperatura di bloccaggio rappresenta però un risultato di valenza puramente teorica. Tra i materiali reali, costituiti da particelle con differenti caratteristiche, si ha una distribuzione delle temperature di bloccaggio così ampia che qualunque variazione di coercitività è dovuta non solo agli effetti termici appena descritti ma, in larga parte, a variazioni dell'anisotropia o della magnetizzazione di saturazione con la temperatura.

## 1.6 Effetto di *exchange bias*

L'*exchange bias* (EB) è uno dei fenomeni associati all'anisotropia di scambio. Quando materiali con interfacce ferromagnetiche (FM)-antiferromagnetiche (AFM) sono raffreddati al di sotto della temperatura di Néel dell'AFM, inferiore in questo contesto alla temperatura di Curie del FM, è indotta una forma di anisotropia nel FM, detta anisotropia di scambio. In questi sistemi, durante il ciclo di isteresi, gli spin AFM esercitano un momento torcente addizionale sugli spin FM cosicché il campo magnetico richiesto per completare l'inversione della magnetizzazione nel FM è più alto rispetto a quello che ci si sarebbe aspettati se il FM non fosse accoppiato all'AFM. In altre parole, il vettore di magnetizzazione invece di avere due configurazioni di facile magnetizzazione in direzioni opposte, come nel caso di anisotropia uniassiale, ha solo una direzione di facile magnetizzazione; a tale proposito si parla di anisotropia unidirezionale. Quest'ultima si manifesta solitamente sia in uno spostamento del ciclo lungo l'asse dei campi, il cui valore è chiamato campo di scambio ed indicato con  $H_{EX}$ , sia in un aumento di coercitività. Più nel dettaglio, si possono distinguere due casi limite a seconda dell'anisotropia AFM. Se questa è piuttosto elevata si dovrebbe osservare soltanto uno spostamento del ciclo mentre, per piccoli valori di anisotropia, l'unico effetto osservato dovrebbe essere un aumento di coercitività. Tuttavia, tali fenomeni sono spesso osservati simultaneamente a causa dei difetti strutturali o

della distribuzione di taglia dei grani AFM che portano a variazioni locali dell'anisotropia.

Dal punto di vista applicativo il sistema FM-AFM è di grande importanza tecnologica: su di esso si basano le valvole di spin. Una valvola di spin, la cui struttura è schematizzata in figura 1.10(a), combina due fenomeni: l'effetto di EB e l'effetto di magnetoresistenza gigante (GMR, *Giant MagnetoResistance*). Sfruttando l'EB, uno degli strati FM può essere *pinnato*, ossia orientato in una specifica direzione, rendendolo insensibile all'applicazione di campi magnetici anche relativamente intensi; al contrario, per l'altro strato FM si utilizza un magnete dolce così da poter invertire la sua magnetizzazione con l'applicazione di campi piuttosto deboli. La GMR ha luogo quando vi è un'orientazione relativa tra i due strati ferromagnetici. Il dispositivo è, in ultima analisi, caratterizzato da due stati, a bassa ed alta resistenza elettrica, che cambiano a seconda di questa orientazione: ciò è dovuto principalmente alla dipendenza della conducibilità dallo spin.



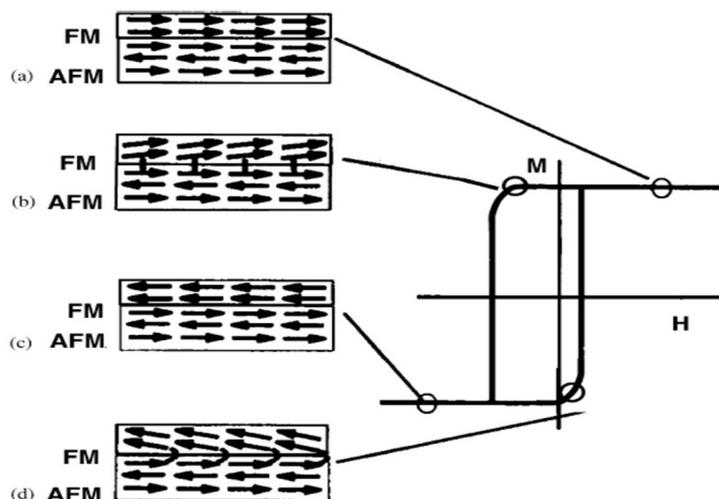
(a) Valvola di spin.

(b) Curva di magnetoresistenza.

**Figura 1.10:** (a) Rappresentazione schematica di una tipica valvola di spin. (b) Tipica curva di magnetoresistenza per questo tipo di sistema; le frecce indicano la direzione del vettore di magnetizzazione nei due strati FM [8].

### 1.6.1 Fenomenologia

Al fine di comprendere in maniera intuitiva il fenomeno di EB si è soliti ricorrere al modello schematizzato in figura 1.11.



**Figura 1.11:** Diagramma schematico delle configurazioni degli spin assunte dal sistema FM-AFM in punti differenti del ciclo di isteresi per intense anisotropie AFM [8].

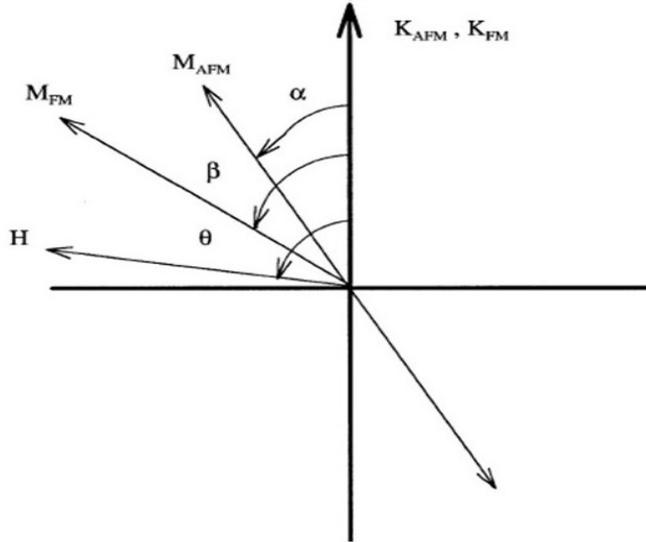
Ci si ponga in condizioni di temperatura tali che  $T_N < T < T_C$  e si applichi un campo magnetico abbastanza intenso. L'effetto è duplice: gli spin FM si orientano parallelamente al campo mentre gli spin AFM rimangono in una configurazione disordinata. Quando la coppia FM-AFM viene successivamente raffreddata sotto  $T_N$ , gli spin AFM cominciano a disporsi secondo un preciso ordine ferromagnetico. Durante il raffreddamento, infatti, gli spin di entrambe le componenti iniziano ad interagire reciprocamente all'interfaccia: se si assume interazione FM, gli spin AFM tendono a disporsi parallelamente agli spin FM. Gli spin AFM appartenenti agli strati più interni si orientano, invece, antiparallelamente tra loro così da rendere la magnetizzazione netta nulla (fig.1.11(a)). Quando si inverte il campo magnetico, gli spin FM iniziano a ruotare: come spesso accade se l'anisotropia AFM è abbastanza intensa, gli spin AFM rimangono fissi e, di conseguenza, esercitano un momento torcente microscopico tentando di trattenerli nelle loro posizioni originali (fig.1.11(b)). Come risultato il campo coercitivo lungo il

semiasse negativo dei campi incrementa rispetto a quello che si otterrebbe in condizioni che non prevedono accoppiamento FM-AFM. Una volta raggiunta la configurazione di saturazione (fig.1.11(c)) il campo magnetico inizia a decrescere e contemporaneamente gli spin FM cominciano ad invertire la propria magnetizzazione. Questo processo è ora favorito dal momento che gli spin AFM esercitano un momento torcente nella stessa direzione del campo (fig.1.11(d)). È facile prevedere come il campo richiesto per l'inversione sia minore rispetto a quello richiesto nelle condizioni iniziali o nel caso del solo strato FM. I sistemi FM-AFM si comportano come se ci fosse un campo interno polarizzante che causa lo spostamento del ciclo di isteresi lungo l'asse del campo e che si manifesta attraverso l'anisotropia unidirezionale. È necessario notare come, mentre gli effetti di EB non siano presenti (o comunque siano minimali) se la coppia FM-AFM è raffreddata a campo nullo a partire da uno stato smagnetizzato, siano ben visibili nel caso in cui il sistema FM-AFM sia raffreddato in assenza di campo a partire da uno stato di rimanenza [9].

Il processo intuitivo appena illustrato può essere descritto teoricamente tramite un approccio macroscopico che non prende in considerazione le dimensioni laterali degli strati. L'energia per unità di area,  $\xi_{EB}$ , assumendo rotazione coerente e collinearità fra gli assi di anisotropia FM ed AFM, si può scrivere come

$$\begin{aligned} \xi_{EB} = & K_{FM}t_{FM} \sin^2 \beta + K_{AFM}t_{AFM} \sin^2 \alpha \\ & - HM_{FM}t_{FM} \cos(\theta - \beta) - J_{INT} \cos(\beta - \alpha) , \end{aligned} \quad (1.62)$$

ove  $H$  e  $M_{FM}$  indicano l'intensità del campo applicato e della magnetizzazione di saturazione del FM,  $J_{INT}$  è la costante di accoppiamento all'interfaccia e  $t_{FM}$ ,  $t_{AFM}$ ,  $K_{FM}$ ,  $K_{AFM}$  sono rispettivamente gli spessori e le costanti di anisotropia degli strati FM ed AFM.  $\beta$ ,  $\alpha$  e  $\theta$  sono, in sequenza, gli angoli che l'asse delle anisotropie forma con  $\mathbf{M}_{FM}$ , con la magnetizzazione dell'AFM in prossimità dell'interfaccia ( $\mathbf{M}_{AFM}$ ) e con il campo magnetico, come mostrato in figura 1.12.



*Figura 1.12:* Schema degli angoli coinvolti in un sistema EB. Si noti come gli assi di anisotropia, FM ed AFM, siano assunti collineari e come la magnetizzazione AFM all'interfaccia,  $M_{AFM}$ , abbia due diverse orientazioni [9].

I termini dell'equazione (1.62) sono legati rispettivamente all'effetto del campo magnetico sullo strato ferromagnetico, alla presenza di anisotropia FM ed AFM e all'interazione di scambio all'interfaccia. Benché questa funzione energetica tenga conto dei principali parametri coinvolti nel fenomeno di EB, è frutto, come già in parte notato, di alcune approssimazioni: spin AFM all'interfaccia disposti in una configurazione non compensata ( $M_{AFM} \neq 0$ ), assenza di domini FM ed AFM, assi di anisotropia collineari, accoppiamento di scambio ferromagnetico. Nei casi più comuni l'anisotropia FM è trascurabile e la condizione per cui  $K_{FM}t_{FM} \ll K_{AFM}t_{AFM}$  è spesso verificata sperimentalmente cosicché l'equazione (1.62) si può riscrivere come

$$\begin{aligned} \xi_{EB} = & K_{AFM}t_{AFM} \sin^2 \alpha - HM_{FM}t_{FM} \cos(\theta - \beta) \\ & - J_{INT} \cos(\beta - \alpha) . \end{aligned} \quad (1.63)$$

Minimizzando l'energia rispetto ad  $\alpha$  e  $\beta$ , lo spostamento del ciclo risulta

essere

$$H_{EX} = \frac{J_{INT}}{M_{FM}t_{FM}} \quad (1.64)$$

e la condizione necessaria affinché sia osservata anisotropia di scambio è la seguente

$$K_{AFM}t_{AFM} \geq J_{INT} . \quad (1.65)$$

Se infatti risultasse  $J_{INT} > K_{AFM}t_{AFM}$  sarebbe energeticamente favorito lo stato con la quantità  $(\beta - \alpha)$  piccola, ossia il sistema nel quale spin FM ed AFM ruotano coerentemente insieme. In altre parole, se la disuguaglianza (1.65) non è soddisfatta gli spin AFM seguono il moto degli spin FM e non si osserva alcuno spostamento del ciclo ma solo un incremento di coercitività. In generale, l'equazione (1.64) indica un andamento di  $H_{EX}$  inversamente proporzionale a  $t_{FM}$ , evidenziando come l'EB sia sostanzialmente un effetto di interfaccia. La dipendenza di  $H_{EX}$  da  $t_{AFM}$  è più complicata: per strati AFM spessi  $H_{EX}$  è indipendente da  $t_{AFM}$  mentre, quando  $t_{AFM}$  si riduce,  $H_{EX}$  decresce, fino ad annullarsi per strati abbastanza sottili, probabilmente perché la disuguaglianza (1.65) non è più soddisfatta. Più nel dettaglio, gli esatti spessori  $t_{AFM}$  ai quali gli effetti di questo processo sono maggiormente visibili dipendono dal materiale AFM utilizzato, in particolare dalla sua microstruttura e da  $K_{AFM}$  [10]. L'intensità di campo predetta da questi calcoli dipende, inoltre, dal valore assunto da  $J_{INT}$ . Se si considera un valore simile a quello calcolato attraverso l'integrale di scambio ferromagnetico,  $H_{EX}$  è di parecchi ordini di grandezza più grande rispetto a quello ottenuto sperimentalmente. In quest'ottica, sono stati condotti diversi studi teorici ed indagini sperimentali per descrivere la giusta dipendenza dell'EB dagli spessori, dalle anisotropie FM ed AFM e dalla presenza di strutture a domini [9, 11].

La prima importante modifica a questo modello fu proposta da Néel [1, 12]. Durante il ciclo di isteresi, quando si inverte il campo, invece di una separazione magnetica netta tra FM ed AFM, si suppone la formazione di pareti di dominio in corrispondenza dell'interfaccia. All'interno dell'equazione (1.63) bisogna, quindi, includere un termine collegato alla nascita dei domini magnetici: il formarsi di pareti di dominio nel FM, nell'AFM od in entrambi dipenderà da quale dei processi coinvolti è energeticamente favorito. Le pareti di dominio all'interfaccia potrebbero far decrescere in maniera significa-

tiva l'energia della configurazione magnetica all'equilibrio e, di conseguenza, i valori dell'accoppiamento effettivo. Basandosi su questo approccio, lo spostamento del ciclo, nel limite di forte accoppiamento all'interfaccia, segue i seguenti andamenti

$$H_{EX} \propto \frac{\sqrt{K_{AFM}A_{AFM}}}{M_{FM}t_{FM}}, \quad (1.66a)$$

$$H_{EX} \propto \frac{\sqrt{K_{FM}A_{FM}}}{M_{FM}t_{FM}}, \quad (1.66b)$$

a seconda che la parete di dominio si sia formata rispettivamente nell'interfaccia AFM od in quella FM. Questa ipotesi fa sì che i valori di  $H_{EX}$  siano più vicini a quelli osservati sperimentalmente rispetto a quelli ottenuti considerando l'equazione (1.63). Entrambi i modelli sono però influenzati dalla dipendenza termica dell'effetto di EB: lo spostamento del ciclo non è rilevato sopra  $T_N$  dal momento che  $K_{AFM}$  si annulla a questa temperatura critica. In realtà, sia nei sistemi multi-strato che in quelli nanogranulari, l'EB svanisce ad una temperatura, detta di bloccaggio, molto inferiore rispetto a  $T_N$  del materiale *bulk*. L'origine di questo effetto sembra essere collegato allo spessore dello strato AFM ed alla dimensione dei grani attraverso effetti di taglia finita [13]. In alternativa si ritiene che la temperatura alla quale l'anisotropia AFM diventa troppa piccola per sostenere il meccanismo di EB sia inferiore a  $T_N$  proprio a seconda del valore di  $K_{AFM}$  e della sua evoluzione con la temperatura. Recenti studi, effettuati su film sottili, ipotizzano una struttura a nanograni non interagenti dal momento che si osserva una distribuzione delle barriere energetiche di anisotropia. L'effetto di EB è osservato fino a quando i nanograni sono termicamente stabili per poi svanire quando questi ultimi entrano nel regime superparamagnetico. In quest'ottica, nascono importanti questioni riguardanti la stabilità termica della fase AFM, come la presenza di spin AFM cosiddetti frustrati all'interfaccia, l'eventualità che subiscano un congelamento collettivo al di sotto di una certa temperatura ed il modo in cui interagiscono con gli strati AFM più interni [14].

In ultima analisi va sottolineato come il campo di scambio dipenda dal numero di misure effettuate, una proprietà spesso indicata con il nome di effetto di *training*. Solitamente, dopo diversi cicli di isteresi il valore di  $H_{EX}$  decresce.

Sperimentalmente vale la seguente proporzionalità

$$H_{EX} - H_{EX}^{\infty} \propto \frac{1}{\sqrt{n}}, \quad (1.67)$$

ove  $n$  indica il numero di cicli effettuati. Questo effetto sembra essere collegato al riordinamento parziale dei domini dell'AFM all'interfaccia per ogni inversione della magnetizzazione del FM. In sostanza, a causa anche delle fluttuazioni termiche nel caso  $K_{AFM}t_{AFM} < k_B T$  [15, 16], gli spin AFM tentano di disporsi in configurazioni energeticamente favorevoli dopo ogni ciclo.



## Capitolo 2

# Modalità di realizzazione dei *nanodots*

I campioni di cui si sono studiate le proprietà magnetiche sono stati realizzati grazie alla collaborazione tra il Dipartimento di Fisica ed Astronomia dell'Università di Bologna, il Dipartimento di Fisica e Scienze della Terra dell'Università di Ferrara e l'Istituto di Fotonica e Nanotecnologie (CNR-IFN) di Roma.

Il processo di produzione è costituito da diverse fasi. Il primo *step* consiste nel disegnare, mediante un processo di litografia elettronica, la forma dei *dots* su di un sottile strato di materiale polimerico (*resist*) depositato su di un substrato di ossido di silicio. La tecnica utilizzata (EBM, *Electron Beam Litography*) è un tipo di processo litografico nel quale le informazioni vengono incise mediante un fascio di elettroni emesso da un *electron beam gun*: lo scopo, come nella fotolitografia, è quello di creare strutture molto piccole all'interno del *resist*. I limiti dimensionali con cui si possono trasferire disegni sul *resist* dipendono sia dalle caratteristiche dell'EBL che dalle proprietà del materiale polimerico che si utilizza; infatti, un fascio elettronico, incidente alle giuste energie, induce delle reazioni chimiche che lo rendono più o meno solubile all'azione di determinati solventi. Il vantaggio principale della litografia elettronica risiede nella possibilità di superare il limite della diffrazione della luce, che occorre invece in quella ottica, e fabbricare strutture nanometriche. Di contro, lo svantaggio è il cosiddetto *throughput*, cioè

il lungo tempo necessario per esporre una grande area, come, ad esempio, un wafer di silicio: ciò rende il processo vulnerabile a derive del fascio elettronico ed instabilità che possono verificarsi durante l'esposizione. In ogni caso, nonostante il processo sia relativamente lento, si tratta ugualmente di una tecnica molto pratica e conveniente per la fabbricazione di matrici di elementi, le cui dimensioni e distanze reciproche possono essere scelte, entro alcuni limiti, con facilità. In questo modo è possibile disegnare aree *patternate* di medie dimensioni (al massimo  $1\text{ cm}^2$ ) nelle quali le proprietà geometriche e strutturali sono costanti.

Successivamente si è proceduto al processo di deposizione: sono stati cresciuti un film nanogranulare di riferimento e *nanodots patternati* con la tecnica *dc-magnetron sputtering*. Il fenomeno dello *sputtering* fisico è alla base di questo metodo e permette di ottenere composti eterogenei metastabili; bi-strati FM-AFM sono stati depositati a temperatura ambiente in condizioni di ultra alto vuoto in atmosfera di *Ar* ed in presenza di un campo magnetico statico  $H_{dep} = 400\text{ Oe}$ <sup>1</sup>[14]. Le fasi FM ed AFM sono rispettivamente  $Ni_{80}Fe_{20}$ (*NiFe*), lega chiamata *permalloy*, ed  $Ir_{25}Mn_{75}$ (*IrMn*). L'*IrMn* è stato cresciuto su un *layer* di *Cu* e la struttura trasversale del campione risulta *Si/Cu*[5 nm]/*IrMn*[10 nm]/*NiFe*[5 nm] (le parentesi quadre riportano gli spessori nominali di ogni strato).

Per ultimo, attraverso una tecnica detta di *lift-off*, viene rimosso il *resist* rimasto (compreso il materiale che vi è depositato sopra) per cui sul substrato rimangono soltanto i campioni della forma desiderata.

Il capitolo è interamente dedicato al processo di *sputtering* ed alla descrizione dell'apparato di deposizione *dc-magnetron sputtering* che si trova presso il Dipartimento di Fisica e Scienze della Terra dell'Università di Ferrara.

## 2.1 Deposizione per *sputtering*

Lo *sputtering* è una tecnica usata per depositare film sottili di natura isolante, semiconduttiva, metallica o di lega su di un substrato, attraverso la rimozione fisica di atomi da una superficie. Inizialmente si ha la creazione

---

<sup>1</sup>Il campo applicato durante la crescita permette di stabilire una direzione privilegiata della magnetizzazione e, di conseguenza, un asse di anisotropia di scambio.

di un plasma in seguito alla scarica tra due elettrodi, la quale provoca la ionizzazione di un gas ad elevata purezza e bassa pressione; successivamente tali ioni sono accelerati verso il materiale sorgente da depositare (*target*), da cui, per trasferimento di energia, si liberano delle particelle (adatom) erose dalla sua superficie. Gli adatom sono atomi neutri che non risentono del campo elettrico generato dalla scarica e vanno perciò a depositarsi sul substrato. Gli ioni devono possedere sufficiente energia cinetica, tale da riuscire a scalzare gli atomi del *target*: questo è il caso del cosiddetto *sputtering* fisico, in cui il percorso dello ione all'interno del reticolo che caratterizza il bersaglio può essere assimilato ad una serie di collisioni a due corpi. Si consideri per semplicità il caso di una collisione elastica di un proiettile di massa  $m_1$  e velocità  $\mathbf{v}_1$  con un *target* fisso di massa  $m_2$ . Combinando le leggi di conservazione dell'energia e della quantità di moto, la frazione di energia persa dal proiettile nel sistema di riferimento del Centro di Massa (CM) è

$$\zeta_E = \frac{2m_1m_2}{(m_1 + m_2)^2}(1 - \cos \Theta) , \quad (2.1)$$

ove  $\Theta$  è l'angolo di *scattering* nel sistema CM. Ciò dimostra qualitativamente come uno ione trasferisca parte della sua energia e del suo momento ad un atomo che, a sua volta, sarà in grado di collidere con altri atomi reticolari, originando una cascata collisionale. Al termine di questo processo uno o più atomi reticolari saranno in grado di migrare fino alla superficie e lasciare il materiale: la geometria del sistema è tale che gli adatom siano convogliati sul substrato.

Ad energie superiori a  $20 - 30 \text{ eV}$  particelle pesanti possono *sputterare* atomi dalla superficie. La resa di *sputtering*, ossia il numero di atomi emessi dal bersaglio per ione incidente, aumenta rapidamente con l'aumentare dell'energia fino ad alcune centinaia di  $\text{eV}$ , intervallo nel quale la resa diventa sufficiente per essere applicata in campo tecnologico [25]. Generalmente vengono usati ioni di *Ar* con energia dell'ordine di  $0.5 - 1 \text{ keV}$  per ottenere *sputtering* fisico: a questa energia gli ioni sono in grado di innescare il processo a cascata descritto poc'anzi. È stato dimostrato come, in un ampio range energetico, la resa sia indipendente e dall'energia del proiettile e dalla

densità atomica del bersaglio, in particolare [26]

$$\gamma_{sput} \propto \frac{1}{\xi_t} \frac{m_i}{m_i + m_t}, \quad (2.2)$$

ove  $\xi_t$  è l'energia di legame superficiale (più precisamente l'entalpia di vaporizzazione) del materiale che costituisce il *target*,  $m_i$  e  $m_t$  sono rispettivamente le masse dello ione incidente e dell'atomo bersaglio. Nell'ipotesi che tutto il materiale rimosso dal *target* sia depositato, il *deposition rate*, ovvero lo spessore depositato nell'unità di tempo, si può scrivere come

$$D_{sput} = \frac{\gamma_{sput} \Gamma_i A_t}{n_f A_s}, \quad (2.3)$$

ove  $\Gamma_i$  è il flusso ionico incidente,  $n_f$  è la densità di film depositato,  $A_t$  ed  $A_s$  sono rispettivamente l'area del *target sputterata* e l'area del substrato sul quale il film è depositato. Gli atomi *sputterati* sono emessi con una distribuzione energetica del tipo [27]

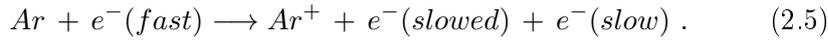
$$f(\xi) \propto \frac{\xi_t \xi}{(\xi_t + \xi)^3}. \quad (2.4)$$

Il picco di questa distribuzione si ha per  $\xi = \xi_t/2$ . Siccome  $\xi_t \sim 1 - 4 eV$ , le energie caratteristiche degli atomi emessi tramite *sputtering* fisico sono  $0.5 - 2 eV$ ; questi ultimi possono dare origine a processi di *mixing* e di diffusione, portando ad un rafforzamento dei legami e dell'adesione con il materiale del substrato.

### 2.1.1 *Planar magnetron discharge*

Un sistema che permette di ottenere una resa di *sputtering* fisico sufficientemente elevata in un ambiente caratterizzato da alta densità di corrente, bassi voltaggi e basse pressioni è la *planar magnetron discharge*. Si tratta di una scarica tra catodo (*target*) ed anodo (substrato) che avviene all'interno di un sistema per *sputtering* in presenza di un campo magnetico, grazie al quale gli elettroni risentono della cosiddetta trappola magnetica; tale campo viene tipicamente generato attraverso dei magneti permanenti posti in prossimità del catodo. La scarica si manifesta con un anello di plasma di alta densità, di larghezza  $w$  e raggio medio  $R$ , che si stanziava sotto al catodo, contenuto a sua volta in un *bulk* di plasma con minor densità. Lo *sputtering*

avviene su tracce precise, situate sul substrato, che dipendono dalla forma delle linee di campo. Gli ioni di *Ar* che formano il plasma, non confinati dal campo magnetico, sono accelerati verso il catodo e lo colpiscono. L'impatto ione-bersaglio, oltre a produrre atomi tramite *sputtering*, induce l'emissione di elettroni secondari. La presenza del campo elettrico, dovuta alla differenza di potenziale applicata, fa sì che gli elettroni acquistino una velocità di deriva, la cui direzione è normale al piano in cui giacciono campo elettrico e campo magnetico, che si aggiunge ad un moto di tipo elicoidale; questi ultimi sono accelerati all'indietro verso il *bulk* di plasma e contemporaneamente sono confinati nei pressi del catodo dal campo magnetico. La natura della scarica è autoconsistente ed in particolare il processo di ionizzazione di un atomo neutro di *Ar* è descritto dalla seguente reazione, secondo il modello di Townsed



L'energia di soglia necessaria, pari all'energia di prima ionizzazione dell'*Ar*, deve essere apportata dall'elettrone veloce che, dopo l'impatto, è conseguentemente rallentato; la generazione di un secondo elettrone lento consente la produzione di altre collisioni.

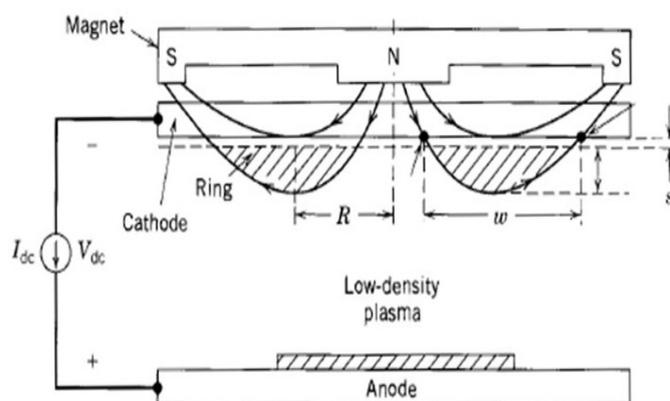
Le caratteristiche principali di un tipico sistema *magnetron* planare sono

- $B_0 \sim 200 G$  ,
- $p \sim 2 - 5 mTorr$  ,
- $V_{dc} \sim 200 - 600 V$  ,
- $\bar{J}_i \sim 20 - 100 mA/cm^2$  ,
- $D_{sput} \sim 0.02 - 0.2 nm/s$  .

$B_0$  è l'intensità del campo di induzione magnetica in corrispondenza dell'anello di plasma, dove le linee di campo sono tangenziali alla superficie del catodo, e  $\bar{J}_i$  è la densità media di corrente ionica che scorre in prossimità dell'area dell'anello. La potenza della scarica è

$$P_{abs} = V_{dc} I_{dc} \quad (2.6)$$

e dal momento che quasi tutta questa potenza è assorbita dal catodo, il suo funzionamento, insieme a quello del magnete, comporta un inevitabile riscaldamento: questi ultimi devono quindi essere raffreddati onde evitare il degrado delle prestazioni.



**Figura 2.1:** Planar magnetron discharge. Come si può notare, il plasma a più alta densità scherma il campo elettrico lungo la maggior parte della camera; si sviluppa, infatti, un sottile “cuscinetto” in corrispondenza del catodo dell’ordine di  $s = 1\text{ mm}$  che mantiene esternamente la quasi totalità della tensione applicata [25].

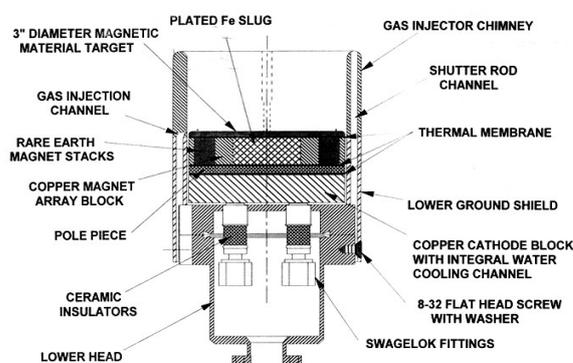
## 2.2 Sistema di deposizione *dc-magnetron sputtering*

Per rendere possibile la crescita dei campioni utilizzati in questo lavoro di tesi è stata adottata la tecnica di deposizione tramite *dc-magnetron sputtering*. Il sistema può essere suddiviso in tre blocchi

- **precamera** che consente l’introduzione del substrato mantenendo in vuoto la camera principale;

- **camera principale** dove sono contenuti il substrato ed i bersagli ed in cui avviene la deposizione;
- **controller esterni** che permettono di fissare e controllare i vari parametri di deposizione come pressione del gas, corrente di plasma, tempo di deposizione e posizione del substrato.

Il substrato viene inizialmente avvitato su di un trasferitore all'interno della precamera, operazione che richiede l'isolamento della camera di deposizione<sup>2</sup> al fine di evitare l'ossidazione dei campioni. Successivamente, una volta chiusa la precamera, si può procedere allo spostamento del portacampioni che viene agganciato su di un secondo trasferitore collegato ad un dispositivo di tipo ruota dentata, denominato ralla, controllato da un computer, che permette di impostare il numero di passi corrispondenti alla rotazione del substrato. All'interno della camera principale si trovano le cosiddette teste di *sputtering*.

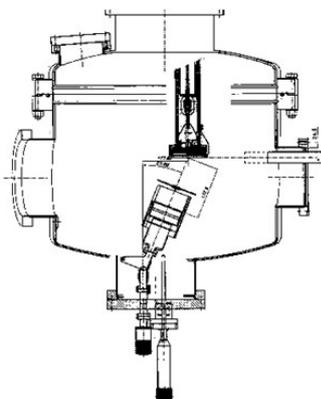


*Figura 2.2: Schema di una testa di sputtering.*

La struttura di ogni singola testa è piuttosto complessa; deve ospitare, oltre al *target*, un sistema di alimentazione, uno di raffreddamento ed uno per isolarla sia elettricamente che termicamente dal resto della camera.

<sup>2</sup>La camera e la precamera sono dotate di sistemi da vuoto indipendenti: la prima è collegata ad una crio-pompa, la seconda ad una turbo-pompa.

Per quanto riguarda la posizione di deposizione, al fine di ottenere un film uniforme sia dal punto di vista stechiometrico che dello spessore, le teste di *sputtering* sono inclinate dello stesso angolo ed il substrato è posto sul loro fuoco. Dal momento che il sistema è di tipo *magnetron*, sono opportunamente montati dei magneti permanenti sotto il bersaglio che generano un campo magnetico la cui azione è descritta nella sottosezione precedente<sup>3</sup>. Il bersaglio ha dei limiti di spessore da rispettare: se è troppo spesso c'è il rischio che il campo generato dai magneti sia talmente debole da non riuscire ad intrappolare efficacemente gli elettroni secondari, con una conseguente diminuzione delle collisioni ionizzanti e, quindi, dell'efficienza del sistema. A questo proposito, si è verificato come, ad esempio, un *target* di *Fe* dello spessore di  $1\text{ mm}$  sia sufficiente per dare origine ad una scarica in un ambiente caratterizzato da una pressione di  $1 - 10\text{ mTorr}$ .

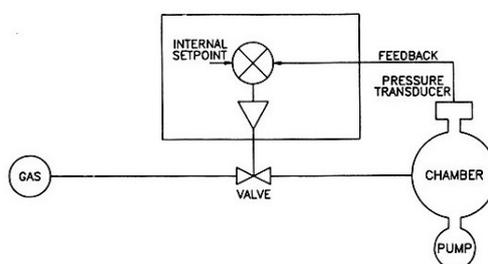


*Figura 2.3: Sezione della camera di sputtering.*

I sistemi di controllo consentono di operare sui parametri di deposizione. Vi sono due alimentatori che permettono di impostare la potenza della scarica monitorando corrente e voltaggio; ai bersagli sono collegati infatti due *timer*

<sup>3</sup>Il sistema di raffreddamento dei magneti e del catodo è ottenuto tramite un flusso di acqua fredda.

che interrompono la scarica una volta raggiunto il tempo di deposizione prestabilito. È presente, inoltre, un sistema di controllo per il flusso dell'Ar durante la deposizione che si basa su di un funzionamento di tipo *feed-back*, come mostrato schematicamente in figura 2.4.



**Figura 2.4:** Schema di funzionamento del sistema di controllo della pressione del gas all'interno della camera di sputtering.

### 2.2.1 Oscillatore al quarzo

Per la misura del *deposition rate* viene utilizzata una microbilancia che è in grado di fornire misure precise sulla quantità di massa depositata sopra la superficie di un cristallo di quarzo oscillante. Nota la densità del materiale depositato, si è in grado di convertire le informazioni relative alla quantità di massa in quelle riguardanti la misura dello spessore.

Lo strumento utilizzato è il *Quartz Crystal Deposition Monitor* (QCM). Quando si applica una differenza di potenziale tra le facce di un cristallo che ha proprietà piezoelettriche, quest'ultimo viene distorto e cambia forma proporzionalmente al valore di voltaggio applicato. In corrispondenza di particolari differenze di potenziale, si ottiene un fenomeno di risonanza elet-

tromeccanica molto netto. Nel momento in cui viene depositata una certa quantità di materiale, la frequenza di risonanza viene ridotta e la sua variazione rispetto alle condizioni iniziali è riproducibile con elevata precisione. Denotata quest'ultima con  $\Delta\nu$ , si può facilmente vedere come sia correlata ad una variazione di massa, apportata con l'aggiunta di materiale, tramite la seguente relazione

$$\frac{m_f}{m_q} = \frac{\Delta\nu}{\nu_q} , \quad (2.7)$$

con  $m_q$  e  $m_f$  rispettivamente la massa depositata prima ed a seguito dello *sputtering* e  $\nu_q$  la frequenza del cristallo nelle condizioni iniziali. Semplici considerazioni portano a ricavare il valore dello spessore del materiale depositato

$$\varrho_f = \frac{K\Delta\nu}{\rho_f} , \quad (2.8)$$

ove  $\rho_f$  è la densità del materiale e  $K = (\nu_{AT}\rho_q)/\nu_q$ , con  $\nu_{AT}$  frequenza di risonanza nel caso la piastrina di quarzo sia prodotta con il taglio "AT"<sup>4</sup>(circa 35°15' dall'asse ottico) e  $\rho_q$  densità del quarzo. Sostituendo le quantità costanti, la (2.8) può risciversi nel seguente modo

$$\varrho_f = 4.4 \cdot 10^5 \frac{\Delta\nu}{\nu_q \rho_f} . \quad (2.9)$$

In questa maniera è possibile determinare lo spessore di uno strato di materiale depositato sul cristallo di quarzo attraverso misure precise della variazione di frequenza cristallina.

---

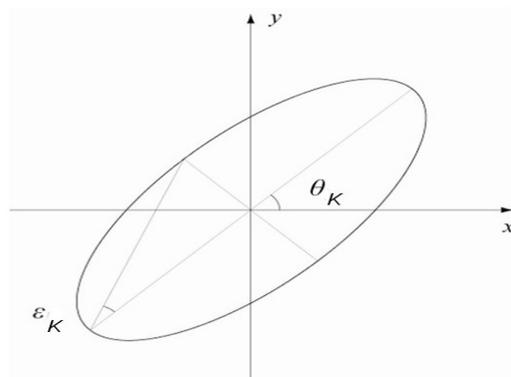
<sup>4</sup>In questa configurazione la frequenza di risonanza risulta meno influenzata dalle variazioni di temperatura.

## Effetto Kerr per misure magneto-ottiche

L'effetto Kerr magneto-ottico (MOKE, *Magneto-Optic Kerr Effect*), utilizzato per studiare i processi magnetici caratterizzanti i campioni discussi in questo lavoro di tesi, consiste in una variazione della polarizzazione di un fascio di luce riflesso da una superficie magnetica; le proprietà ottiche di quest'ultima risultano legate all'orientazione degli spin degli elettroni, cioè allo stato di magnetizzazione del mezzo, tramite l'interazione spin-orbita. Se la luce incidente è polarizzata linearmente, come quella di un fascio laser uscente da un polarizzatore, il mutamento del suo stato di polarizzazione dopo la riflessione può essere misurato mediante due parametri:

1. *ellitticità*, rapporto tra le lunghezze dei semiassi minore e maggiore dell'ellisse di rotazione dell'onda riflessa;
2. *rotazione*, angolo di cui è ruotata l'ellisse di polarizzazione, ovvero l'angolo tra l'asse  $x$  ed il semiasse maggiore.

Ellitticità e rotazione sono grandezze proporzionali alla magnetizzazione, perciò la loro misura costituisce un'informazione significativa.



**Figura 3.1:** Visualizzazione grafica dei parametri di ellitticità ( $\varepsilon_K$ ) e di rotazione ( $\vartheta_K$ ).

Questa tecnica, data la sua grande sensibilità, risulta molto efficace per indagini su materiali come film sottili e nanostrutture caratterizzati da un basso segnale di magnetizzazione. In questo senso, l'intero capitolo è dedicato alla descrizione teorica del fenomeno ed al suo utilizzo per le misure.

### 3.1 Modello classico per l'effetto magneto-ottico nei dielettrici

Al fine di comprendere in maniera esaustiva la fisica che si cela dietro a questo fenomeno, è utile iniziare con l'analizzare l'effetto Kerr nei mezzi non magnetici in termini del modello di Drude-Lorentz in cui il dielettrico viene concepito, microscopicamente, come un sistema costituito da elettroni vincolati armonicamente al nucleo e soggetti a forze di smorzamento. L'obiettivo è quello di ottenere il tensore suscettività grazie al quale si può determinare come, in presenza di un campo magnetico esterno, si modifica il campo elettromagnetico a causa dell'interazione con il mezzo [17].

### 3.1.1 Il tensore suscettività

L'equazione del moto per un elettrone di massa  $m_e$  soggetto ad un campo elettrico oscillante, di forma  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$ , e ad un campo magnetico statico  $\mathbf{H}$  è [17]

$$m_e \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} + b \frac{d\mathbf{r}}{dt} + K\mathbf{r} = -e\mathbf{E} - e \frac{d\mathbf{r}}{dt} \times \mathbf{H}, \quad (3.1)$$

dove  $\mathbf{r}$  rappresenta lo spostamento dell'elettrone dalla sua posizione di equilibrio,  $b$  è il coefficiente di smorzamento e  $K$  è la costante elastica. Considerando lo stato stazionario per il quale  $\mathbf{r}$  ha la stessa dipendenza temporale di  $\mathbf{E}$ , la (3.1) può riscriversi come

$$-m_e \omega^2 \mathbf{r} - i\omega b \mathbf{r} + K\mathbf{r} = -e\mathbf{E}_0 + i\omega e \mathbf{r} \times \mathbf{H}. \quad (3.2)$$

Se il campo magnetico si propaga lungo l'asse  $z$ , l'espressione (3.2) conduce alle seguenti equazioni, una per ciascuna coordinata

$$\mathcal{T} \cdot \begin{bmatrix} x \\ y \\ z \end{bmatrix} = -\frac{e}{m_e} \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \\ E_{0z} \end{bmatrix}. \quad (3.3)$$

Il tensore  $\mathcal{T}$  assume la seguente forma

$$\mathcal{T} = \begin{pmatrix} \omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega & -i\omega\omega_c & 0 \\ i\omega\omega_c & \omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega & 0 \\ 0 & 0 & \omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega \end{pmatrix}, \quad (3.4)$$

ove con

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{b}{m_e}, \\ \omega_c &= \frac{eH}{m_e}, \\ \omega_0 &= \sqrt{\frac{K}{m_e}}, \end{aligned}$$

si sono indicati rispettivamente il parametro di smorzamento, la frequenza di ciclotrone e la frequenza di risonanza. Se  $n$  è il numero medio di elettroni nell'unità di volume, la polarizzazione  $\mathbf{P}$ , per definizione  $\mathbf{P} = -ner$ , può essere riscritta, per mezzo della (3.3), come

$$\mathbf{P} = \frac{ne^2}{m_e} \mathcal{T}^{-1} \mathbf{E}_0. \quad (3.5)$$

Il tensore suscettività è la quantità che lega la polarizzazione al campo elettrico ed in particolare

$$\mathbf{P} = \chi \mathbf{E}_0 . \quad (3.6)$$

Tramite la (3.5) e la (3.6),  $\chi$  risulta

$$\chi = \frac{ne^2}{m_e} \mathcal{T}^{-1} = \begin{pmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} & 0 \\ -\chi_{12} & \chi_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} \end{pmatrix} , \quad (3.7)$$

con

$$\chi_{11} = \frac{ne^2}{m_e} \left[ \frac{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)^2 - \omega^2\omega_c^2} \right] , \quad (3.8a)$$

$$\chi_{12} = \frac{ne^2}{m_e} \left[ \frac{i\omega\omega_c}{(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)^2 - \omega^2\omega_c^2} \right] , \quad (3.8b)$$

$$\chi_{33} = \frac{ne^2}{m_e} \left[ \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \right] . \quad (3.8c)$$

Come si può notare dalla (3.7), il campo applicato fa insorgere termini antisimmetrici non diagonali nel tensore suscettività che, altrimenti, risulterebbe diagonale, forma tipica per un mezzo isotropo. La suscettività è inoltre legata al tensore dielettrico,  $\epsilon$ , tramite la seguente relazione

$$\epsilon = I + 4\pi\chi , \quad (3.9)$$

con  $I$  tensore identità.

### 3.1.2 Gli indici di rifrazione

La propagazione di un'onda elettromagnetica in un mezzo non conduttore, non magnetico ed elettricamente neutro è determinata risolvendo le equazioni di Maxwell:

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} , \quad (3.10a)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} . \quad (3.10b)$$

L'equazione di propagazione per il campo  $\mathbf{E}$  si ottiene combinando il rotore della (3.10a) e la derivata temporale della (3.10b), in particolare

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \frac{4\pi\chi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} , \quad (3.11)$$

ove si è utilizzata la (3.6) per definire  $\mathbf{P}$ . Scegliendo una soluzione nella forma  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{i(kz - \omega t)}$ , con  $\mathbf{k}$  vettore d'onda nella direzione  $z$ , attraverso la (3.7), l'equazione (3.11) conduce alle seguenti relazioni

$$\left[ k^2 - \frac{\omega^2}{c^2} (1 + \chi_{11}) \right] E_{0x} + \left( -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{12} \right) E_{0y} = 0, \quad (3.12a)$$

$$\left( \frac{\omega^2}{c^2} \chi_{12} \right) E_{0x} + \left[ k^2 - \frac{\omega^2}{c^2} (1 + \chi_{11}) \right] E_{0y} = 0, \quad (3.12b)$$

$$\frac{\omega^2}{c^2} (1 + \chi_{33}) E_{0z} = 0. \quad (3.12c)$$

L'ultima espressione restituisce  $E_{0z} = 0$  mentre il determinante delle prime due equazioni porta ad una soluzione non banale da cui deriva la condizione

$$\left[ k^2 - \frac{\omega^2}{c^2} (1 + \chi_{11}) \right]^2 + \left( \frac{\omega^2}{c^2} \chi_{12} \right)^2 = 0. \quad (3.13)$$

Risolvendo per  $k$  si trova

$$k = \frac{\omega}{c} \sqrt{1 + \chi_{11} \pm \chi_{12}}, \quad (3.14)$$

che in combinazione con la (3.12a) e la (3.12b) conduce alla seguente

$$E_{0y} = \pm i E_{0x}. \quad (3.15)$$

Quest'ultimo risultato indica come i valori di  $k$  espressi dalla relazione (3.14) corrispondano rispettivamente ad un'onda con polarizzazione circolare sinistra (L) e con polarizzazione circolare destra (R). In accordo con quanto detto, gli indici di rifrazione sono

$$n_L = \sqrt{1 + \chi_{11} + i\chi_{12}}, \quad (3.16a)$$

$$n_R = \sqrt{1 + \chi_{11} - i\chi_{12}}, \quad (3.16b)$$

e consentono di descrivere come la polarizzazione dell'onda elettromagnetica sia influenzata dalla propagazione nel mezzo. Attraverso la (3.8a) e la (3.8b), gli indici di rifrazione possono risciversi in maniera approssimata come

$$\sqrt{1 + \chi_{11} \pm i\chi_{12}} \approx \sqrt{1 + \frac{ne^2}{m_e} \left[ \frac{1}{\omega_0^2 - (\omega \mp \frac{\omega_c}{2})^2 - i\gamma\omega} \right]}, \quad (3.17)$$

assumendo  $\chi_{12} \ll 1$ . L'applicazione di un campo magnetico statico provoca uno spostamento delle curve di dispersione per luce polarizzata circolarmente di un fattore  $\omega_c/2$  proporzionale ad  $H$  [17].

### 3.1.3 Effetto Faraday

Come mostra la (3.12c), il vettore  $\mathbf{E}_0$  giace nel piano normale alla direzione del campo applicato, cioè nel piano  $xy$ . Al fine di comprendere l'effetto della propagazione nel mezzo è possibile quindi prendere come riferimento un'onda piana monocromatica di lunghezza d'onda  $\lambda_0$  polarizzata linearmente lungo l'asse  $x$ . Secondo il formalismo matriciale di Jones, gli stati di polarizzazione di un'onda elettromagnetica possono essere rappresentati da vettori colonna di modulo unitario a due componenti, in genere complesse, corrispondenti agli assi  $x$  e  $y$ . L'onda piana si può esprimere come combinazione lineare di un'onda con polarizzazione circolare destra e di una con polarizzazione circolare sinistra nel modo seguente [17]

$$E_0 \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} + \frac{1}{2} E_0 \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}. \quad (3.18)$$

La propagazione dell'onda nel mezzo si può descrivere attraverso la sovrapposizione delle onde polarizzate circolarmente ed, in termine degli indici di rifrazione, si ha

$$\frac{1}{2} E_0 \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} e^{i \frac{2\pi n_L}{\lambda_0} z} + \frac{1}{2} E_0 \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} e^{i \frac{2\pi n_R}{\lambda_0} z} = E_0 e^{i\psi} \begin{bmatrix} \cos(\delta) \\ \sin(\delta) \end{bmatrix}, \quad (3.19)$$

ove

$$\psi = \frac{\pi z}{\lambda_0} (n_R + n_L), \quad (3.20a)$$

$$\delta = \frac{\pi z}{\lambda_0} (n_R - n_L). \quad (3.20b)$$

Dopo aver percorso una distanza  $l$  nel mezzo, l'onda sarà polarizzata ellitticamente con ellitticità

$$\tan(\varepsilon_F^1) = \tanh[\Im(\delta)] = \tanh\left[\frac{\pi l}{\lambda_0} \Im(n_R - n_L)\right] \quad (3.21)$$

e con l'asse maggiore ruotato di un angolo

$$\vartheta_F = \Re(\delta) = \frac{\pi l}{\lambda_0} \Re(n_R - n_L). \quad (3.22)$$

---

<sup>1</sup>Il pedice "F" sottolinea come, in questo contesto, ellitticità e rotazione siano riconducibili all'effetto Faraday.

L'equazione (3.21) mostra come la luce diventi polarizzata ellitticamente solo se gli indici di rifrazione sono quantità complesse, cioè se il mezzo è assorbente. Sostituendo la (3.17) (valida per  $\chi_{12} \ll 1$ ) nella (3.22),  $\vartheta_F$  si può riscrivere come [17]

$$\vartheta_F \approx -\frac{\pi l}{\lambda_0} \Re \left( \frac{i\chi_{12}}{1 + \chi_{11}} \right) = V l H , \quad (3.23)$$

dove il coefficiente  $V$  è chiamato costante di Verdet e dipende dalle caratteristiche del materiale. La (3.23) evidenzia come l'ampiezza della rotazione sia proporzionale alla distanza percorsa nel mezzo ed al campo applicato.

### 3.2 Effetti magneto-ottici nei ferromagneti

Nei materiali ferromagnetici gli effetti magneto-ottici sono più intensi rispetto a quelli che si manifestano nei materiali non magnetici. In questo senso, l'approccio utilizzato nella sezione precedente può essere ampliato ai materiali metallici, nei quali gli elettroni di conduzione giocano un ruolo fondamentale. Il modello di Drude-Lorentz si estende ora a due gruppi di elettroni: gli elettroni vincolati al nucleo per i quali vale la (3.1) e quelli di conduzione, liberi di vagare nel mezzo, le cui equazioni del moto devono includere una forza data dalla presenza di un campo magnetico locale proporzionale a  $\mathbf{M}$  e dello stesso ordine di grandezza del campo di Weiss ( $10^6 - 10^7 Oe$ ) [24]. In quest'ottica, il modello prevede le seguenti

$$m_e \frac{d^2 \mathbf{r}_1}{dt^2} + b_1 \frac{d\mathbf{r}_1}{dt} + K \mathbf{r}_1 = -e \mathbf{E} , \quad (3.24a)$$

$$m_e \frac{d^2 \mathbf{r}_2}{dt^2} + b_2 \frac{d\mathbf{r}_2}{dt} + K \mathbf{r}_2 = -e \mathbf{E} - e \frac{d\mathbf{r}_2}{dt} \times (\alpha \mathbf{M}) , \quad (3.24b)$$

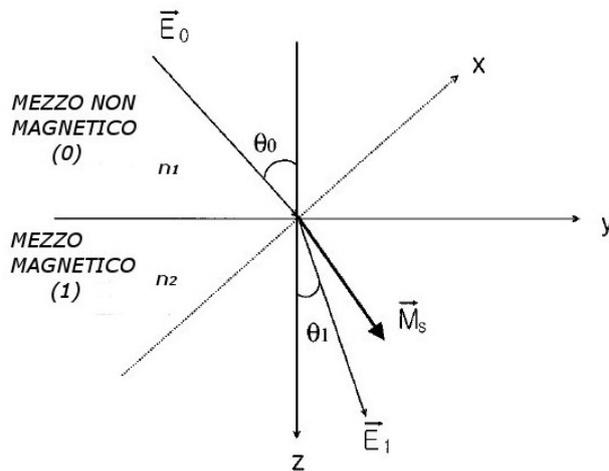
rispettivamente per gli elettroni legati e per quelli di conduzione. Di conseguenza, la polarizzazione del mezzo si può riscrivere, tenendo conto dell'effetto medio dovuto ai due tipi di elettroni, come

$$\mathbf{P} = -\beta n e \mathbf{r}_1 - (1 - \beta) n e \mathbf{r}_2 , \quad (3.25)$$

ove  $\beta$  indica la frazione di quelli vincolati al nucleo.

L'esistenza del campo di Weiss è stata inizialmente spiegata nell'ambito del

modello di scambio di Heisenberg; tuttavia quest'ultimo è inadatto perché il campo di Weiss non si applica al moto elettronico, il quale è responsabile delle proprietà elettriche del materiale. Il problema fu risolto da Hume (1937) che propose una spiegazione basata sull'interazione spin-orbita. L'accoppiamento spin-orbita è espresso attraverso un termine proporzionale a  $(\nabla V \times \mathbf{p}) \cdot \mathbf{s}$  e risulta dall'interazione del moto elettronico con il gradiente del campo elettrico ( $\mathbf{p}$  è il momento associato all'elettrone e  $\mathbf{s}$  è lo spin dell'elettrone). Questa interazione connette quindi le proprietà magnetiche alle proprietà ottiche di un ferromagnete [18]. Per materiali non magnetici l'effetto totale è debole perché il numero di spin *up* e spin *down* è lo stesso, mentre, nel caso opposto, lo squilibrio tra la popolazione di spin genera un grande effetto magneto-ottico. Nei suoi studi Hume calcolò gli indici di rifrazione per polarizzazione destra e sinistra usando il modello di scambio di Heisenberg e la relazione di dispersione di Kramers-Heisenberg. Dal momento che l'indice di rifrazione è proporzionale alla conducibilità del materiale, l'effetto magneto-ottico può essere compreso calcolando il tensore di conducibilità; quest'ultimo si ottiene utilizzando il metodo di Argyers [18].



**Figura 3.2:** Sistema di coordinate utilizzato nella descrizione di un'onda che inizialmente viaggia in un mezzo non magnetico (0) ed incide poi su di un materiale ferromagnetico (1). La direzione della magnetizzazione è arbitraria [22].

In base a queste considerazioni, quando un fascio di luce che si propaga in

un mezzo non magnetico (0) incide su di un mezzo magnetico (1), il tensore dielettrico, nel caso di un materiale a simmetria cubica, può scriversi come segue<sup>2</sup> [19, 22]

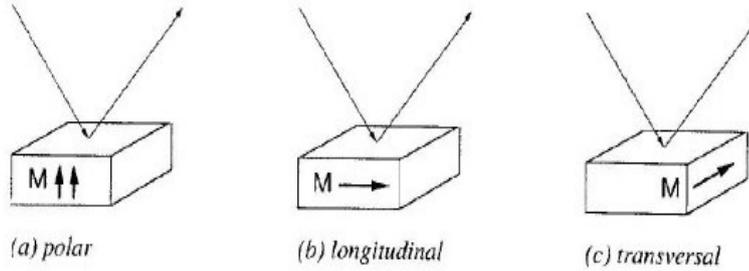
$$\epsilon = \epsilon_{xx} \begin{pmatrix} 1 & -iQm_z & iQm_y \\ iQm_z & 1 & -iQm_x \\ -iQm_y & iQm_x & 1 \end{pmatrix}, \quad (3.26)$$

dove  $m_i$  sono i coseni direttori del vettore di magnetizzazione  $\mathbf{M}_s$ ,  $\epsilon_{xx}$  è un fattore indipendente dalla magnetizzazione e  $Q$  è il parametro magneto-ottico o vettore di Voigt proporzionale alla magnetizzazione. Pertanto, l'effetto della magnetizzazione è quello di ridurre la simmetria del cristallo da cubica ad uniassiale e generare elementi non diagonali che sono legati alle proprietà magneto-ottiche. Nel caso  $Q \neq 0$  si possono distinguere tre tipi di MOKE a seconda della direzione della magnetizzazione rispetto alla superficie del campione ed al piano di incidenza della luce:

- **geometria longitudinale** (o **meridionale**), caratterizzata da  $m_y = 1$  e  $m_x = m_z = 0$ , in cui la magnetizzazione è parallela alla superficie del campione e giace nel piano di incidenza;
- **geometria polare**, caratterizzata da  $m_z = 1$  e  $m_x = m_y = 0$ , in cui la magnetizzazione è normale alla superficie del campione;
- **geometria trasversale** (od **equatoriale**), caratterizzata da  $m_x = 1$  e  $m_y = m_z = 0$ , in cui la magnetizzazione è parallela alla superficie del campione e normale al piano di incidenza.

---

<sup>2</sup>È necessario chiarire come ci siano due differenti formalismi di segno per descrivere il tensore dielettrico. Il sistema di coordinate e la convenzione di segno utilizzati sono gli stessi del Rif.[22].



*Figura 3.3: I tre tipi di geometrie dell'effetto Kerr [21].*

### 3.2.1 Formalismo macroscopico per l'effetto Kerr longitudinale

Quanto scritto è utile per ottenere i parametri di ellitticità e rotazione per un angolo di incidenza arbitrario. Lo studio presentato in questo lavoro di tesi è, in particolare, effettuato su campioni che presentano magnetizzazione giacente nel piano di incidenza e sono perciò caratterizzati sfruttando l'effetto Kerr longitudinale.

L'onda elettromagnetica polarizzata linearmente può essere scomposta in due direzioni tra loro ortogonali: un'onda di tipo  $p$  che giace nel piano di incidenza ed un'onda di tipo  $s$  che è normale al piano di incidenza. La riflessione del campione può essere valutata attraverso la matrice di riflessione di Fresnel:

$$\mathbf{R} = \begin{bmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{bmatrix}, \quad (3.27)$$

ove i termini  $r_{ij}$  sono i coefficienti di riflessione di Fresnel, gli indici  $i$  e  $j$  indicano rispettivamente la polarizzazione del campo elettrico riflesso e la po-

larizzazione del campo incidente. Da qui, definendo l'angolo Kerr complesso per i modi  $p$  e  $s$  come

$$\begin{cases} \theta_K^p = \vartheta_K^p + i\varepsilon_K^p = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \\ \theta_K^s = \vartheta_K^s + i\varepsilon_K^s = \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \end{cases}, \quad (3.28)$$

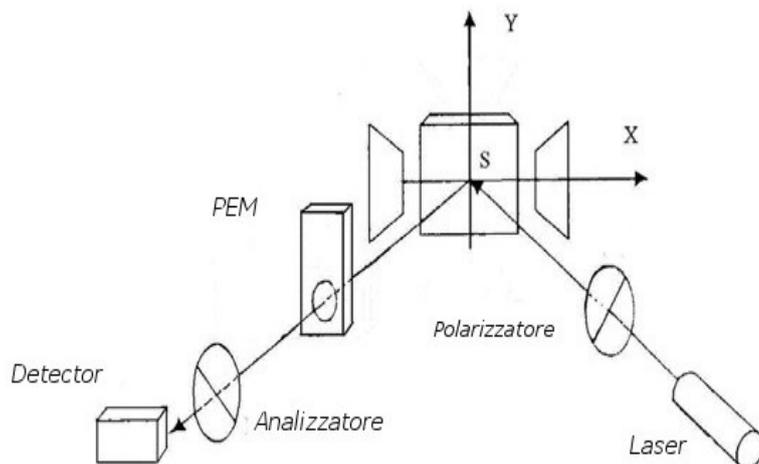
si possono ottenere le relazioni per la rotazione e l'ellitticità Kerr nella configurazione longitudinale ( $m_x = m_z = 0$ ,  $m_y = 1$ ) [20]

$$\begin{aligned} \vartheta_K^{s,p} &\equiv \Re \left[ \frac{(\pm r_{sp})}{r_{ss}(r_{pp})} \right] = \Im \left[ \frac{\sin \theta_0 n_r^2 (\sin \theta_0 \tan \theta_0 \pm \sqrt{n_r^2 - \sin^2 \theta_0})}{(n_r^2 - 1)(n_r^2 - \tan^2 \theta_0)(n_r^2 - \sin^2 \theta_0)^{1/2}} Q \right], \\ \varepsilon_K^{s,p} &\equiv \Im \left[ \frac{(\pm r_{sp})}{r_{ss}(r_{pp})} \right] = \Re \left[ \frac{\sin \theta_0 n_r^2 (\sin \theta_0 \tan \theta_0 \pm \sqrt{n_r^2 - \sin^2 \theta_0})}{(n_r^2 - 1)(n_r^2 - \tan^2 \theta_0)(n_r^2 - \sin^2 \theta_0)^{1/2}} Q \right]. \end{aligned}$$

In queste equazioni  $n_r$  è l'indice di rifrazione relativo dei due mezzi adiacenti ( $n_r = n_2/n_1$ ),  $\theta_0$  è l'angolo che il raggio incidente forma con la normale alla superficie del mezzo (1) ed i segni  $+$  e  $-$  corrispondono rispettivamente alla polarizzazione  $s$  e  $p$  dell'onda.

### 3.3 Descrizione dell'apparato sperimentale

La risposta magneto-ottica dei campioni analizzati è stata studiata grazie ad un apparato MOKE [23] simile a quello rappresentato in figura 3.4. La luce, prodotta da un laser  $He-Ne$ , passa attraverso un polarizzatore di Glan-Thompson, incide sulla superficie del campione ed è riflessa. Il raggio riflesso passa, a sua volta, attraverso un modulatore fotoelastico (PEM, *PhotoElastic Modulator*), regolato ad una frequenza di  $\omega_m = 50 kHz$ , e nuovamente attraverso un polarizzatore di Glan-Thompson (analizzatore) per essere infine rilevato da un fotodiodo. Le componenti del segnale, modulate ad una frequenza  $\omega_m$  e  $2\omega_m$ , sono misurate grazie a due amplificatori *lock-in* mentre la componente continua del segnale è misurata con un voltmetro ad alta precisione. Il campione viene posizionato tra le espansioni polari di un elettromagnete che genera un campo fino a  $5 kOe$  in direzione parallela al piano di incidenza del fascio laser.



*Figura 3.4: Schema del set up sperimentale del sistema MOKE.*

La variazione di polarizzazione che il fascio subisce attraversando ogni singolo strumento può essere analizzata mediante l'utilizzo del formalismo di Jones già introdotto, in cui lo stato di polarizzazione dell'onda incidente e dell'onda riflessa può essere espresso mediante un vettore colonna

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} E_p \\ E_s \end{bmatrix}. \quad (3.30)$$

Di conseguenza, il mutamento della polarizzazione della luce nell'attraversare una sequenza di elementi ottici sarà formulato come prodotto di operatori matriciali.

Nelle misure presentate in questo lavoro di tesi la luce incidente è polarizzata ortogonalmente al piano di incidenza (polarizzazione  $s$ ). La matrice che descrive un polarizzatore che imposta questo stato è

$$\mathbf{P}_s = \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}. \quad (3.31)$$

L'analizzatore è posizionato ad un certo angolo  $\theta_\alpha$  rispetto al piano di incidenza e la matrice associata si può scrivere come

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} \cos^2 \theta_\alpha & \sin \theta_\alpha \cos \theta_\alpha \\ \sin \theta_\alpha \cos \theta_\alpha & \sin^2 \theta_\alpha \end{bmatrix}. \quad (3.32)$$

Il modulatore fotoelastico è utilizzato per modulare o variare ad una fissata frequenza la polarizzazione del fascio incidente. Questo strumento introduce uno sfasamento tra le componenti della polarizzazione parallela ed ortogonale al piano di incidenza grazie alla presenza di un trasduttore piezoelettrico che, se alimentato con una tensione alternata, dà luogo ad una vibrazione dell'onda dell'ordine del  $kHz$  all'interno del materiale fotoelastico. L'effetto è quello di rendere diversi gli indici di rifrazione per le due componenti della polarizzazione, la cui differenza è  $\Delta n = A \cos \omega_m t$ :  $A$  è proporzionale al voltaggio applicato e  $\omega_m$  è la frequenza di vibrazione. Lo sfasamento tra le componenti della polarizzazione è pari a

$$\phi = \frac{2\pi l \Delta n}{\lambda_0} = \frac{2\pi l A \cos(\omega_m t)}{\lambda_0}, \quad (3.33)$$

ove  $l$  è lo spessore del cristallo e  $\lambda_0$  è la lunghezza d'onda della luce. La matrice caratteristica del modulatore fotoelastico è

$$\mathcal{P} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\phi} \end{bmatrix} \quad (3.34)$$

se l'asse ottico del PEM è perpendicolare al piano di incidenza e quindi alla direzione dell'onda polarizzata  $p$ .

Per quanto detto, ricordando che  $\mathbf{R}$  è la matrice associata al campione (eq. (3.27)), il segnale misurato può essere espresso tramite la seguente relazione

$$i_f = \frac{I_f}{I_{dc}} = \frac{|\mathbf{A} \cdot \mathcal{P} \cdot \mathbf{R} \cdot \mathbf{E}|^2}{I_{dc}}, \quad (3.35)$$

ove  $I_f$  e  $I_{dc}$  indicano rispettivamente la componente modulata e continua del segnale mentre  $\mathbf{A}$ ,  $\mathcal{P}$ ,  $\mathbf{R}$ ,  $\mathbf{E}$  sono le matrici di Jones descritte sopra. Dal momento che gli amplificatori *lock-in* sono limitati a misurare segnali di frequenza  $\omega_m$  e  $2\omega_m$ , si possono trascurare i termini di ordine superiore al primo (del tipo  $|r_{ps}|^2$ ) e così la (3.35) conduce alle seguenti espressioni

$$i_{\omega_m}^s = C_1 f(\theta_\alpha) \Im\{r_{ss} r_{ps}^*\}, \quad (3.36a)$$

$$i_{2\omega_m}^s = C_2 f(\theta_\alpha) \Re\{r_{ss} r_{ps}^*\}, \quad (3.36b)$$

con  $f(\theta_\alpha) = \sin \theta_\alpha / \cos \theta_\alpha$ ,  $C_1 = -4J_1/\sqrt{2}|r_{ss}|^2$ ,  $C_2 = 4J_2/\sqrt{2}|r_{ss}|^2$  dove  $J_1$  e  $J_2$  sono funzioni di Bessel di primo e secondo ordine. Non è difficile notare, a questo punto, come, ricordando la (3.28), il termine  $i_{\omega_m}^s$  sia proporzionale a  $\varepsilon_K$  mentre  $i_{2\omega_m}^s$  sia proporzionale a  $\vartheta_K$ . Relazioni del tutto simili possono essere ottenute anche nel caso di luce polarizzata  $p$ .

È bene sottolineare nuovamente come sia ellitticità che rotazione Kerr siano grandezze legate alla magnetizzazione; la loro misura costituisce quindi un'informazione significativa circa l'intensità di  $\mathbf{M}$ : è per questa ragione che i cicli di magnetizzazione ottenuti con questa tecnica riportano valori normalizzati alla saturazione.

# Capitolo 4

## Risultati

Recentemente, il continuo sforzo per aumentare la capacità di *storage* magnetico e simultaneamente ridurre la dimensione di ogni singolo bit ha reso indispensabile lo studio delle proprietà magnetiche di strutture di dimensioni nanometriche. Il passaggio da film continui a *dots* a singola fase porta a notevoli cambiamenti nella configurazione magnetica e nel modo in cui la magnetizzazione si inverte; la loro dimensione diventa comparabile con alcune lunghezze critiche, come la lunghezza di scambio, sotto la quale il *dot* si trova in uno stato a singolo dominio, e la lunghezza di correlazione, corrispondente allo spessore della parete di dominio [38]. Per di più, al di sotto di una taglia critica (si veda la sezione 1.5), la magnetizzazione diventa instabile a causa delle fluttuazioni termiche, conducendo ad uno stato superparamagnetico caratterizzato da assenza di coercitività.

I processi magnetici cambiano ulteriormente passando da strutture a singola fase a sistemi FM-AFM accoppiati per scambio. In quest'ultimo caso, l'interazione di scambio all'interfaccia tra le due fasi magnetiche modifica l'anisotropia effettiva dei sistemi, alterando, in ultima analisi, le proprietà magnetiche. Come logico, il sistema nanometrico influenza ed altera in maniera sensibile il meccanismo di accoppiamento di scambio rispetto ad un semplice bistrato continuo. La configurazione di minima energia, risultato del bilanciamento tra energia magnetostatica, anisotropa e di scambio, viene raggiunta attraverso meccanismi differenti rispetto ai film continui. A tutt'oggi, ci sono comunque diversi punti irrisolti ed alcune contraddizioni sulla

reale dipendenza del fenomeno di *exchange bias* dal confinamento dimensionale. Alcuni studi confermano come, passando da sistemi nanostrutturati a film continui, il valore di scambio ( $H_{EX}$ ) decresca [34, 35], altri, al contrario, dimostrano come sperimentalmente aumenti [36, 37]. Resta comunque il fatto che queste divergenze sono in parte dovute a differenze nella composizione e nella forma delle strutture investigate, non permettendo un confronto rigoroso e sistematico. Come osservato da *Baltz et al.* [30], il valore di  $H_{EX}$ , riscontrato in bistrati di dimensioni inferiori ai  $100\text{ nm}$ , *sputterati* su *dots* quadrati di  $\text{Si}/\text{SiO}_2$ , è fortemente influenzato da effetti di attivazione termica. Questi ultimi, che tendono a ridurre lo scambio, sono più pronunciati nelle nanostrutture piuttosto che nei film continui con la stessa composizione, in particolare per *layer* AFM sottili. Per di più, le ridotte dimensioni delle nanostrutture impongono anche vincoli spaziali alle dimensioni del dominio AFM, in particolare per strati AFM spessi, favorendo così un aumento di  $H_{EX}$ . A seconda quindi della temperatura e dello spessore, lo *shift* del ciclo nei *nanodots* può essere maggiore o minore rispetto a quello riscontrato nei film continui nelle medesime condizioni sperimentali.

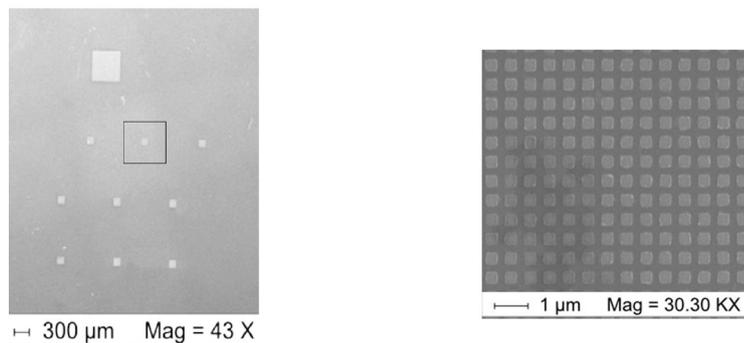
Come alternativa alla spintronica convenzionale, basata sugli FM, studi recenti hanno rilevato fenomeni magnetoresistivi completamente governati da AFM. Malgrado sia difficile accedere direttamente al comportamento di un AFM, a causa della debolezza intrinseca della risposta magnetica, ciò ha permesso lo sviluppo di una forte ricerca in questa direzione con lo scopo di raggiungere un'approfondita comprensione dei fenomeni magnetici in sistemi AFM di dimensioni nanometriche. Di recente *Spizzo et al.* [14] hanno studiato il comportamento magnetotermico di strati AFM ( $\text{Ir}_{25}\text{Mn}_{75}$ ) di differenti spessori, sfruttando l'accoppiamento con un *layer* di *permalloy* di spessore fissato. Si è osservata l'effettiva distribuzione delle barriere di energia di anisotropia della fase AFM, in particolare si sono individuati tre regimi magnetici. A temperatura  $T < 100\text{ K}$ , gli spin AFM all'interfaccia sono congelati in uno stato "vetroso" e sono coinvolti collettivamente nell'accoppiamento di scambio con gli spin FM; a  $T \approx 100\text{ K}$  lo stato collettivo si rompe: con l'aumentare della temperatura, solo gli spin AFM che sono fortemente polarizzati dai nanograni di  $\text{IrMn}$  che formano il *bulk* sono effettivamente coinvolti nel meccanismo di accoppiamento di scambio. Per

questo motivo, a  $T > 100 K$ , l'accoppiamento di scambio è disciplinato dalle barriere di anisotropia dei nanograni del *bulk* ed, in ultima analisi, dallo spessore dello strato.

Il capitolo è interamente dedicato alla presentazione e ad un'interpretazione, coerente con le conoscenze conseguite dalla ricerca odierna, dei risultati ottenuti studiando le proprietà del sistema *IrMn/FeNi* sotto forma di film continuo e di matrici di *dots* quadrati di differente dimensione (1000, 500, e 300 nm). Analisi strutturali, eseguite sul film continuo mediante tecniche di microscopia elettronica, hanno permesso di raggiungere una maggiore comprensione sia sul ruolo della fase di *IrMn* nel meccanismo di accoppiamento con la fase di *NiFe* sia sulla dipendenza dell'EB dalla temperatura (10-300 K); infine, gli studi condotti sui *patterns* di *nanodots* hanno messo in evidenza le conseguenze a cui porta il confinamento spaziale.

## 4.1 Le regioni analizzate

Uno dei principali vantaggi dell'analisi tramite MOKE è dovuto alla possibilità di caratterizzare magneticamente differenti *patterns* cresciuti sul medesimo substrato, grazie alla capacità di sondare localmente le proprietà magnetiche del campione; l'osservazione può essere, di volta in volta, circoscritta alla regione di interesse che racchiude solitamente il singolo *pattern*, riducendo così il segnale proveniente dal substrato. Questo metodo di indagine assicura che tutte le strutture siano realizzate nelle medesime condizioni sperimentali e siano soggette alla stessa prassi di misura. La figura 4.1(a), ottenuta al microscopio elettronico a scansione (SEM, *Scanning Electron Microscope*) [40], mostra una visione di insieme del campione studiato. Quest'ultimo è formato sia da una regione continua di area  $500 \times 500 \mu m^2$  sia da zone nanostrutturate, disposte secondo un preciso schema. I *nanodots* presentano forma quadrata e, a seconda del *pattern* analizzato, hanno dimensione  $1 \times 1 \mu m^2$ ,  $500 \times 500 nm^2$  e  $300 \times 300 nm^2$ . La figura 4.1(b) mostra nel dettaglio la struttura del *pattern* evidenziato in figura 4.1(a) dove si trovano *dots* di lato 500 nm. La distanza fra essi varia da 100 nm per *dots* di 300 nm di lato a 300 nm per *dots* di lati rispettivamente 500 nm e 1  $\mu m$ .



(a) Visione d'insieme del campione analizzato. (b) Matrice di dots di 500 nm di lato.

**Figura 4.1:** Immagini al microscopio elettronico a scansione (SEM) [40]. (a) Visione d'insieme in cui si può notare la particolare disposizione dei patterns e la regione continua. (b) Struttura interna del pattern evidenziato in (a), costituito da dots quadrati di lato 500 nm. Essi appaiono ben separati e regolarmente distribuiti e non è presente quasi nessuna traccia di resist.

*NiFe* e *IrMn* costituiscono un eccellente sistema per studiare il fenomeno di *exchange bias*: il *NiFe* è un materiale FM dolce con anisotropia trascurabile, proprietà tipica dei mezzi FM accoppiati per scambio, mentre l'*IrMn* è caratterizzato da un'alta anisotropia magneto-cristallina ( $K_{IrMn} = 1.8 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$  [41]), consentendo così di ottimizzare il meccanismo di scambio e soddisfare la disuguaglianza (1.65).

## 4.2 Risultati sperimentali

I cicli di isteresi sono stati registrati a differenti temperature nell'intervallo 10–300 K mediante effetto magneto-ottico longitudinale con una velocità di scansione di campo di circa 10 Oe/s. I dati MOKE sono stati ottenuti facendo una media su più *loops* presi in successione; bisogna sottolineare come, preventivamente, è stato necessario effettuare alcuni cicli “a vuoto” sia per capire il *range* di campi che meglio si adattava all'analisi specifica sia per evitare eventuali effetti di *training*. Questi ultimi erano più significativi nelle regioni *patternate*, probabilmente a causa delle disomogeneità di forma

dei *dots* che comportano tipicamente un allargamento della distribuzione del campo di inversione [30].

La procedura con la quale si sono sondate le proprietà magnetiche del film continuo e dei *nanodots* può essere riassunta come segue:

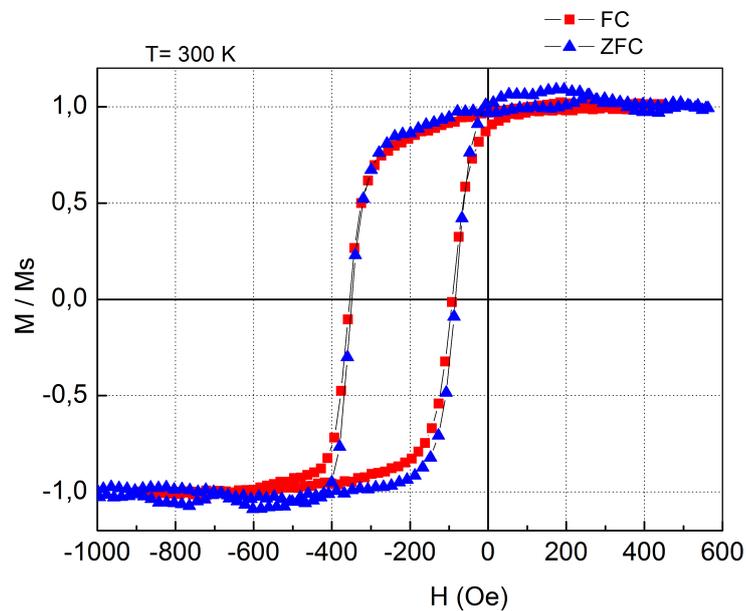
- il campione è stato portato, in assenza di campo applicato, alla temperatura di  $10\text{ K}$  grazie all'utilizzo di un criostato raffreddato con elio liquido (metodo *zero field cooling*, ZFC). Prima dell'inizio di ogni misura, si sono attesi circa 20 minuti così da avere una buona termalizzazione del sistema;
- i cicli di isteresi sono stati rilevati alle temperature di  $10\text{ K}/25\text{ K}/50\text{ K}/100\text{ K}/150\text{ K}/200\text{ K}/250\text{ K}/300\text{ K}$  per mezzo dell'applicazione di un campo lungo la direzione del campo di deposizione  $H_{dep}$  (che definisce la direzione positiva di campo);
- è stata ripetuta la stessa prassi ma, durante il raffreddamento del campione, è stato applicato un campo  $H_{cool} = 500\text{ Oe}$  nella stessa direzione di  $H_{dep}$  (metodo di *field cooling*, FC).

È stato verificato che, sia per il film continuo che per le regioni nanostrutturate, la differenza, a  $T = 300\text{ K}$ , tra la magnetizzazione di rimanenza misurata a ZFC e la magnetizzazione di saturazione fosse minore del 10% (figg.4.2(a) e 4.2(b)); in quest'ottica, vista la peculiarità tra i metodi di raffreddamento in assenza ed in presenza di campo, si riporteranno nelle sezioni successive soltanto i dati relativi alle misure condotte in FC. I cicli di isteresi sono *shiftati* verso sinistra lungo l'asse del campo magnetico, cioè nella direzione opposta rispetto al campo di deposizione. I valori di scambio ( $H_{EX}$ ) e di coercitività ( $H_c$ ) si possono esprimere come parametri positivi in questo modo

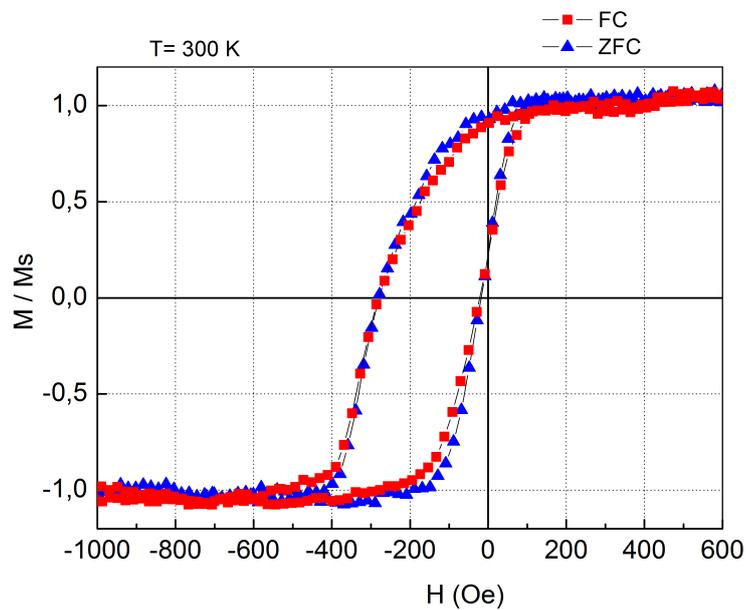
$$H_{EX} = -\frac{(H_R + H_L)}{2}, \quad (4.1a)$$

$$H_c = \frac{(H_R - H_L)}{2}, \quad (4.1b)$$

ove  $H_R$  e  $H_L$  sono rispettivamente i valori corrispondenti ai punti di intersezione fra il ramo destro e sinistro del ciclo con l'asse delle ascisse.



(a)

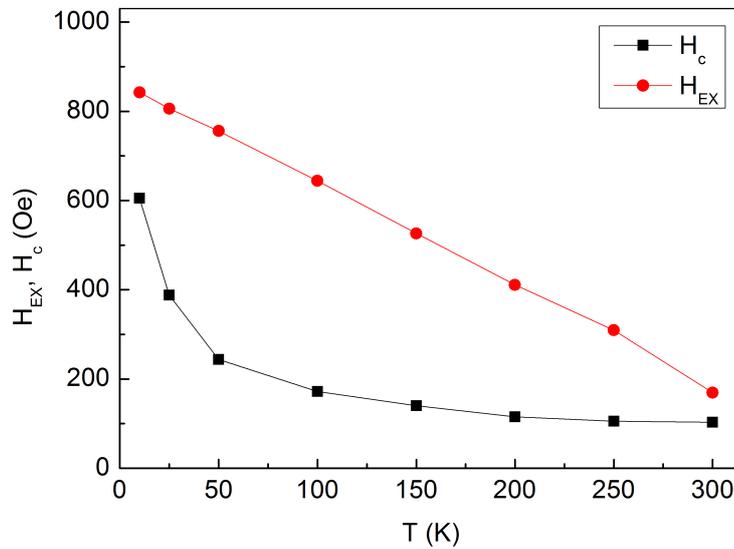


(b)

**Figura 4.2:** Cicli di isteresi sovrapposti relativi alle misure in FC ed in ZFC per il film continuo (a) e per la matrice di nanodots  $1 \times 1\ \mu\text{m}^2$  (b), ottenuti in entrambi i casi a  $T = 300\text{ K}$ . Come si nota i cicli sono quasi perfettamente sovrapponibili, il campo  $H_{dep}$  è quindi sufficiente a portare lo strato di NiFe alla saturazione.

### 4.2.1 Proprietà magnetiche e strutturali del film continuo di IrMn/NiFe

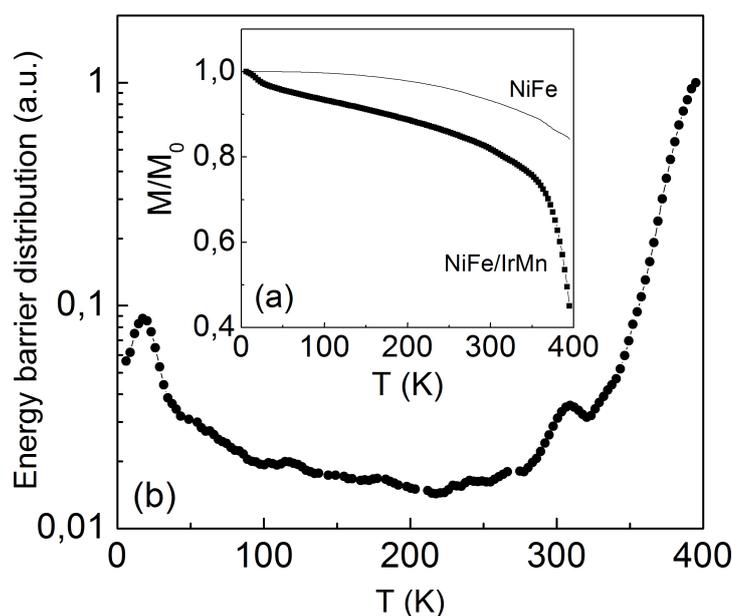
La figura sottostante mostra l'evoluzione termica dei parametri  $H_{EX}$  e  $H_c$  e, come si può notare, entrambi crescono col diminuire della temperatura, specialmente per  $T < 100 K$ .



**Figura 4.3:** Valori di scambio ( $H_{EX}$ ) e di coercitività ( $H_c$ ) in funzione della temperatura rilevati nel film continuo. In tutti i casi la barra di errore è più piccola o comparabile con la dimensione dei punti. Le linee continue costituiscono una guida per l'occhio.

Questo andamento è qualitativamente simile a quello osservato in film di  $NiFe/IrMn$  [14], nonostante le differenze di impilamento (l' $IrMn$  costituisce lo strato superiore ed il film è ricoperto da un *overlayer* di  $Cu$  di spessore  $5 nm$ ). In questo lavoro di ricerca, *Spizzo et al.*, avevano analizzato, mediante magnetometria SQUID (*Superconducting Quantum Interference Devices*), film con differenti spessori dello strato di  $IrMn$  ( $3, 6, e 10 nm$ ) ed erano riusciti, grazie ad un'indagine approfondita sulle proprietà magnetiche dei campioni, a spiegare sperimentalmente la dipendenza del fenomeno di EB dalla temperatura. In particolare, avevano ipotizzato un modello per

descrivere la struttura magnetica del *layer* AFM basato sull'esistenza di una regione disordinata con caratteristiche vetrose, interposta tra lo strato FM ed il *bulk* AFM e costituita da nanograni indipendenti o debolmente interagenti [14]. Questa possibilità era stata supportata da particolari misure<sup>1</sup> effettuate per sondare la distribuzione delle barriere di energia di anisotropia della fase AFM.



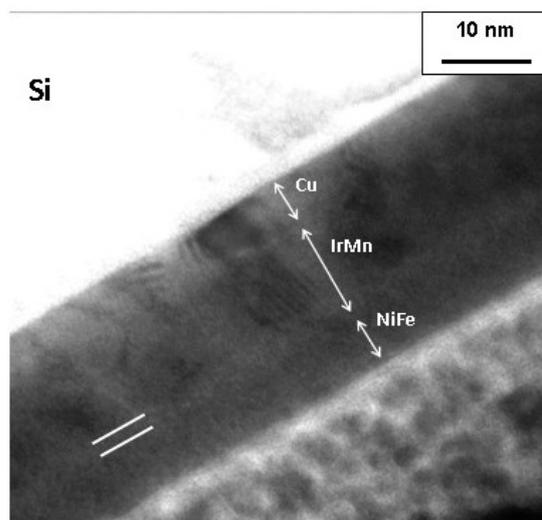
**Figura 4.4:** (a) Curva  $M$  vs  $T$  misurata sul film continuo accoppiato per scambio con spessore dello strato di  $IrMn$  di  $10\text{ nm}$  a  $H_{inv} = -50\text{ Oe}$  (simboli pieni); la curva  $M$  vs  $T$ , raffigurata come linea continua, è relativa ad un campione di riferimento di  $NiFe$  ed è stata misurata in un campo magnetico saturante di  $50\text{ Oe}$ . Entrambe le curve sono normalizzate al valore di saturazione a  $5\text{ K}$ ,  $M_0$ . (b) La curva, normalizzata al suo valore di picco, riproduce la distribuzione delle barriere di energia di anisotropia. È stata ottenuta calcolando la derivata rispetto alla temperatura della curva spessa in (a), dopo averla normalizzata ai valori  $M/M_0$  della linea sottile in (a) [14].

<sup>1</sup>Il campione era stato inserito nello SQUID a temperatura ambiente, portato a  $400\text{ K}$  e raffreddato sino a  $5\text{ K}$  in presenza di un campo saturante  $H_{cool} = 500\text{ Oe}$ ; poi, a  $5\text{ K}$ , dopo aver applicato un campo magnetico negativo  $H_{inv} = -50\text{ Oe}$ , si misurava la magnetizzazione  $M$  come funzione di  $T$  (velocità di riscaldamento  $3\text{ K/min}$ ).

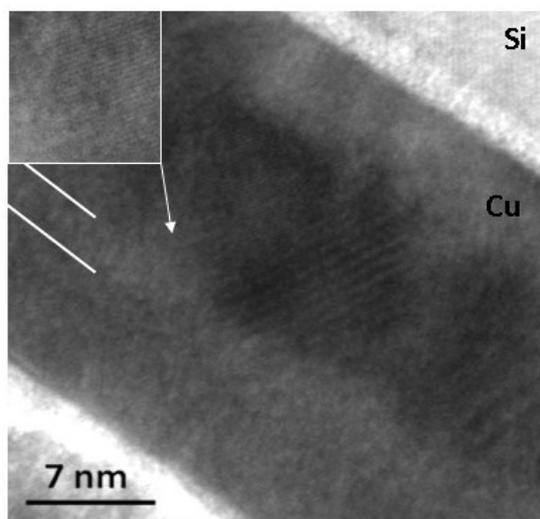
L'andamento della distribuzione delle barriere di energia di anisotropia, così come rilevato dalla fase FM, permette di giustificare come la diminuzione della magnetizzazione con la temperatura sia determinata sostanzialmente dalla riduzione dell'anisotropia magnetica effettiva agente sul *layer* di *NiFe* a causa proprio dell'accoppiamento con lo strato di *IrMn*. Ciò ha consentito, inoltre, di affermare come il picco ad alte temperature (solo parzialmente visibile) sia dovuto ai nanograni del *bulk* AFM e di associare al picco centrato a  $T \approx 20 K$  l'ingresso degli spin AFM all'interfaccia in un regime collettivo congelato.

Tali ricerche sono state supportate da successivi studi strutturali realizzati presso il Dipartimento SIMAU dell'Università Politecnica delle Marche. Una porzione del film usato nel lavoro di tesi è stato infatti impiegato per effettuare analisi al microscopio elettronico a trasmissione (TEM, *Transmission Electron Microscopy*). In particolare, questi risultati sono stati raggiunti grazie all'utilizzo della tecnica FIB (Focused Ion Beam) per la preparazione della lamella TEM [52].

Le figure 4.5(a) e 4.5(b) mostrano le immagini TEM del film continuo di struttura trasversale *Si/Cu[5 nm]/IrMn[10 nm]/NiFe[5 nm]* (le parentesi quadre riportano gli spessori nominali di ogni strato) [53]. Il *layer* di *Cu* appare cristallino ed il suo spessore è di circa  $5 nm$ , in accordo con il valore nominale (si veda anche il Cap.2); la dimensione laterale dei grani varia da  $7$  a  $10 nm$ . Lo strato di *IrMn*, cresciuto sopra il *layer* di *Cu*, presenta anch'esso una struttura cristallina e la dimensione dei nanograni oscilla tra i  $7$  e i  $10 nm$ . In questo caso, lo spessore è inferiore rispetto a quello nominale ( $10 nm$ ) di circa  $2-3 nm$ . Infine, si può distinguere uno strato di spessore compreso tra i  $7$  e gli  $8 nm$  riconducibile allo strato di *NiFe* e, per questo, più spesso rispetto al valore nominale ( $5 nm$ ). Esso appare amorfo se sottoposto al fascio di elettroni e, come è stato verificato, il contrasto non cambia inclinando il campione. La natura di questo strato è stata confermata anche da immagini TEM ad alta risoluzione (HRTEM, *High Resolution Transmission Electron Microscopy*) (fig.4.5(b)) e, malgrado siano state investigate diverse regioni del campione, non sono stati osservati grani di dimensione nanometrica.



(a)



(b)

**Figura 4.5:** (a) Visione d'insieme degli strati di cui è composto il film continuo. I segmenti bianchi evidenziano l'esistenza di una regione amorfa (di spessore 2-3 nm) in prossimità dell'interfaccia con la fase cristallina di IrMn. Essa presenta un contrasto più chiaro rispetto alla fase amorfa di NiFe. (b) Immagine TEM ad alta risoluzione. Nel riquadro in alto a sinistra vengono mostrati ingranditi i piani atomici {111} dell'IrMn. Si può notare inoltre uno strato amorfo di ossido di silicio (di spessore 1-1.5 nm) visibile tra il substrato di Si ed il campione sputterato. Le linee bianche hanno la stessa funzione dei segmenti in (a). [53]

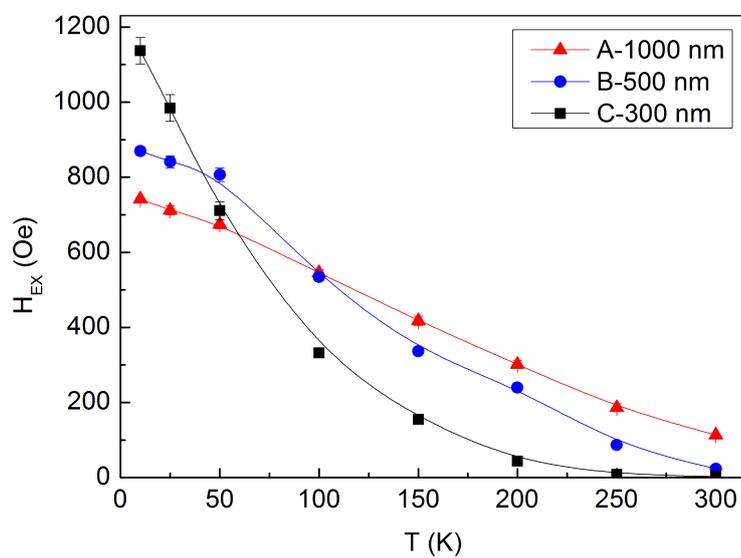
Nel riquadro di fig.4.5(b) sono mostrati nel dettaglio i piani atomici  $\{111\}$  dell'*IrMn*: essi terminano all'interfaccia con lo strato amorfo in maniera piuttosto irregolare e disordinata. Come si può notare, la porzione di strato amorfo (di spessore 2-3 nm) in prossimità dell'interfaccia con la fase *IrMn* presenta un contrasto più chiaro rispetto al resto della fase cui appartiene. In un materiale amorfo, tale differenza può essere frutto o di un diverso spessore del campione nella direzione del fascio elettronico o di una variazione nella composizione. Nel caso specifico, è stato escluso che la tecnica FIB, impiegata per la preparazione della lamella, abbia dato luogo ad una variazione rilevabile dello spessore dello strato amorfo (7-8 nm); pertanto, questo effetto è stato imputato ad un cambiamento nella composizione dello strato amorfo in prossimità dell'interfaccia con la fase cristallina di *IrMn*. Inoltre, bisogna sottolineare come l'analisi TEM confermi uno spessore totale del campione di circa 20 nm, in perfetto accordo con il valore nominale. In ultima analisi, considerando le differenze di contrasto nello strato amorfo e lo spessore dei layers di *NiFe* ed *IrMn* (rispettivamente più spessi e più sottili di circa 2-3 nm se confrontati con i relativi valori nominali) è stato possibile concludere che la regione amorfa, interposta tra la fase cristallina di *IrMn* e la fase *NiFe*, è composta da *IrMn*.

In base ai risultati sperimentali e strutturali, il comportamento magnetotermico del film di *IrMn/NiFe* può essere descritto nel seguente modo. A  $T < 100 K$ , gli spin di *IrMn* all'interfaccia sono congelati in uno stato magnetico vetroso e sono coinvolti collettivamente nell'accoppiamento di scambio con gli spin di *NiFe*. In queste condizioni, gli spin AFM all'interfaccia sono soggetti ad un'anisotropia effettiva piuttosto alta e, a  $T = 10 K$ ,  $H_{EX}$  e  $H_c$  sono massimi. In particolare, l'alto valore di  $H_c$ , maggiore rispetto al valore tipico ( $\approx 20 Oe$ ) osservato in un film di *NiFe* a  $T = 5 K$  [14], può essere spiegato assumendo che una certa frazione di spin AFM sia trascinata dagli spin FM durante l'inversione della magnetizzazione, probabilmente a causa del fatto che alcuni di essi sono soggetti localmente ad una anisotropia più bassa. A tale proposito, si pensa che questi spin AFM siano i principali responsabili del comportamento magnetico duro della fase FM, spesso osservato in sistemi accoppiati per scambio [8]. Quando il regime collettivo

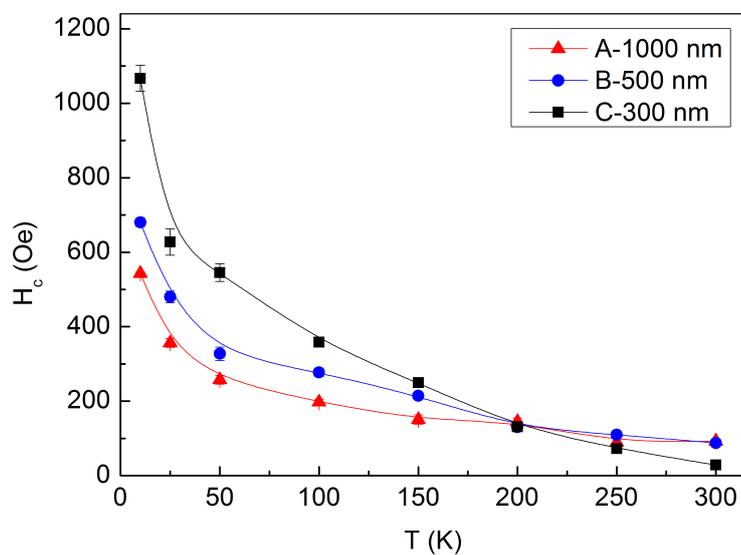
si rompe ( $T \approx 100 K$ ), l'orientazione degli spin AFM all'interfaccia è determinata dalle interazioni magnetiche esercitate sia dagli spin FM che dagli spin AFM del *bulk*: solo la frazione polarizzata magneticamente dagli spin AFM del *bulk* contribuisce in maniera sostanziale al meccanismo di EB. In altre parole, gli spin AFM all'interfaccia "rientrano" nello strato AFM da un regime congelato, comportamento magnetico simile a quello mostrato dagli spin ai bordi di grano nel *Fe* nanocristallino [42]. Dall'altro lato, gli spin interagenti con lo strato di *NiFe* ruotano coerentemente con gli spin FM e non contribuiscono né all'effetto di EB né, sostanzialmente, ad  $H_c$ . In conclusione, l'accoppiamento di scambio, invece di essere governato da una fase vetrosa collettiva, è dovuto ad una frazione di spin AFM all'interfaccia, la cui azione è sostenuta dai nanograni AFM scorrelati che formano il *bulk*. È lecito ipotizzare come tale quantità diminuisca con l'incremento dell'energia termica immagazzinata nel sistema; ciò è supportato (fig.4.3) da una riduzione sempre più marcata di  $H_{EX}$  e  $H_c$  con l'aumentare della temperatura sino a  $T = 300 K$ : un maggior riscaldamento del campione conduce all'impossibilità di assistere a fenomeni di EB dal momento che i nanograni entrano in un regime superparamagnetico [14]. A tale proposito bisogna ricordare come *Ohldag et al.* [29] eseguirono misure di dicroismo circolare a temperatura ambiente, mediante raggi X, su differenti sistemi accoppiati per scambio. Gli autori dimostrarono come solo una parte degli spin AFM all'interfaccia (circa il 4% del totale) risentono dell'interazione con il reticolo AFM e sono in grado di indurre EB; la maggior parte, invece, ruota sotto l'azione del campo magnetico esterno seguendo l'inversione della magnetizzazione del FM.

#### 4.2.2 Effetto di *exchange bias* nei *nanodots*

L'analisi effettuata sul film continuo permette di descrivere in maggior dettaglio il comportamento magnetotermico riscontrato nelle regioni nanostrutturate. Le figure 4.6(a) e 4.6(b) mostrano gli andamenti di  $H_{EX}$  e  $H_c$  in funzione della temperatura per i *patterns* di *nanodots* quadrati di dimensioni  $1 \times 1 \mu m^2$ ,  $500 \times 500 nm^2$  e  $300 \times 300 nm^2$ , indicati rispettivamente con le lettere A, B e C.



(a)



(b)

**Figura 4.6:** Campo di scambio (a) e coercitivo (b) in funzione della temperatura per i dots di tipo A, B e C. In alcuni casi la barra di errore è più piccola o confrontabile con la dimensione dei punti che identificano i valori ottenuti. Le linee continue costituiscono una guida per l'occhio.

Da un confronto tra la fig.4.3 e le figg.4.6(a) e 4.6(b) si nota come l'evoluzione magnetotermica di  $H_{EX}$  e  $H_c$  per il *pattern* A non sia sostanzialmente diversa da quella ottenuta per il film continuo; al contrario, a  $T = 300 K$ ,  $H_{EX}$  è significativamente più basso in B ( $\approx 24 Oe$ ) e svanisce nel *pattern* C. In tutte e tre le matrici il valore di scambio incrementa col diminuire della temperatura, anche se risulta più alto nei *dots* di taglia più piccola: a  $T = 10 K$ ,  $H_{EX}$  è maggiore in C ( $\approx 1140 Oe$ ).

Come detto, questi risultati possono essere spiegati alla luce delle conoscenze acquisite sulla regione di riferimento di *IrMn/NiFe*. In quest'ottica, si può pensare che nel film continuo, a  $T = 300 K$ , gli spin AFM all'interfaccia responsabili dell'EB siano dispersi in maniera omogenea lungo tutta la zona di contatto tra la fase FM ed AFM; è ipotizzabile, quindi, come, nel passaggio ad un'area *patternata*, la stessa quantità di spin AFM *pinnati* sia distribuita tra i *dots*. Se si assume valida questa uniformità [29], solo una piccola percentuale occuperà ciascun *dot*, frazione che diminuirà sempre più con il decrescere delle sue dimensioni. La riduzione della taglia del *dot* influenza, infatti, la probabilità che questi spin si trovino ai bordi della nanostruttura a causa dell'aumento dell'estensione spaziale delle regioni di bordo. Quest'ultima osservazione condiziona anche la stabilità termica e, di conseguenza, l'azione *pinnante* dei nanograni AFM dal momento che il loro volume è probabilmente minore rispetto a quello dei grani al centro del *dot* per via del confinamento spaziale che ostacola la loro normale espansione durante il processo di crescita. Per quanto riguarda i nanograni del *bulk* ci si aspetta che siano disaccoppiati per scambio poiché la loro dimensione è paragonabile alla lunghezza di scambio ferromagnetico dell'*IrMn*, circa  $8 nm$  se si assume una rigidità di scambio  $A_{ex} \approx 10^{-6} erg/cm$  [14]. Tuttavia un eventuale debole accoppiamento tra i grani adiacenti potrebbe aumentare la stabilità termica di quelli situati all'interno del *dot* rispetto a quelli che si trovano in prossimità dei bordi.

Alla luce di queste considerazioni, a  $T = 300 K$ , il piccolo valore di  $H_{EX}$  nel *pattern* B e la sua quasi totale assenza in C possono essere spiegati assumendo che il numero effettivo di centri di *pinning* per *dot* sia troppo basso per l'insorgere di un'anisotropia unidirezionale macroscopica nella fase FM. In tutte e tre le regioni nanostrutturate è lecito supporre che, anche in presenza

di un campo piuttosto debole, gli spin AFM all'interfaccia ruotino coerentemente con quelli FM, contribuendo alla magnetizzazione; ciò è confermato dal confronto tra i valori di  $H_c$  trovati ( $\approx 90 Oe$  per A e B e  $\approx 30 Oe$  per C) ed il risultato ottenuto nel caso di un campione di  $NiFe$  non accoppiato per scambio ( $\approx 5 Oe$ ) [14]. Con il diminuire della temperatura la stabilità termica della fase AFM cresce portando sia ad un aumento del numero di spin in grado di agire come centri *pinnanti* sia della loro efficienza (l'azione polarizzante dei grani AFM del *bulk* sugli spin all'interfaccia diventa più intensa). Pertanto, come confermato sperimentalmente (figg.4.6(a) e 4.6(b)), si assiste ad un maggior incremento di scambio e di coercitività nei *dots* più piccoli.

Quando viene raggiunta la temperatura di  $100 K$ , che indicativamente segna il passaggio ad un regime collettivo, è necessario considerare l'interazione che intercorre tra gli spin che popolano questa regione. In accordo con la descrizione data da Midosch [38] per un canonico *spin glass*, una volta che si arriva alla temperatura di congelamento a partire da una temperatura maggiore, dall'insieme di spin nello stato paramagnetico si sviluppano *clusters* di spin interagenti. Queste entità sono caratterizzate da una lunghezza di correlazione che accoppia rigidamente gli spin, i quali puntano in direzioni casuali sotto l'azione di forze magnetiche competitive, e che aumenta progressivamente al diminuire della temperatura. L'insorgere di questa fase vetrosa e la conseguente correlazione tra gli spin AFM all'interfaccia spiega l'aumento di scambio osservato alle basse temperature ( $T < 100 K$ ), specialmente nei *dots* di taglia minore. In quest'ultimo caso, gli spin AFM esercitano un'azione *pinnante* più intensa sugli spin FM dal momento che il rapporto tra la lunghezza di correlazione e la dimensione del *dot* tende all'unità. L'ipotesi secondo la quale l'effetto di EB nelle nanostrutture sia governato da una dimensione caratteristica che identifica le regioni correlate nella fase AFM è stata recentemente confermata anche da *Laureti et al.* [44]. Sebbene affermino che i grani AFM siano disaccoppiati per scambio, al fine di spiegare le proprietà di EB in differenti gruppi di *nanodots Co/CoO*, ammettono l'esistenza di una lunghezza di correlazione che può variare in base alle caratteristiche geometriche e strutturali dei *dots* (spessore dello strato di *Co* o grado di ossidazione). In questo contesto, tale parametro viene identificato

con la lunghezza di correlazione tra gli spin AFM nella regione di interfaccia. Va notato che, in linea di principio, la lunghezza di correlazione in uno *spin glass* diventa infinita una volta raggiunta una struttura vetrosa completa. Detto ciò, ci si aspetta che, a  $T = 10 K$ ,  $H_{EX}$  tenda ad un medesimo valore per le tre regioni; invece, tale ipotesi non è verificata sperimentalmente (fig.4.6(a)). La ragione di questa discrepanza può essere imputata alla disomogeneità intrinseca della regione di interfaccia sia da un punto di vista strutturale che magnetico, conducendo così all'impossibilità di raggiungere uno stato vetroso "infinitamente esteso" anche a temperature criogene. Inoltre, l'applicazione di un campo magnetico fino a  $5 kOe$ , durante l'acquisizione dei cicli a bassa temperatura, può rompere questo stato vetroso e limitare ulteriormente l'estensione della lunghezza di correlazione; una conferma di questa ipotesi è l'alto valore di  $H_c$  (fig.4.6(b)) che rivela come, nonostante l'elevata anisotropia effettiva degli spin AFM nel regime vetroso, alcuni di essi siano ancora trascinati dagli spin FM durante l'inversione della magnetizzazione.

# Capitolo 5

## Simulazioni micromagnetiche

In generale, con il termine simulazione si indica lo studio del comportamento magnetico di un sistema mediante la sua riproduzione in un contesto controllabile. Si crea, in sintesi, un modello costituito da equazioni che descrivono le relazioni tra le componenti oggetto di analisi ed il loro legame con il suo funzionamento; l'obbiettivo è quello di effettuare “esperimenti virtuali” che riproducano in maniera sufficientemente accurata il comportamento che avrebbe il sistema reale.

Le simulazioni micromagnetiche sono state realizzate mediante il software *OOMMF* (*Object Oriented MicroMagnetic Framework*) sviluppato alla *National Institute of Standards and Technology* [54]; tale programma effettua una integrazione numerica dell'equazione di Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) [55, 56] per predire l'evoluzione temporale della magnetizzazione e la distribuzione degli spin all'interno di un FM.

Le prove eseguite costituiscono un forte supporto a quanto scritto nel Cap.4 e si propongono sia di replicare il comportamento magnetotermico del sistema accoppiato per scambio sia di confermare gli andamenti sperimentali ottenuti per i campioni analizzati. In quest'ottica, sono stati effettuati due tipi di simulazioni. Il primo è legato all'ipotesi di come un incremento della quantità di spin AFM *pinnanti* porti ad un aumento del valore di scambio, il secondo tipo di simulazione ha lo scopo, invece, di mostrare l'andamento di  $H_{EX}$  in funzione della lunghezza di correlazione tra i centri di *pinning*.

## 5.1 L'equazione di Landau-Lifshitz-Gilbert

Micromagnetismo è il termine coniato da Brown per la procedura con la quale si cerca di predire da principi primi la distribuzione degli spin in un FM di dimensioni finite. In un FM, sottile ed infinitamente esteso, la magnetizzazione spontanea si allinea parallelamente all'asse lungo e si forma, di conseguenza, una struttura a singolo dominio. In un FM di taglia finita (si veda il Cap.1) si formano, invece, poli liberi e nasce così un'energia di origine magnetostatica ( $E_{ms}$ ). Al fine di ridurre  $E_{ms}$ , la distribuzione degli spin si altera ed il loro allineamento lungo una stessa direzione viene meno. Come risultato entrano in gioco altre forme di energia come quella di scambio ( $E_{ex}$ ) e quella magneto-cristallina ( $E_{mc}$ ). La configurazione stabile è determinata minimizzando l'energia totale

$$E_{TOT} = E_{ms} + E_{ex} + E_{mc} . \quad (5.1)$$

Con l'applicazione di un campo magnetico esterno, a tale equazione si aggiunge un ulteriore termine, detto di Zeeman ( $E_z$ ), che rappresenta l'energia che i dipoli magnetici hanno in presenza di un campo magnetico esterno  $H_{ext}$ . Il campo magnetico effettivo agente su di un FM può essere scritto come

$$\mathbf{H}_{eff} = -\frac{1}{V} \nabla_{\mathbf{M}} E_{TOT} = H_{ms} + H_{ex} + H_{mc} + H_z . \quad (5.2)$$

L'evoluzione della magnetizzazione nel tempo e nello spazio, sotto l'azione di un campo locale  $\mathbf{H}_{eff}(\mathbf{r}, t)$ , è descritta dall'equazione LLG [57]

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\frac{\gamma}{1 + \alpha^2} (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) - \frac{\alpha\gamma}{(1 + \alpha^2)M_s} \mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) , \quad (5.3)$$

ove  $\gamma = \frac{g|e|\hbar}{2m_e}$  è detto rapporto giromagnetico di Gilbert e  $\alpha$  rappresenta una costante fenomenologica di smorzamento, la quale racchiude tutti i meccanismi di rilassamento. Il primo termine corrisponde al momento torcente che il campo magnetico esercita sulla magnetizzazione e descrive la precessione di Larmor di  $\mathbf{M}$  attorno ad  $\mathbf{H}_{eff}$ , il secondo, invece, rappresenta la tendenza a smorzare questo moto fino ad un allineamento tra i vettori di magnetizzazione e di campo. Si pensa che, fisicamente, il meccanismo di smorzamento sia associato all'accoppiamento tra gli spin e gli altri gradi di libertà (elettronici

e fononici), nonché ad impurità e difetti [58].

Come detto, la (5.3) ha un carattere dissipativo e non conserva l'energia, malgrado ciò soddisfa un assunto fondamentale della teoria del micromagnetismo, quale la conservazione del modulo di  $\mathbf{M}$ . In particolare

$$\frac{d\mathbf{M}^2}{dt} = 2\mathbf{M} \left\{ \mathbf{M} \times \left[ -\frac{\gamma}{1+\alpha^2} \mathbf{H}_{eff} + \frac{\alpha\gamma}{(1+\alpha^2)M_s} (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) \right] \right\} = 0. \quad (5.4)$$

## 5.2 Risultati conseguiti su sistemi accoppiati per scambio

L'interpretazione dei risultati sperimentali (si veda il Cap.4) è stata condotta in base al comportamento magnetico assunto dai campioni studiati in tre regimi di temperatura: 1) a  $T = 300 K$  il numero effettivo di centri *pinnanti* è minore nei *dots* più piccoli (tipo C) e la loro dimensione può essere considerata uguale o simile alla taglia dei grani AFM ( $\approx 10 nm$ ) dal momento che questi ultimi si assumono non interagenti; 2) con il diminuire della temperatura sino a circa  $100 K$  il numero dei centri *pinnanti* in ogni *dot* incrementa a causa dell'indebolimento degli effetti termici; 3) sotto i  $100 K$  si instaura un regime magnetico caratterizzato dalla correlazione tra gli spin AFM all'interfaccia, la quale può essere descritta in termini di un aumento delle dimensioni dei centri di *pinning*.

Con lo scopo di confermare gli andamenti sperimentali, si è cercato di replicare, tramite il *software OOMMF*, il sistema *IrMn/NiFe* accoppiato per scambio. La struttura magnetica simulata è stata suddivisa in entità magnetiche, chiamate celle, di spessore corrispondente allo strato FM o AFM cui appartengono. Per entrambi i *layers*, il lato delle celle è stato fissato a  $10 nm$ , valore simile alla dimensione dei grani AFM<sup>1</sup>. Lo strato di *NiFe* è stato replicato per mezzo di un *layer* di spessore  $5 nm$  con magnetizzazione di

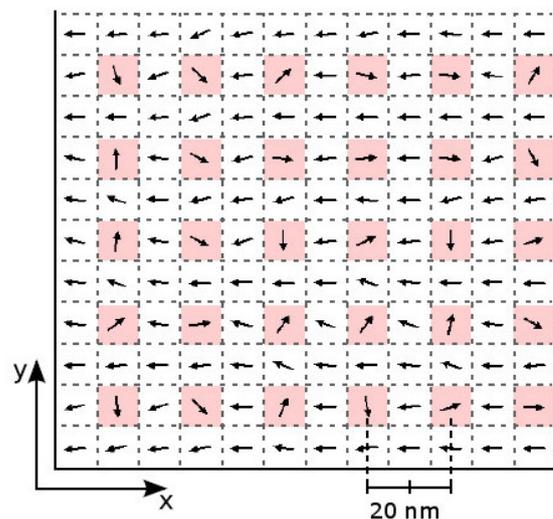
<sup>1</sup>La cella, da un punto di vista tridimensionale, può essere vista come un parallelepipedo e rappresenta sostanzialmente il minimo volume entro cui la magnetizzazione è costante.

saturatione  $M_s = 800 \text{ emu/cm}^3$ , rigidità di scambio  $A_{ex} = 13 \times 10^{-7} \text{ erg/cm}$  ed anisotropia magneto-cristallina assente. All'inizio di ogni simulazione, la direzione di magnetizzazione dello strato FM è stata scelta parallela al campo applicato così da replicare la procedura di *field cooling* (gli assi  $x$  e  $y$  definiscono le direzioni nel piano del film ed il campo esterno è applicato lungo la direzione  $x$ ). Il materiale AFM è stato invece simulato utilizzando un *layer* di spessore  $10 \text{ nm}$  dotato di anisotropia magneto-cristallina, la cui intensità  $K_{AFM}$  e direzione  $d_{AFM}$  (giacente nel piano del *layer*) sono impostate cella per cella. Si è considerata, inoltre, un'interazione di scambio all'interfaccia FM-AFM di tipo ferromagnetico con costante di accoppiamento  $A_{ex} = 10^{-7} \text{ erg/cm}$ .

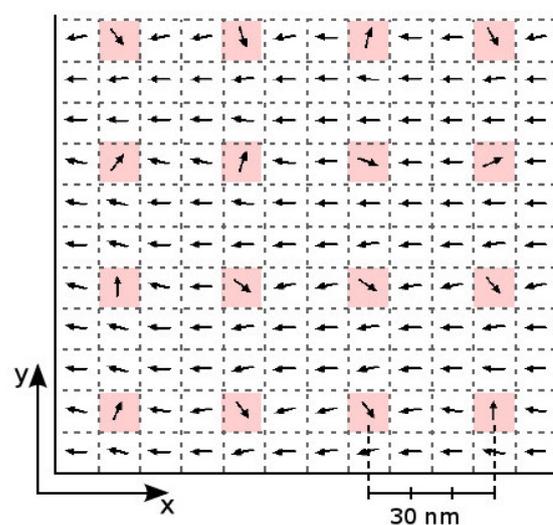
Al fine di verificare le ipotesi sull'andamento di  $H_{EX}$  in funzione della quantità dei centri *pinnanti*, è stato assegnato ad una percentuale variabile ( $p$ ) di celle AFM un alto valore di anisotropia ( $2 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ ), la cui direzione è scelta casualmente in modo da avere una proiezione positiva lungo  $x$ . L'alto valore di anisotropia è necessario per evitare la rotazione fuori piano degli spin una volta applicato il campo magnetico e per simulare la presenza di grani AFM bloccati capaci di dare luogo al meccanismo di EB. Le celle rimanenti sono state dotate di un basso valore di anisotropia ( $2 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ ) così da replicare il comportamento magnetico di alcuni grani AFM, il cui reticolo di spin ruota coerentemente con la magnetizzazione del *NiFe*.<sup>2</sup>

Le simulazioni sono state effettuate su *dots* quadrati di taglia  $1000 \text{ nm}$  (A) e  $300 \text{ nm}$  (C) ed i valori di scambio ottenuti sono il risultato della media eseguita su più repliche della stessa simulazione. Le figure 5.1(a) e 5.1(b) mostrano due porzioni del *layer* AFM del *dot* A in cui la distanza tra i centri delle celle ad alta anisotropia (evidenziate di rosa) varia da  $20 \text{ nm}$  (a) a  $30 \text{ nm}$  (b) lungo le direzioni  $x$  e  $y$ , portando rispettivamente ad una percentuale di ricoprimento del 25% e dell'11%. Questo modello garantisce una distribuzione omogenea dei centri di *pinning* ed è quindi stato adottato per entrambi i *dots* così da avere la stessa percentuale di ricoprimento.

<sup>2</sup>Le scelte relative al valore di  $K_{AFM}$  presuppongono che le simulazioni non includano spin AFM trascinati dagli spin FM che ostacolano l'inversione della magnetizzazione e contribuiscano, in tal modo, a fenomeni coercitivi. Pertanto, i valori di  $H_c$  ottenuti dai calcoli micromagnetici sono di scarso interesse.



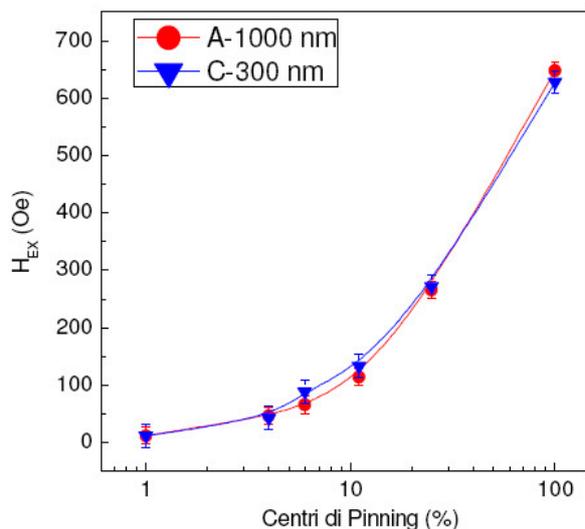
(a)



(b)

**Figura 5.1:** Modello attraverso il quale si simula la variazione di  $p$  all'interno dello strato AFM. Le frecce identificano la direzione del momento magnetico associato ad ogni cella. La situazione rappresentata è, quindi, quella relativa al raggiungimento della saturazione inversa da parte dello strato di  $NiFe$ : le frecce all'interno delle celle AFM a bassa anisotropia puntano lungo la direzione negativa dell'asse  $x$ . La magnetizzazione associata alle celle pinnanti non è influenzata dal campo magnetico applicato ed una eventuale saturazione dello strato AFM può essere raggiunta soltanto con l'applicazione di campi di svariate migliaia di  $Oe$ .

La figura 5.2 mostra la variazione del campo di scambio in funzione della quantità delle celle ad alta anisotropia.



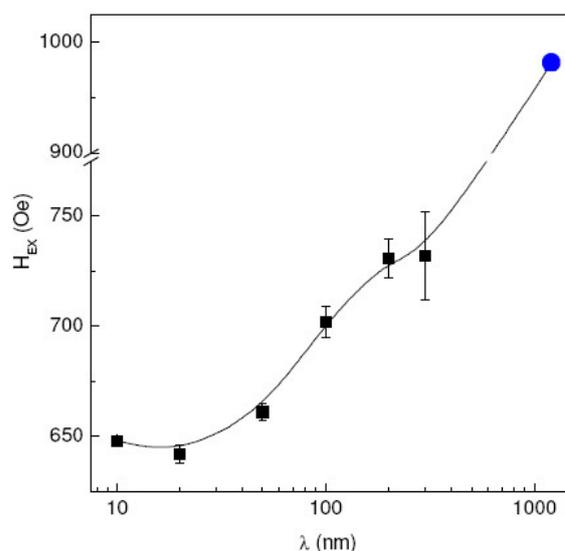
**Figura 5.2:** Dipendenza di  $H_{EX}$  dalla percentuale di centri pinnanti ottenuta simulando il comportamento magnetico di un singolo dot quadrato di dimensione 1000 nm (tipo A) e 300 nm (tipo C). Le linee continue costituiscono una guida per l'occhio.

Lo scambio, come logico, decresce con la riduzione della frazione di centri *pinnanti*, passando da un valore superiore a 600 Oe sino a circa 10 Oe quando  $p$  è uguale all'1%; questo andamento è molto simile per i due tipi di *dots*, confermando come sia indipendente dalle loro dimensioni. Come si è ipotizzato nel Cap.4, i bassi valori di  $H_{EX}$ , ottenuti a  $T = 300 K$  nei *dots* di taglia minore, possono essere compresi se si considera come la percentuale di centri *pinnanti* diminuisca con la riduzione delle dimensioni; in quest'ottica, in base alle simulazioni, il valore di  $H_{EX}$  misurato nel *dot* di tipo A ( $\approx 115 Oe$ ) è consistente con una frazione di centri *pinnanti* di circa il 10% mentre la quasi totale assenza nel *dot* di tipo C indica la presenza di una percentuale inferiore all'1%. Tali risultati sembrano ragionevoli anche alla luce delle ricerche condotte da Ohldag *et al.* [29]. Per di più, gli andamenti

di fig.5.2 supportano l'idea di come un aumento di  $H_{EX}$  col diminuire della temperatura sia da imputare ad un contemporaneo incremento della frazione di centri *pinnanti*.

In seguito, per verificare se e come l'effetto di EB sia influenzato dalla comparsa di correlazione tra i centri di *pinning* nel regime a bassa temperatura, si è proceduto ad effettuare simulazioni variando la taglia delle celle ad alta anisotropia. La situazione che corrisponde all'assenza di correlazione è stata realizzata dividendo l'intera area del *dot* in celle quadrate di lato  $10\text{ nm}$  ed assegnando a ciascuna un valore di anisotropia  $K_{AFM} = 2 \times 10^7\text{ erg/cm}^3$  ed una direzione  $d_{AFM}$  casuale, tale da avere una proiezione positiva lungo  $x$ . La costante di scambio  $A_{ex}$  all'interfaccia FM-AFM presenta lo stesso valore fissato inizialmente e, quindi, questo tipo di simulazione coincide con il caso studiato in precedenza in cui la percentuale  $p$  corrispondeva al 100%. Per replicare l'effetto di un aumento della lunghezza di correlazione ( $\lambda$ ) è stato effettuato lo stesso tipo di calcolo per valori crescenti della dimensione ( $D$ ) della cella: 20, 50, 100, 200 e  $300\text{ nm}$ . Questa tipologia di prove, nonostante il potenziale interesse, non è stata condotta per grandi valori di  $\lambda$  o per *dots* di piccola taglia dal momento che, quando il rapporto  $\lambda/D$  è vicino all'unità, questo metodo non produce risultati affidabili e riproducibili. In questo senso, si è deciso di aumentare la dimensione del *dot* A sino a  $1200\text{ nm}$  così da poter riempire la sua area con un numero intero di celle *pinnanti*. Il problema principale è dovuto alla difficoltà intrinseca di simulare una struttura a vetro di spin pensata come un insieme di spin soggetti ad interazioni magnetiche competitive e sottoposti ad un'alta anisotropia locale che modifica casualmente intensità e direzione su una scala paragonabile od addirittura inferiore rispetto a quella dei grani AFM. Nel caso specifico di un sistema *IrMn/FeNi* accoppiato per scambio, gli spin AFM all'interfaccia si dispongono in una configurazione tale da minimizzare l'energia di interazione, causata sia dagli spin FM sia da quelli appartenenti al *bulk* AFM. Da questo punto di vista, anche la scelta di  $A_{ex}$  è una semplificazione dal momento che tale valore sostituisce una distribuzione di costanti di accoppiamento dovuta al disordine strutturale all'interfaccia [43]. Bisogna tenere presente, poi, come le condizioni iniziali del calcolo non siano ben definite e presentino un certo grado di aleatorietà dovuto alla generazione casuale degli

assi di anisotropia. Se il rapporto  $\lambda/D$  è piccolo, ossia se il numero di celle *pinnanti* che compongono lo strato AFM è grande, l'effetto di media indotto dalla fase FM dura non dovrebbe far dipendere troppo il risultato dalla configurazione iniziale ed il carattere casuale e locale di una tipica fase *spin glass* può essere riprodotto con buoni risultati. Viceversa, se  $\lambda \approx D$ , il che equivale ad una riduzione delle celle *pinnanti* all'interno dello strato AFM, il risultato finale è significativamente influenzato dalle condizioni iniziali e le caratteristiche locali e casuali dell'anisotropia vengono meno. La figura 5.3 mostra l'andamento del valore di scambio in funzione della lunghezza di correlazione magnetica.



**Figura 5.3:** Dipendenza di  $H_{EX}$  dalla lunghezza di correlazione magnetica tra i centri di pinning ottenuta simulando il comportamento magnetico di un dot quadrato di dimensione 1200 nm. Il valore contrassegnato con un punto di colore blu identifica il risultato conseguito per  $\lambda = 1200$  nm. In questo caso, non è stata effettuata alcuna replica e non è stata disegnata nessuna barra di errore (si veda il testo per maggiore dettaglio). La linea continua costituisce una guida per l'occhio.

Il risultato delle simulazioni mostra come il valore di scambio incrementi da circa 650 Oe a circa 730 Oe quando la dimensione delle regioni correlate cre-

sce da  $10\text{ nm}$  a circa  $300\text{ nm}$ , indicando un aumento coerente con i risultati sperimentali ottenuti. Infine, nello stesso grafico, è riportato anche il caso  $\lambda = 1200\text{ nm}$  che dà origine al valore più alto di  $H_{EX}$ . Benché il dato sia coerente con le previsioni, è necessario sottolineare come esso sia dovuto ad un procedimento artificioso: il calcolo è stato effettuato forzando l'anisotropia dello strato AFM a giacere in direzione parallela alla magnetizzazione del *NiFe*. Se fosse stata impostata una direzione di anisotropia perpendicolare rispetto al vettore di magnetizzazione non si sarebbe osservato nessuno spostamento del ciclo e quindi nessun effetto di EB.



# Conclusioni

L'intero lavoro di tesi si è focalizzato principalmente sullo studio del meccanismo di *exchange bias* nel sistema *IrMn/NiFe*, mediante magnetometria MOKE. L'effetto Kerr magneto-ottico risulta molto efficace per indagini su materiali, come film sottili e nanostrutture, contraddistinti da un basso segnale di magnetizzazione e permette di caratterizzare differenti strutture cresciute sul medesimo substrato, grazie alla possibilità di sondare localmente le proprietà magnetiche del campione.

L'analisi magnetotermica, condotta su un film continuo e su *patterns* di *dots* quadrati di differenti dimensioni (1000, 500 e 300 nm), è stata supportata da indagini strutturali di microscopia elettronica in trasmissione ad alta risoluzione. Tali ricerche hanno evidenziato che il *bulk* dello strato di *IrMn* è formato da nanograni con una dimensione media di circa 10 nm e che la fase *NiFe* è caratterizzata da una bassa cristallinità; per di più, esse hanno confermato l'esistenza di una regione AFM (di spessore 2-3 nm) strutturalmente disordinata all'interfaccia tra la fase FM ed il *bulk* AFM. Questi studi hanno costituito un importante supporto per la costruzione di un modello che spiegasse in maniera approfondita e dettagliata le proprietà magnetiche dei campioni analizzati. In particolare, l'evoluzione termica di campo di scambio e coercitività è stata ricondotta all'esistenza di un regime collettivo congelato nel quale si trovano gli spin AFM all'interfaccia ed alla sua successiva rottura sopra una temperatura critica, fissata schematicamente a  $T = 100 K$ . Sotto questa temperatura, l'accoppiamento di scambio tra l'*IrMn* ed il *NiFe* è governato dagli spin AFM all'interfaccia, correlati magneticamente e soggetti

ad un'alta anisotropia magneto-cristallina, e, di conseguenza, si riscontrano alti valori di  $H_{EX}$  e  $H_c$ . A  $T > 100 K$ , invece, l'accoppiamento di scambio è dovuto a quella frazione di spin AFM all'interfaccia polarizzata magneticamente dai nanograni AFM del *bulk*, assunti non interagenti.

Il confinamento spaziale, identificato col passaggio dal film continuo ai sistemi nanostrutturati, influenza notevolmente il meccanismo di *exchange bias*. A  $T = 300 K$  il basso valore di  $H_{EX}$  nei *dots*  $500 \times 500 nm^2$ , rispetto a quello riscontrato nei *dots*  $1 \times 1 \mu m^2$ , e la sua quasi totale assenza nei *dots*  $300 \times 300 nm^2$  indicano un calo della percentuale dei centri *pinnanti* con la riduzione della dimensione del *dot*, riconducibile ad una diminuzione della stabilità termica dei nanograni situati ai bordi dei *dots*. Di conseguenza, dal momento che la stabilità termica dei nanograni AFM aumenta col diminuire della temperatura, comportando un incremento del numero di centri AFM di *pinning* e della loro forza *pinnante*, i valori di scambio e di coercitività aumentano maggiormente nei *dots* di taglia più piccola. Gli alti valori di  $H_{EX}$  e  $H_c$ , riscontrati a basse temperature (sotto i  $100 K$ ) in tutti i campioni (film e *dots*) e specialmente nei *dots*  $300 \times 300 nm^2$ , evidenziano l'ingresso degli spin AFM all'interfaccia in un regime collettivo congelato. La diminuzione della temperatura comporta, ora, un'intensificazione della loro azione *pinnante* ed un'estensione della loro correlazione, la cui dimensione diventa comparabile con quella del *dot*.

Questo modello trova riscontro nelle simulazioni effettuate tramite il software *OOMMF* (*Object Oriented MicroMagnetic Framework*) su sistemi *IrMn/NiFe* accoppiati per scambio. Da un lato esse confermano come l'aumento di  $H_{EX}$  sia dovuto ad un incremento della percentuale dei centri *pinnanti* (assunti di dimensioni uguali alla taglia media dei nanograni AFM) dall'altro dimostrano come l'espansione della correlazione tra i centri ad alta anisotropia conduca ad un ulteriore aumento di  $H_{EX}$ . Le simulazioni hanno costituito un importante supporto alla trattazione anche se è necessario tenere presente come l'aumento del numero di centri AFM *pinnanti* e l'incremento della lunghezza di correlazione si verifichino simultaneamente quando la temperatura critica viene raggiunta a partire da una temperatura maggiore e, poi, con un'ulteriore diminuzione sino a  $T = 10 K$ .

In conclusione, si può affermare che, combinando i metodi di litografia elet-

tronica e di deposizione per *sputtering*, i risultati strutturali e sperimentali ed i risultati micromagnetici, questo lavoro è riuscito a fornire una descrizione dettagliata ed esauriente della dipendenza termica del fenomeno di *exchange bias* e degli effetti del confinamento spaziale in sistemi *IrMn/NiFe* accoppiati per scambio.

Vorrei ringraziare la Dott.ssa Lucia Del Bianco (Università di Bologna) ed il Dott. Federico Spizzo (Università di Ferrara) per avermi dato l'opportunità di svolgere la tesi con loro e per l'aiuto durante la stesura della medesima, Edgar Bonfiglioli (Università di Ferrara) per la sua assistenza durante il periodo di analisi dati e di simulazioni micromagnetiche, la Dott.ssa Annamaria Gerardino (Istituto di Fotonica e Nanotecnologie CNR-IFN di Roma) per la preparazione dei *patterns* di *nanodots* discussi nel Cap.4 ed, infine, il Dott. Gianni Barucca (Università Politecnica delle Marche) per l'analisi TEM. Un grazie a tutti voi.



# Bibliografia

- [1] L. Néel, *Ann. Phys. (France)* 1 (1967) **61**.
- [2] P. Weiss, *Compt. Rend.* **143**, 1136 (1906); P. Weiss, *J. de Phys.* **6**, 661 (1907).
- [3] A. Aharoni, *Introduction to the Theory of Ferromagnetism* (Oxford University Press, 2000).
- [4] B. D. Cullity and C. D. Graham, *Introduction to Magnetic Materials* (John Wiley & Sons, Inc., 2009).
- [5] S. Chikazumi, *Physics of Ferromagnetism* (Oxford University Press, 1997).
- [6] R. C. O'Handley, *Modern Magnetic Materials* (John Wiley & Sons, Inc., 1999).
- [7] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Phil. Trans. Roy. Soc.* **A240**, 599 (1948).
- [8] J. Nogués, J. Sort, V. Langlais, V. Skumryev, S. Suriñach, J. S. Muñoz, and M. D. Baró, *Phys. Rep.* **422**, 65 (2005).
- [9] J. Nogués and Ivan K. Schuller, *J. Magn. Magn. Mater.* **192**, 203 (1999).
- [10] M. S. Lund, W. A. A. Macedo, K. Liu, J. Nogués, I. K. Schuller, and C. Leighton, *Phys. Rev. B* **66**, 054422 (2002).

- 
- [11] M. Kiwi, *J. Magn. Magn. Mater.* **234**, 584 (2001).
- [12] L. Néel, *C. R. Acad. Sci., Paris Serie C* **264** (1967) 1002.
- [13] T. Ambrose and C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1743 (1996).
- [14] F. Spizzo, M. Tamisari, E. Bonfiglioli, and L. Del Bianco, *J. Phys.: Condens. Matter* **25**, 386001 (2013).
- [15] C. Schlenker, *Phys. Stat. Sol.* **28** (1968) 507.
- [16] C. Schlenker, D. Paccard, *J. de Phys. (France)* **28** (1967) 611.
- [17] G. R. Fowles, *Introduction to Modern Optics* (Dover Publications, Inc., 1989).
- [18] Chun-Yeol You and Sung-Chul Shin. Derivation of simplified analytic formulae for magneto-optical kerr effects. *Appl. Phys. Lett.*, 69:1315, (1996).
- [19] Z.Q.Qiu and S.D.Bader. Surface magneto-optic kerr effect. *Rev. of Scientific Instruments*, 71:1243, 2000.
- [20] A.Zvezdin and V.Kotov. *Modern magnetooptics and magneto-optical materials*. Taylor & Francis Group, New York, 1997.
- [21] V. Antonov, B. Harmon and A. Yaresko. *Electronic Structure and Magneto-Optical properties of Solids*. Kluwer Academic Publishers, Moscow, 2004.
- [22] C.-Y. You, S.-C. Shin, *J. Appl. Phys.*, **84**, 541 (1998).
- [23] P. Vavassori, *Appl. Phys. Lett.*, 77, 1605 (2000).
- [24] R. M. Osgood III, *Hysteresis Loops in Anisotropic Thin Films* (PhD Thesis, Stanford University, 1996).
- [25] M. A Lieberman, A. J. Lichtenberg. *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing* (John Wiley & Sons, Inc., 1994).
- [26] Feldman, L. C., and J. W. Mayer (1986), *Fundamentals of Surface and Thin Film Analysis*, North-Holland, New York.

- [27] Winters, H. F., and J. W. Coburn (1992), *Surface Sci. Rep.* **14**, 161.
- [28] A. P. French (1971), *Vibrations and Waves*, W. W. Norton & Company Inc. New York.
- [29] H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, E. Arenholz, S. Maat, A.T. Young, M. Carey, and J. Stoöhr, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 91, No. 24, 4 July 2003.
- [30] V. Baltz, J. Sort, B. Rodmacq, B. Dieny, and S. Landis, *Phys. Rev. B* **72**, 104419 (2005).
- [31] V. Baltz, J. Sort, B. Rodmacq, B. Dieny, and S. Landis, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 84, No. 24, 14 June 2004.
- [32] K. Liu, J. Nogués, C. Leighton, H. Masuda, K. Nishio, I. V. Roshchin, and I. K. Schuller, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4434 (2002).
- [33] V. Skumryev, S. Stoyanov, Y. Zhang, G. Hadjipanayis, D. Givord, and J. Nogués, *Nature (London)* **423**, 850 (2003).
- [34] A. Nemoto, Y. Otani, S. G. Kim, K. Fukamichi, O. Kitakami, and Y. Shimada, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 4026 (1999).
- [35] K. Liu, S. M. Baker, M. Tuominen, T. P. Russell, and I. K. Schuller, *Phys. Rev. B* **63**, 060403 (2001).
- [36] M. Fraune, U. Rüdiger, G. Güntherodt, S. Cardoso, and P. Freitas, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3815 (2000).
- [37] Y. Shen, Y. Wu, H. Xie, K. Li, J. Qiu, and Z. Guo, *J. Appl. Phys.* **91**, 8001 (2002).
- [38] J. A. Mydosh, *Spin Glasses: An Experimental Introduction* (Taylor & Francis, 1993).
- [39] C. L. Dennis, R. P. Borges, L. D. Buda, U. Ebels, J. F. Gregg, M. Hehn, E. Jouguelet, K. Ounadjela, I. Petej, I. L. Prejbeanu, and M. J. Thornton, *J. Phys.: Condens. Matter* **14**, R1175 (2002).
- [40] Le immagini al SEM di figura 4.1(a) e 4.1(b) sono state realizzate all'Istituto di Fotonica e Nanotecnologie (CNR-IFN) di Roma.

- 
- [41] V. Baltz , J. Sort , S. Landis , B. Rodmacq and B. Dieny 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 117201.
- [42] E. Bonetti, L. Del Bianco, D. Fiorani, D. Rinaldi, R. Caciuffo, and A. Hernando, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2829 (1999).
- [43] Coey J M D 1978 *J. Appl. Phys.* **49**, 1646.
- [44] S. Laureti, S.Y. Suck, H. Haas, E. Prestat, O. Bourgeois, D. Givord, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 077205 (2012).
- [45] L. Del Bianco , F. Boscherini , A. L. Fiorini , M. Tamisari , F. Spizzo , M. Vittori Antisari , E. Piscopiello 2008 *Phys. Rev. B* **77**, 094408.
- [46] A. Hernando, E. Navarro, M. Multigner, A. R. Yavari, D. Fiorani, M. Rosenberg, G. Filoti, and R. Caciuffo, *Phys. Rev. B* **58**, 5181 (1998).
- [47] E. Winkler, R. D. Zysler, M. Vasquez Mansilla, D. Fiorani, *Phys. Rev. B* **72**, 132409 (2005).
- [48] Z. Sefrioui, J. L. Menéndez, E. Navarro, A. Cebollada, F. Briones, P. Crespo, A. Hernando, *Phys. Rev. B* **64**, 224431 (2001).
- [49] J. L. Dormann, D. Fiorani, and E. Tronc, *Adv. Chem. Phys.* **98**, 283 (1997).
- [50] M. Molina-Ruiz , A. F. Lopeandia , F. Pi , D. Givord , O. Bourgeois , J. Rodriguez-Viejo 2011 *Phys. Rev. B* **83**, 140407(R).
- [51] C. Chappert , A. Fert , F. N. V. Dau 2007 *Nature Mater.* **6**, 813.
- [52] J. Mayer, L. A. Giannuzzi, T. Kamino, and J. Michael, TEM Sample Preparation and FIB-Induced Damage, *MRS BULLETIN*, Vol. 32, p. 400-407, (2007).
- [53] Le immagini al TEM di figura 4.5(a) e 4.5(b) sono state realizzate presso il Dipartimento SIMAU dell'Università Politecnica delle Marche.
- [54] M. J. Donahue and D. G. Porter, The Object Oriented MicroMagnetic Framework (OOMMF) project at ITL/NIST, <http://math.nist.gov/oommf/>.

- 
- [55] M. J. Donahue and D. G. Porter, OOMMF User's Guide, Version 1.0 **NISTIR 6376**, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg MD (Sept 1999).
- [56] M. J. Donahue, D. G. Porter, OOMMF User's Guide, Version 1.2 alpha 3, (NIST, Gaithersburg MD, 2002).
- [57] L. Landau, E. Lifschitz, Phys. Z. Sowjetunion **8**, 153 (1935).
- [58] J. Miltat, G. Albuquerque, A. Thiaville, *Spin dynamics in confined magnetic structures I*, B. Hillebrands, K. Ounadjela (Eds.), Springer (2002).