

UNIVERSITÀ CATTOLICA DEL SACRO CUORE
SEDE DI BRESCIA
FACOLTÀ DI SCIENZE MATEMATICHE, FISICHE E NATURALI
CORSO DI LAUREA SPECIALISTICA IN FISICA



**Microscopia con radiazione X e dinamiche
di magnetizzazione di nanostrutture
ordinate ferromagnetiche**

Laureando:
Enrico Paletti

Relatore:
Fulvio Parmigiani

Correlatore:
Gabriele Ferrini

ANNO ACCADEMICO 2005/2006

Indice

Introduzione	2
1 I nanodots	7
1.1 Modalità di realizzazione dei nanodots	7
1.2 Sistemi magnetici confinati	8
2 Tecniche sperimentali	14
2.1 Spettroscopia di assorbimento di raggi X	14
2.2 Dicroismo magnetico circolare di raggi X	15
2.3 Microscopia in modalità <i>full field</i> (<i>TXM</i>) e in modalità <i>scanning</i> (<i>STXM</i>)	16
2.4 Microscopia a forza atomica (<i>AFM</i> , Atomic Force Microscopy)	19
2.5 Effetto Kerr magneto-ottico (<i>MOKE</i> , Magneto Optical Kerr Effect)	20
2.5.1 Le tre geometrie dell'effetto Kerr magneto-ottico . . .	21
2.5.2 Origine dell'effetto magneto-ottico	22
2.5.3 Modello classico per l'effetto magneto-ottico	24
2.5.4 Descrizione quantistica dell'effetto magneto-ottico . .	25
3 Apparati sperimentali	28
3.1 La radiazione di sincrotrone	28
3.1.1 L'anello di luce di sincrotrone Elettra di Trieste	31
3.1.2 BACH, <i>the Beamline for Advanced diCHroism</i>	32
3.1.3 Descrizione della stazione sperimentale per microscopia con radiazione X	34
3.2 Apparato sperimentale per misure di magneto-ottica	42

3.2.1	Sorgente laser	42
3.2.2	Descrizione set-up sperimentale per misure MOKE . .	43
3.2.3	Descrizione set-up sperimentale per misure TR-MOKE	50
4	Risultati e discussione dati	55
4.1	Risultati ed analisi dei dati di microscopia	55
4.1.1	Procedure di preparazione del campione	55
4.1.2	Acquisizione delle immagini in modalità full field . . .	56
4.1.3	Acquisizione delle immagini in modalità full field con cambio di polarizzazione e di energia	57
4.1.4	Limitazioni e problemi	59
4.1.5	Analisi dei dati di microscopia	60
4.1.6	Discussione dei dati di microscopia	61
4.2	Caratterizzazione dei campioni tramite microscopia <i>AFM</i> . .	62
4.3	Risultati ed analisi dei dati di magneto-ottica	64
4.3.1	Procedure di preparazione del campione	64
4.3.2	Acquisizione dati MOKE	65
4.3.3	Analisi e discussione dei dati MOKE	66
4.3.4	Acquisizione dati TR-MOKE	69
4.3.5	Analisi e discussione dei dati TR-MOKE	69
5	Conclusioni	76
	Bibliografia	79
	Ringraziamenti	82

Introduzione

Negli ultimi anni, il magnetismo su scala microscopica si è rivelato di grande interesse scientifico e ha dimostrato di possedere notevoli potenzialità nel campo delle applicazioni tecnologiche, quali lo sviluppo della tecnologia di *storage* magnetico e della spintronica.

I recenti sviluppi nel campo della litografia elettronica ad alta risoluzione spaziale e la conseguente capacità di fabbricare dispositivi su scala nanometrica, hanno aperto la strada allo studio di sistemi magnetici confinati. In tali sistemi due o più dimensioni sono geometricamente limitate a lunghezze dell'ordine dei nanometri, ed i materiali utilizzati per fabbricarli possono essere, ad esempio, metalli di transizione magnetici o composti (Fe, permalloy, supermalloy). Si parla quindi di nanomagnet, ed un caso particolare è rappresentato dai cosiddetti *nanodots*, ossia sistemi in cui il materiale viene depositato sotto varie forme (quadrati, rettangoli, dischi) e lo spessore è molto più piccolo (un ordine di grandezza) delle altre due dimensioni.

Tali sistemi risultano essere degli eccellenti campioni di laboratorio sia per testare fondamentali teoremi di magnetostatica e di micromagnetismo sia per la loro applicazione tecnologica.

Generalmente, i materiali ferromagnetici tendono a formare strutture a dominio per ridurre la loro energia magnetostatica. Tuttavia, in sistemi ferromagnetici a bassa dimensionalità, la formazione tradizionale di domini non è energeticamente favorita. Così, in un disco di materiale ferromagnetico di dimensioni micrometriche o sub-micrometriche si osservano diverse configurazioni di ordinamento magnetico, quali fase a vortice o fase a singolo dominio. In particolare, nel caso della fase a vortice, gli spin degli elettroni presenti nel sistema tendono ad allinearsi nel piano del dot con una

direzione parallela al bordo in modo da minimizzare l'energia di dipolo a scapito dell'energia di scambio. In vicinanza del centro del nanodot però, se le direzioni degli spin restassero confinate nel piano, l'angolo tra spin adiacenti aumenterebbe facendo divergere l'energia del sistema. Per minimizzare l'energia, la magnetizzazione al centro del vortice diventa quindi ortogonale alla superficie.

Queste strutture a differente ordinamento magnetico rappresentano dei candidati molto promettenti per la creazione di memorie ad alta densità e di dispositivi magneto-elettronici integrati come, per esempio, memorie magnetiche non volatili.

Solo negli ultimi anni si sono utilizzate tecniche di microscopia per evidenziare le fasi a sigolo dominio e a vortice, mentre lo studio delle dinamiche di demagnetizzazione indotte da un'eccitazione ottica, tramite misure di magneto-ottica risolte in tempo, rimane tutt'ora un campo inesplorato.

L'esistenza di zone con magnetizzazione perpendicolare alla superficie è stata predetta teoricamente e dimostrata sperimentalmente con la microscopia a forza magnetica (*MFM*, Magnetic Force Microscopy) applicata a strutture circolari di permalloy.

Sono state effettuate anche misure magneto-ottiche (*DMOKE*, Diffracted Magneto-Optical Kerr Effect) che forniscono informazioni dettagliate sulla chiralità del vortice magnetico che si sviluppa in nanostrutture magnetiche circolari. Inoltre, tramite misure di microscopia Kerr risolta in tempo (*TR-KM*, Time-Resolved Kerr Microscopy) è stato possibile studiare direttamente la dipendenza temporale delle eccitazioni magnetiche dopo un impulso ultracorto di campo, permettendo così di osservare l'evoluzione spaziale non uniforme della magnetizzazione.

Non sono stati ancora eseguiti, invece, studi relativi ai processi di demagnetizzazione dopo eccitazione ottica. In particolare, un'importante questione da risolvere è quella di comprendere come la distribuzione iniziale di elettroni caldi possa indurre una dinamica di spin associata ad una temperatura diversa da quella del reticolo e degli elettroni.

Infine, un altro campo di enorme interesse riguarda la manipolazione di spin in materiali magnetici. Recentemente, sono stati eseguiti studi su materiali trasparenti ad ordinamento magnetico eccitati da impulsi di luce ultracorti.

Si è osservato come la luce induca un moto di precessione della magnetizzazione. Tuttavia, questo moto di precessione non è ancora stato osservato in materiali ferromagnetici a causa della complessità del processo di interazione radiazione-materia.

L'obiettivo di questa tesi è effettuare misure di microscopia e misure di magneto-ottica su nanosistemi ordinati, ossia un array di nanodots circolari di permalloy ($\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$).

Nella prima parte del lavoro, abbiamo utilizzato microscopia con radiazione di sincrotrone, per ottenere immagini, attraverso assorbimento di raggi X, in cui fosse presente un contrasto dovuto alle singole specie chimiche. Queste misure sono state realizzate tramite un microscopio a raggi X (*Twin-Mic*, Twin X-ray Microscope), installato presso la beamline BACH del sincrotrone Elettra (Trieste), operante in modalità *full field* (*TXM*, Transmission X-ray Microscopy) con radiazione monocromatizzata ad un'energia variabile attorno alla soglia di assorbimento L_3 del Fe (707 eV).

Nella seconda parte del lavoro, abbiamo realizzato misure di magneto-ottica presso l'Università Cattolica del Sacro Cuore (Brescia). In un primo momento abbiamo eseguito misure di magneto-ottica (*MOKE*, Magneto Optical Kerr Effect) per la caratterizzazione delle proprietà magnetiche statiche dei campioni. In particolare, abbiamo ottenuto un ciclo di isteresi la cui forma dà informazioni sullo stato magnetico e sul meccanismo secondo cui la magnetizzazione, entro ciascun nanodot, varia sotto l'azione di un campo magnetico esterno. In seguito, abbiamo effettuato misure di magneto-ottica risolte in tempo (*TR-MOKE*, Time-Resolved Magneto Optical Kerr Effect) per misurare la variazione del ciclo di isteresi dopo l'eccitazione con impulsi laser ultracorti.

I campioni utilizzati sono stati prodotti con litografia elettronica ad alta risoluzione in modo da ottenere rispettivamente nanodots circolari di permalloy di diametro 500 nm e spessore 25 nm per le misure di microscopia e di diametro 600 nm e spessore 50 nm per le misure di magneto-ottica, con una spaziatura tra due dots adiacenti di 1 μm .

Questa caratterizzazione morfologica è stata realizzata tramite misure di microscopia a forza atomica (*AFM*, Atomic Force Microscopy) presso il lab-

oratorio di chimica per le tecnologie (Università degli Studi di Brescia).

La tesi si articola nel seguente modo: nel primo capitolo si descrivono in dettaglio le tecniche di realizzazione dei campioni e viene presentata la fisica di sistemi magnetici confinati; il secondo e il terzo capitolo affrontano rispettivamente la descrizione delle tecniche e degli apparati sperimentali utilizzati. Nel quarto capitolo si mostrano i risultati ottenuti e si procede ad una loro discussione, mentre il quinto capitolo conclude il lavoro di tesi con un breve accenno agli sviluppi sperimentali futuri.

Capitolo 1

I nanodots

1.1 Modalità di realizzazione dei nanodots

I nanodots sono sistemi realizzati con tecniche di litografia elettronica e costituiti tipicamente da permalloy ($\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$) o supermalloy ($\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{14}\text{Mo}_5$), ossia delle leghe di materiali ferromagnetici, depositati su un substrato di silicio.

Dal momento che la fase di deposizione del materiale ferromagnetico avviene in un momento successivo a quello della preparazione del substrato, su quest'ultimo si forma uno strato di ossido di silicio che, non essendo rimosso prima della deposizione dei dots, rimane tra i dots stessi ed il substrato.

Lo strato di ossido di silicio crea una interfaccia a conducibilità termica molto bassa tra i dots ed il substrato. Come vedremo più avanti, tale strato funge da scudo termico, e rallenta il trasferimento di calore dai dots al substrato.

Il processo di produzione dei campioni è costituito da diversi passi, che possono essere brevemente riassunti come segue.

Il primo passo consiste nel disegnare, mediante un processo di litografia elettronica, la forma dei dots su uno strato di *photoresist* depositato sul 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*. Dopo questa prima fase, è necessario sviluppare l'incisione, ossia, rimuovere

mediante opportune soluzioni le parti di photoresist impressionate dal fascio di elettroni.

A questo punto si può procedere alla deposizione dei dots mediante evaporazione della lega di Ni-Fe in una camera ad ultra alto vuoto: il Ni ed il Fe vengono inseriti in due evaporatori e diffondono nella camera di deposizione nelle percentuali desiderate (80% Ni, 20% Fe). Gli atomi si depositano su tutto il campione con una velocità di circa $1 \text{ \AA}/\text{s}$, penetrando anche nelle zone dove è stato rimosso il photoresist, e legandosi al substrato, formando appunto i dots.

Infine, attraverso una tecnica detta di *lift-off*, viene rimosso il photoresist rimasto (compreso il materiale che vi si è depositato sopra), per cui sul substrato di silicio rimangono solo i dots della forma desiderata.

Occorre notare, inoltre, che il substrato dei campioni utilizzati per le misure di microscopia in trasmissione è stato sottoposto ad un processo di *etching* chimico ancor prima della deposizione dei dots.

Nonostante la litografia elettronica sia un processo relativamente lento, si tratta ugualmente di una tecnica molto pratica e conveniente per la fabbricazione di matrici di elementi di dimensioni nanometriche, le cui dimensioni e distanze reciproche possono essere scelte, entro alcuni limiti, con relativa facilità. In questo modo si possono costruire aree patternate di medie dimensioni (al massimo 1 cm^2) nelle quali le proprietà geometriche e strutturali sono costanti.

1.2 Sistemi magnetici confinati

Le dimensioni dei nanodots sono di fondamentale importanza per il loro studio in quanto le proprietà magnetiche cambiano al variare della larghezza (dell'ordine delle centinaia di nm), dello spessore (dell'ordine delle decine di nm) e del rapporto tra i due. Tipicamente si realizzano nanodots di forma circolare o quadrata, e in entrambi i casi si possono avere fasi di magnetizzazione a vortice, come mostrato nelle seguenti figure.

In generale, lo stato fondamentale di particelle ferromagnetiche è determinato dall'equilibrio tra l'energia magnetostatica e l'energia di scambio. Nel caso di sistemi magnetici confinati, come per esempio nanodots di diametro

pari a diverse centinaia di nanometri e spessore dell'ordine delle decine di nanometri, la configurazione stabile che minimizza l'energia magnetostatica è un vortice il cui centro si trova in corrispondenza del centro geometrico del dot. In particolare, la magnetizzazione al centro del dot è ortogonale alla superficie del dot stesso.

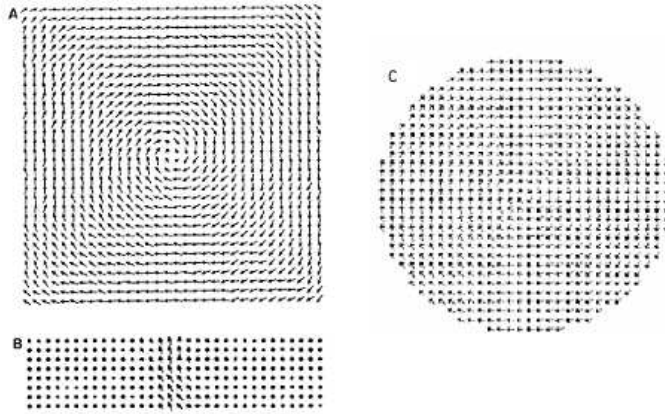


Figura 1.1: Simulazioni di strutture di spin con fase a vortice in nanodots ferromagnetici quadrati visti dall'alto (A), lateralmente (B) e in nanodots ferromagnetici circolari visti dall'alto (C) (da [1])

La forma circolare del dot si presta maggiormente a imaging con superficie ortogonale alla direzione del fascio incidente di fotoni polarizzati circolarmente (si sfrutta il dicroismo [2]), in quanto in questa configurazione è meglio distinguibile il momento magnetico ortogonale al piano del dot posto al centro del vortice. Tale momento magnetico risulta essere parallelo o antiparallelo alla direzione del vettore d'onda della luce incidente.

La forma quadrata del dot, invece, permette di avere maggiori informazioni riguardo all'effettiva presenza del vortice di spin nel piano del dot [1]. Per poter distinguere le diverse zone del vortice si inclina il campione rispetto alla direzione del fascio in modo da ottenere l'imaging delle direzioni e dei versi degli spin nel piano, verificando così, grazie all'accoppiamento con la luce polarizzata circolarmente e al conseguente contrasto, l'effettiva presenza di una magnetizzazione a vortice. Se lo spessore del dot diventa troppo piccolo, non ci sono componenti della magnetizzazione fuori dal piano, così come se lo spessore supera un certo limite. In tal caso gli strati di spin

sopra e sotto tendono a cancellarsi l'un l'altro e non viene osservata nessuna magnetizzazione perpendicolare. La configurazione a vortice, quindi, si può osservare solo se la forma, la larghezza e lo spessore dei dots sono appropriati.

Informazioni che possono essere molto utili nella scelta delle dimensioni appropriate dei nanodots, in accordo con ciò che si vuole osservare, sono stati forniti da R.P.Cowburn e altri [3] tramite misure di magneto-ottica su array di dots nanodimensionali di supermalloy. Dai profili dei cicli di isteresi è stato ricavato, infatti, un diagramma di fase sperimentale (vedi figura 1.2) relativo al diametro e allo spessore dei dot, e che identifica una fase a singolo dominio, con un'orientamento degli spin paralleli tra di loro, e una fase a vortice.

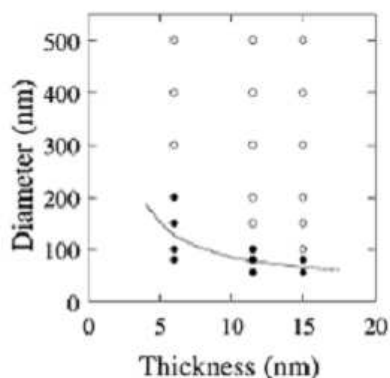


Figura 1.2: Diagramma di fase sperimentale (da [3]): la linea mostra il limite teorico tra la fase a singolo dominio (●) e la fase a vortice (○)

Dal diagramma (figura 1.2) si vede come la fase a singolo dominio si stabilizza in dots con diametro più piccolo rispetto al valore critico, cioè inferiore ai 100 nm; per diametri superiori a tale limite, invece, si può osservare la fase a vortice.

Analoghi sistemi di nanodots, con diametri superiori al valore critico, sono stati studiati da T.Shinjo e altri [1] mediante microscopia a forza magnetica (*MFM*, Magnetic Force Microscopy). Come suggerito da calcoli teorici, la dimensione dello spot con magnetizzazione perpendicolare posto al centro del vortice è molto ridotta e quindi non si riesce a distinguere questa zona dal resto della struttura a vortice con misure convenzionali di magne-

tizzazione. La MFM, invece, è in grado di ottenere risoluzioni fino a circa 30 nm, e tramite questa tecnica si ha chiara evidenza dell'esistenza di una struttura di spin a vortice con magnetizzazione perpendicolare alla superficie del dot. Il centro del vortice è posto quasi esattamente al centro geometrico del dot e la sua dimensione risulta essere dell'ordine della risoluzione laterale caratteristica di queste misure [1].

Occorre notare, inoltre, come non si sappia ancora controllare il verso del *core* della magnetizzazione, dal momento che vi è un'orientazione casuale della magnetizzazione (verso entrante o uscente rispetto alla normale della superficie del dot) nei singoli dot (vedi figura 1.3).

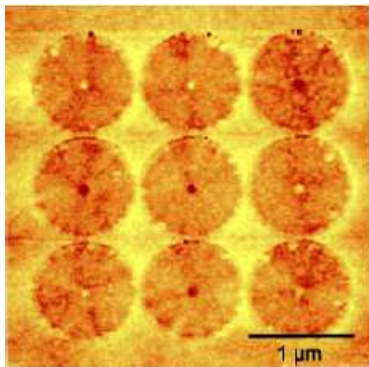


Figura 1.3: Immagine MFM di un array di dots di permalloy con fase di magnetizzazione a vortice, diametro $1 \mu\text{m}$ e spessore 50 nm. Si notano gli spot al centro dei dots dovuti alla magnetizzazione ortogonale alla superficie; tale magnetizzazione ha verso disposto in modo casuale (da [1])

Un'altra importante proprietà di nanostrutture di opportuna forma e dimensione (nel caso citato, si tratta di nanostrutture d'oro di forma triangolare con lunghezze comprese tra i 200 nm ed i 400 nm) è che tali strutture possono comportarsi come antenne riceventi, per radiazione elettromagnetica appartenente alla regione visibile. Infatti è stato provato [4, 5] che, a causa di una separazione di cariche indotta nelle nanostrutture dall'applicazione di un campo elettromagnetico con lunghezza d'onda maggiore delle dimensioni della struttura stessa, si produce un campo elettromagnetico con un ampio spettro di frequenze (luce bianca), estremamente intenso e localizzato nei pressi della nanostruttura, che si comporta quindi da amplificatore

locale di campo elettromagnetico. In base alle dimensioni di queste antenne ottiche, è possibile inoltre selezionare il range di lunghezze d'onda da amplificare. Quindi, in questo caso, attraverso nanoparticelle di forma opportuna è possibile ottenere una notevole amplificazione (~ 15 volte), a livello locale e quindi nanometrico (con dimensioni confrontabili con quelle della lunghezza d'onda utilizzata), del campo elettromagnetico.

La magnetizzazione di un array di permalloy è stata studiata tramite misure DMOKE [6, 7]. I cicli di isteresi ottenuti con il fascio di luce diffratto dalla struttura nanometrica sono proporzionali al fattore di forma magnetico o, in modo equivalente, alla componente di Fourier della magnetizzazione corrispondente al vettore del reticolo reciproco del fascio diffratto. In questo modo, i cicli di isteresi ottenuti unitamente alle simulazioni micromagnetiche effettuate, costituiscono una tecnica potente e non distruttiva per investigare i processi di magnetizzazione in particelle magnetiche di dimensioni sub-micrometriche.

Inoltre, tramite misure di microscopia Kerr risolta in tempo, è stato possibile studiare direttamente la dipendenza temporale delle eccitazioni magnetiche dopo un impulso ultracorto di campo (200 fs) [8, 9]. In particolare, si osserva come lo sviluppo dell'eccitazione magnetica sia caratterizzato da oscillazioni spaziali non uniformi che si smorzano sulla scala temporale dei picosecondi. La frequenza dei modi di oscillazione è molto vicina alla frequenza di risonanza ferromagnetica.

Non sono stati ancora eseguiti, invece, studi reattivi ai processi di eccitazione ottica di nanostrutture magnetiche tramite impulsi di luce ultracorti ed in particolare riguardo alla manipolazione di spin in materiali ferromagnetici. Recentemente, sono stati eseguiti studi su materiali trasparenti ad ordinamento magnetico eccitati da impulsi di luce ultracorti [10, 11, 12]. Si è osservato come la luce induca un moto di precessione della magnetizzazione attorno al campo effettivo. Tuttavia, questo moto di precessione non è ancora stato osservato in materiali ferromagnetici a causa della complessità del processo di interazione radiazione-materia.

Misure preliminari, utilizzando tecniche di pump&probe, sono state eseguite per studiare la variazione della riflettività e dello stato di magnetizzazione di array ordinati di nanodots magnetici sottoposti a impulsi di

luce laser ultracorti. Tali impulsi laser inducono un riscaldamento e una demagnetizzazione dei dots in circa 1 ps [13]. La dinamica di recupero dello stato di magnetizzazione è legata allo scambio di calore tra i dots stessi ed il substrato.

Inoltre, sono state evidenziate delle onde acustiche di superficie indotte dagli impulsi laser, con un periodo di circa 200 ps, sia nelle misure delle variazioni temporali di riflettività che di magnetizzazione. È stato, quindi, evidenziato un effetto magnetoelastico che consiste in una modificazione della magnetizzazione della struttura in seguito ad uno stress meccanico applicato alla struttura stessa. Tale effetto suggerisce la possibilità di controllare lo stato di magnetizzazione dei dots mediante impulsi di luce ultracorti.

Infine, i nanodots possono apportare un contributo notevole agli studi della termodinamica di strutture di dimensioni nanometriche [13]: infatti, da misure riguardanti l'andamento della riflettività e della magnetizzazione nel tempo dopo l'eccitazione, si possono estrarre informazioni sul processo di scambio di calore tra un oggetto nanometrico ed il substrato.

Il vantaggio di effettuare misure termodinamiche attraverso tecniche ottiche è fondamentale e facilmente comprensibile: al contrario dell'utilizzo di calorimetri, in questo caso è evitata nel modo più assoluto l'interazione degli strumenti di misura con la struttura, che costituisce una causa inevitabile di perturbazione del sistema e conseguentemente produce un'alterazione delle misure.

Capitolo 2

Tecniche sperimentali

2.1 Spettroscopia di assorbimento di raggi X

La spettroscopia di assorbimento di raggi X (*XAS*, X-ray Absorption Spectroscopy) con luce di sincrotrone è una tecnica che dà informazioni sulle proprietà elettroniche, magnetiche e strutturali di un composto.

In un esperimento XAS, a seguito dell'assorbimento di un fotone, un elettrone da un livello di *core* viene eccitato in uno stato non occupato. In questo senso la spettroscopia di assorbimento è una tecnica sensibile agli stati vuoti del sistema. Poichè la sezione d'urto di questo processo dipende dall'energia e dal particolare elemento coinvolto, questa tecnica permette di ottenere informazioni relative ad uno specifico elemento del sistema in esame. Sono permesse solo le transizioni tra livelli con un momento orbitale che differisce di un'unità da quello dello stato iniziale di core ($\Delta L = \pm 1$), mentre lo spin è conservato ($\Delta S = 0$). Questo stato è generalmente descritto, nell'ambito dell'approssimazione a particella singola, come lo stato iniziale al quale è stato aggiunto un elettrone non legato mentre è stato rimosso uno dal core, e considerando congelati tutti gli altri elettroni presenti nella banda di valenza. Spesso lo spettro di assorbimento è ottenuto misurando i processi di decadimento che riempiono la buca. Dalla misura di uno qualsiasi di questi processi di decadimento (per esempio la fluorescenza), e quindi quantificandolo, è possibile effettuare misure di assorbimento e risalire alla natura dell'elemento in esame. Tuttavia questa approssimazione non è più

effettuabile se si eccitano gli elettroni che stanno in uno stato dove le interazioni elettroniche sono forti, come nel caso degli orbitali 3d dei metalli, dove c'è un'alta densità elettronica che non permette di trascurare le interazioni coulombiane.

Per le misure di microscopia abbiamo sfruttato l'assorbimento di raggi X da parte degli atomi del materiale in esame. In particolare, per nanodots come quelli studiati è sufficiente utilizzare radiazione incidente monocromatizzata all'energia di assorbimento del ferro (soglia L_3 , 707 eV transizione $2p \rightarrow 3d$) per ottenere il miglior contrasto rispetto al substrato. In questo modo si sfrutta la specificità chimica del processo di assorbimento per avere immagini che riportino solamente le strutture in cui è effettivamente presente del ferro.

2.2 Dicroismo magnetico circolare di raggi X

Il dicroismo magnetico circolare di raggi X (*XMCD*, X-ray Magnetic Circular Dichroism) è una tecnica che permette di investigare le proprietà magnetiche quali i contributi orbitali e di spin al momento magnetico totale.

Il dicroismo magnetico circolare è definito come la differenza tra l'assorbimento di raggi X con polarizzazione circolare destra e con polarizzazione circolare sinistra quando viene applicato al materiale un campo magnetico parallelo al vettore d'onda della luce. Se definiamo I_{L_2} ed I_{L_3} le intensità dicroiche che derivano rispettivamente dall'eccitazione elettronica dei sottolivelli $2p_{1/2}$ (L_2) e $2p_{3/2}$ (L_3), si ha che la combinazione $(I_{L_2} + I_{L_3})$ è legata alla polarizzazione dell'orbitale mentre $(I_{L_2} - I_{L_3})$ dà una misura diretta della polarizzazione di spin. Queste due relazioni sono le cosiddette regole di somma.

In particolare, l'accoppiamento di spin-orbita per i due sottolivelli 2p ha un segno diverso per quel che riguarda il momento orbitale l ed il momento di spin s : $|l+s|$ per $2p_{3/2}$ ed $|l-s|$ per $2p_{1/2}$. Quindi nei due casi sono eccitati elettroni con spin opposto.

Per la soglia L_3 , viene eccitato, rispettivamente, un elettrone con spin-up con polarizzazione circolare destra ed un elettrone con spin-down con polarizzazione circolare sinistra.

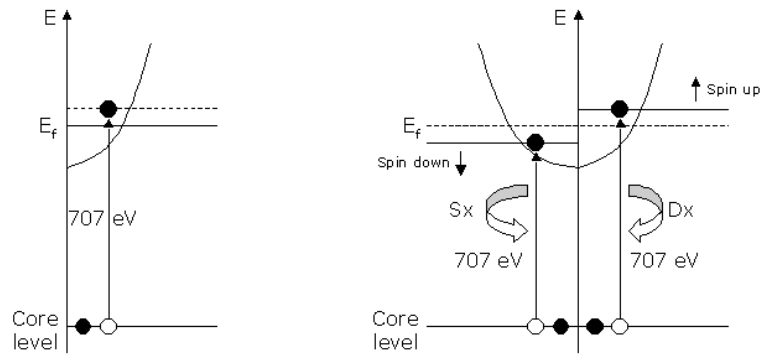


Figura 2.1: Schematizzazione del processo XAS (a sinistra) e del processo XMCD (a destra)

In questo modo, facendo la differenza tra l'immagine ottenuta con polarizzazione circolare destra e l'immagine ottenuta con polarizzazione circolare sinistra si ottiene un'informazione sulla magnetizzazione netta del sistema.

2.3 Microscopia in modalità *full field* (*TXM*) e in modalità *scanning* (*STXM*)

La tendenza attuale alla miniaturizzazione sempre più spinta ed alla realizzazione di strutture nanometriche ha come ovvia conseguenza la ricerca di metodi diagnostici ad alta risoluzione spaziale. Allo scopo di ovviare ai limiti intrinseci nelle tecniche di caratterizzazione attualmente utilizzate, è stata avviata una ricerca che ha portato allo sviluppo di un microscopio a raggi X (*TwinMic*) di concezione innovativa, in grado di raggiungere risoluzioni spaziali nanometriche. Infatti, dato l'alto potere penetrante dei raggi X e la loro capacità di fornire informazioni strutturali dettagliate, questo nuovo strumento permette di studiare le proprietà locali dei materiali con una risoluzione spaziale mai raggiunta prima. In particolare, il microscopio ha potenzialità uniche al mondo: formazione di immagini bi-tridimensionali, analisi spettromicroscopica di una vasta gamma di elementi chimici, ambiente del campione estremamente versatile per l'analisi della materia nello stato solido e liquido. Inoltre, progressi importanti possono essere registrati nella caratterizzazione dei processi di interfaccia solido/soluzione ac-

quosa, nonché nella caratterizzazione dei microorganismi e delle interazioni microbico/microminerali.

Per quanto riguarda l'ottica per questo tipo di microscopia, occorre osservare che le lenti ad alto potere rifrattivo che vengono impiegate nei microscopi ottici non sono facilmente trasferibili nei raggi X in quanto in questa regione dello spettro elettromagnetico la rifrazione diventa un fenomeno quasi trascurabile. Lo IESS (Istituto di Elettronica dello Stato Solido), in collaborazione con ricercatori del sincrotrone Elettra (Trieste), della Swiss Light Source (SLS) e dell'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF-Grenoble) (EC RT&D progetto HPRI-CT-2001-50024), ha perciò sviluppato un nuovo tipo di ottica per microscopia con raggi X. L'elemento ottico (*ZP*, Zone Plate), fornisce un fascio di raggi X altamente coerente con dimensioni spaziali, nella direzione perpendicolare alla superficie della zone plate, dell'ordine di qualche decina di nanometri e con una divergenza di circa 1 mrad (0.057°).

Tramite microscopia a raggi X sono possibili due diverse modalità di *imaging* per trasmissione: *full field* e *scanning*.

In entrambe le modalità è presente una *ZP* a monte del campione, che ha funzione di ottica di focalizzazione, accoppiata ad un *central stop* e ad una *OSA* (*Order Sorting Aperture*) che servono ad eliminare l'ordine zero e gli ordini di diffrazione superiore al primo.

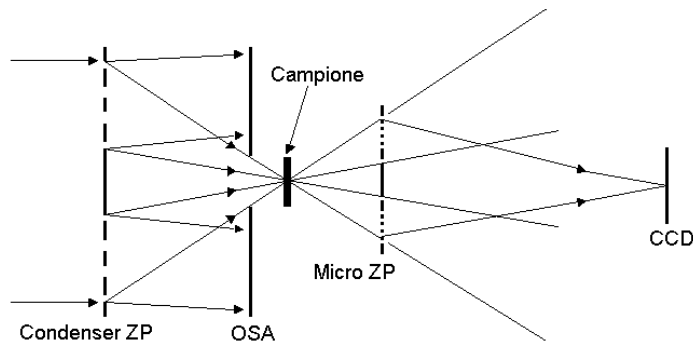


Figura 2.2: Schema dell'ottica per microscopia TXM in modalità full field

In modalità full field la radiazione non coerente colpisce la *ZP* di focalizzazione (*condenser ZP*) che crea uno spot monocromatico sul campione.

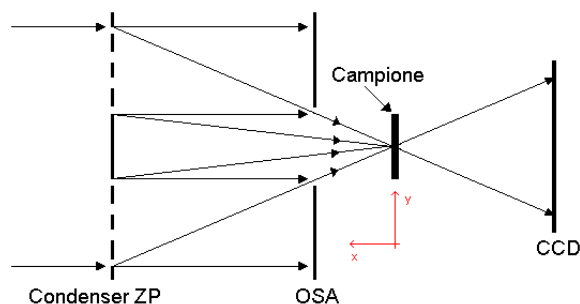


Figura 2.3: Schema dell'ottica per microscopia TXM in modalità scanning

L'immagine trasmessa dal campione viene ingrandita da una *micro ZP* che la focalizza su una fotocamera CCD (*Charge Coupled Device*)¹ sensibile ai raggi X. In questo modo, l'immagine dell'intero campo visivo viene istantaneamente acquisita (è possibile modificare il tempo di esposizione) permettendo un rapido imaging (dell'ordine delle decine di secondi) senza alterare, o alterando solo in modo trascurabile, lo stato termodinamico dei campioni [14].

In modalità scanning la radiazione coerente colpisce la ZP di focalizzazione che crea uno spot del primo ordine sul campione. Quest'ultimo viene scansionato nelle direzioni (x,y) grazie all'azione di motori piezoelettrici; la radiazione trasmessa attraverso il campione viene poi raccolta da un *fast detector* a raggi X. L'immagine di dimensioni arbitrarie (*array* di pixel) viene costruita correlando la posizione del campione con il segnale elettronico. I tempi di esposizione per questo tipo di microscopia sono relativamente lunghi (diversi minuti per un array di 400x400 pixel)[14].

¹In realtà, questa sigla indica una classe molto ampia di rivelatori di radiazione in grado di misurare l'intensità della radiazione incidente su un determinato punto del rivelatore stesso. Ogni sensore CCD è costituito da una matrice di elementi sensibili (i più recenti possono averne fino ad alcuni milioni) concentrati in una superficie di poche decine di mm². Ogni elemento sensibile è sostanzialmente un fotodiodo le cui caratteristiche fisiche, elettroniche e costruttive determinano il comportamento dell'intero rivelatore. Le caratteristiche più interessanti che questi sensori offrono oggi per uso scientifico sono la grande linearità, l'amplessima regione spettrale di sensibilità (dal vicino infrarosso ai raggi X), il bassissimo livello di rumore termico, ottenibile con tecniche di raffreddamento termoelettrico o ad azoto liquido, ed una elevata dinamica (rapporto tra livello di saturazione e livello di rumore)

2.4 Microscopia a forza atomica (*AFM*, Atomic Force Microscopy)

Un microscopio a scansione atomica consiste essenzialmente in una punta di dimensioni atomiche, montata su una leva (*cantilever*), che scansiona la superficie, da un detector per misurare la posizione della punta e da un'elettronica retroazionata.

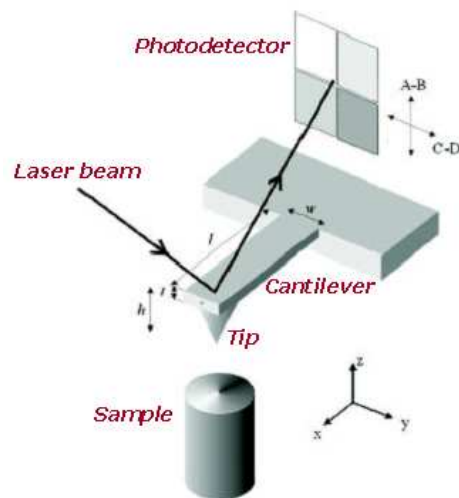


Figura 2.4: Schema del principio di funzionamento di un microscopio a scansione atomica

Un campione solido può essere scansionato nelle tre dimensioni con la precisione degli angstrom (10^{-10} m) in due modalità:

- *tip force*: viene misurata, in funzione della posizione (x,y), la distanza della punta dal campione mantenendo costante la forza agente su di essa
- *tip sample separation*: viene mantenuta costante la distanza della punta rispetto al campione e viene misurata la forza agente su di essa in funzione della posizione (x,y)

Le forze in gioco nella rilevazione di una struttura sub-nanometrica sono dell'ordine dei 10 pN. Per questo vengono utilizzate delle punte dalle dimensioni di pochi nanometri. È importante notare che questa misura viene eseguita

in aria (a differenza delle misure eseguite con STM) e questo potrebbe dare problemi nel caso di composti di elementi molto reattivi.

2.5 Effetto Kerr magneto-ottico (*MOKE*, Magneto Optical Kerr Effect)

L'effetto Kerr magneto-ottico è una tecnica di misura molto utilizzata per lo studio della magnetizzazione di film sottili e consiste essenzialmente nella variazione dello stato di polarizzazione di un fascio di luce dopo la riflessione su una superficie metallica magnetizzata. In molti casi è possibile dimostrare che vi è una relazione lineare tra la magnetizzazione del film e le variazioni di rotazione ed ellitticità del fascio incidente [15].

Il primo esperimento di magneto-ottica fu eseguito da Faraday nel 1845. I primi esperimenti di Faraday erano volti a misurare la variazione dello stato di polarizzazione di un fascio di luce che si propagava attraverso un liquido sottoposto ad elettrolisi. Dal momento che non si osservava nulla, Faraday provò a sostituire il campo elettrico con un campo magnetico e trovò una rotazione del piano di polarizzazione della luce (effetto Faraday). Egli, inoltre, affermò che la rotazione indotta era proporzionale all'intensità del campo e allo spessore del mezzo. L'osservazione dell'effetto Faraday costituì la prima dimostrazione della connessione tra magnetismo e luce e quindi l'origine della magneto-ottica.

Inoltre, Farady tentò di studiare le variazioni della polarizzazione della luce dopo riflessione da una superficie magnetizzata; tuttavia, egli non ottenne dati definitivi poiché i suoi risultati erano compromessi dalla bassa qualità della superficie del metallo. Questi studi furono completati alcuni anni dopo da John Kerr che scoprì l'effetto che porta appunto il suo nome: quando la luce polarizzata nel piano ed incidente in modo normale su un materiale magnetizzato viene riflessa cambia polarizzazione ossia diventa polarizzata ellitticamente con l'asse maggiore dell'ellisse ruotato rispetto al piano di polarizzazione del fascio incidente.

2.5.1 Le tre geometrie dell'effetto Kerr magneto-ottico

Tra gli effetti magneto-ottici che hanno luogo durante la trasmissione della luce attraverso un materiale magnetizzato, ci sono un gran numero di effetti che si manifestano quando la luce è riflessa dalla superficie di un materiale. Questi fenomeni vengono convenzionalmente indicati come effetti Kerr magneto-ottici.

Consideriamo un materiale sul quale incide della luce con polarizzazione p . Come risultato il fascio riflesso può essere determinato da un vettore \vec{r} ottenuto moltiplicando il vettore che rappresenta il campo incidente con la matrice di Jones che contiene i coefficienti delle ampiezze di Fresnel. Se il materiale viene magnetizzato, il processo di riflessione può essere descritto introducendo un vettore \vec{K} , ossia il coefficiente di Kerr, ortogonale a \vec{r} . In questo modo, la combinazione di questi due vettori dà origine a un fascio di luce con polarizzazione ellittica: l'asse maggiore dell'ellisse è ruotato leggermente di un angolo θ_K (rotazione Kerr) e l'ellitticità associata è indicata con ϵ_K (ellitticità Kerr).

Dal momento che $|\vec{K}| \ll |\vec{r}|$, possiamo scrivere la rotazione Kerr complessa come:

$$\theta_K + i\epsilon_K = \frac{|\vec{K}|}{|\vec{r}|} \quad (2.1)$$

Vi sono tre tipi di effetto Kerr magneto-ottico a seconda della direzione della magnetizzazione rispetto alla superficie del campione e al piano di incidenza della luce: polare, longitudinale e trasversa [16].

Nella geometria polare la magnetizzazione \vec{M} è orientata perpendicolarmente alla superficie del campione e parallelamente al piano di incidenza, mentre in quella longitudinale \vec{M} è orientata nel piano del campione e parallelamente al piano di incidenza. Entrambi gli effetti portano alla rotazione θ_K del piano di polarizzazione e alla comparsa di ellitticità ϵ_K quando la luce polarizzata linearmente (polarizzazione s, polarizzazione p) viene riflessa dalla superficie del campione magnetizzato con magnetizzazione perpendicolare (geometria polare) o parallela (geometria longitudinale).

Nella geometria trasversa, invece, la magnetizzazione \vec{M} è orientata nel piano del campione e perpendicolarmente al piano di incidenza della luce. In

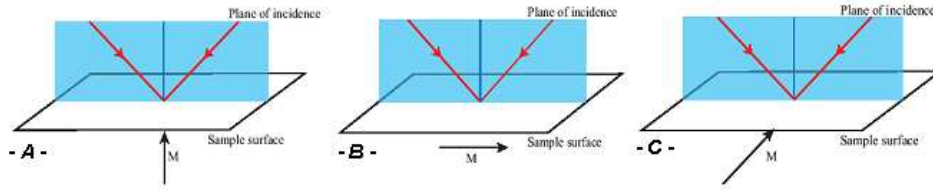


Figura 2.5: Le tre geometrie dell'effetto Kerr magneto-ottico: -A- Polare, -B- Longitudinale, -C- Trasversa

questa geometria solo la luce con polarizzazione p genera un effetto magneto-ottico che risulta essere leggermente diverso da quello osservato nelle altre due geometrie. In questo caso, infatti, compare un piccolo vettore Kerr \vec{K} che è parallelo al vettore \vec{r} e la cui intensità e direzione dipende dalla magnetizzazione \vec{M} . Così, la radiazione riflessa rimane polarizzata linearmente e vi è solamente una variazione dell'ampiezza riflessa in modo tale che quando \vec{M} cambia segno da $+\vec{M}$ a $-\vec{M}$, la riflettività cambia, rispettivamente, da $R(|\vec{r}+\vec{K}|)$ a $R(|\vec{r}-\vec{K}|)$. Infine, si deve notare che, ad incidenza normale, nella geometria longitudinale e nella geometria trasversa non si osserva nessun effetto Kerr magneto-ottico.

2.5.2 Origine dell'effetto magneto-ottico

La magneto-ottica è oggi descritta nell'ambito della teoria dielettrica macroscopica o della teoria quantistica microscopica. Macroscopicamente gli effetti magneto-ottici nascono dall'antisimmetria, ossia dagli elementi fuori diagonale del tensore dielettrico, mentre microscopicamente l'accoppiamento tra il campo elettrico della luce e lo spin dell'elettrone entro un mezzo magnetico avviene attraverso l'interazione spin-orbita. Queste due descrizioni verranno discusse in dettaglio più avanti.

Da un punto di vista generale, l'effetto magneto-ottico nasce quando, in un materiale, gli indici di rifrazione della luce con polarizzazione circolare destra e polarizzazione circolare sinistra sono diversi. Dalle equazioni di Maxwell, risulta che l'indice di rifrazione n è legato al tensore dielettrico attraverso la seguente relazione:

$$n^2 E_j - \sum \epsilon_{ij} E_i = 0 \quad (2.2)$$

Se, per semplicità ci limitiamo al caso di un mezzo con simmetria cubica, la precedente relazione può essere semplificata nel seguente modo:

$$n^2 E_i - \epsilon E_i = 0 \quad (2.3)$$

Così, quando un fascio di luce incide da un mezzo non magnetico (0) ad un mezzo magnetico (1), il tensore dielettrico può essere generalizzato come segue [17, 18]:

$$\epsilon = \epsilon_{xx} \begin{pmatrix} 1 & iQm_z & -iQm_y \\ iQm_z & 1 & -iQm_x \\ -iQm_y & iQm_x & 1 \end{pmatrix}$$

dove m_x, m_y, m_z sono i coseni direttori della magnetizzazione \vec{M} e Q è il parametro magneto-ottico (o vettore di Voigt) definito come:

$$Q = Q' + iQ'' = \frac{g(\vec{M})}{\epsilon_1} \quad (2.4)$$

dove $g=|\mathbf{g}|$ ed ϵ_1 è la permeabilità magnetica del mezzo (1). In particolare, \mathbf{g} è detto vettore di rivoluzione ed è proporzionale alla magnetizzazione. Pertanto, l'effetto della magnetizzazione è quello di ridurre la simmetria del cristallo da cubica a uniassiale e generare elementi non diagonali, nella matrice del tensore dielettrico, che sono legati alle proprietà magneto-ottiche. Risolvendo le equazioni di Maxwell per il tensore dielettrico, si ottengono i coefficienti di Fresnel $r_{pp}, r_{ps}, r_{sp}, r_{ss}$ [18] (rapporto tra il campo elettrico incidente e il campo elettrico riflesso) che risultano essere proporzionali all'indice di rifrazione dei due mezzi e all'angolo di incidenza del fascio di luce.

Da qui definendo la rotazione Kerr complessa come:

$$\theta_K^p \equiv \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \text{ ed } \theta_K^s \equiv \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \quad (2.5)$$

possiamo ottenere le relazioni per l'ellitticità ϵ_K e per la rotazione θ_K nella configurazione longitudinale ($m_x = m_z = 0$ mentre $m_y = 1$) [16]:

$$\epsilon_K^{p,s} \equiv \text{Im} \frac{(\pm r_{sp})}{r_{ss}(r_{pp})} = \text{Re} \frac{\sin \theta_o \eta^2 \left(\sin \theta_o \tan \theta_o \pm \sqrt{\eta^2 - \sin^2 \theta_o} \right)}{(\eta^2 - 1)(\eta^2 - \tan^2 \theta_o)(\eta^2 - \sin^2 \theta_o)^{1/2}} Q \quad (2.6)$$

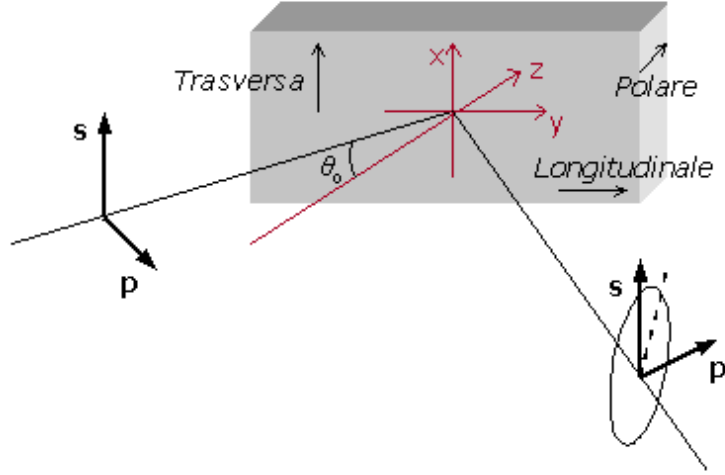


Figura 2.6: Configurazione schematica delle tre geometrie dell'effetto Kerr con la rispettiva definizione del sistema di coordinate

$$\theta_K^{p,s} \equiv \operatorname{Re} \frac{(\pm r_{sp})}{r_{ss}(r_{pp})} = \operatorname{Im} \frac{\sin \theta_o \eta^2 \left(\sin \theta_o \tan \theta_o \pm \sqrt{\eta^2 - \sin^2 \theta_o} \right)}{(\eta^2 - 1)(\eta^2 - \tan^2 \theta_o)(\eta^2 - \sin^2 \theta_o)^{1/2}} Q \quad (2.7)$$

dove η è l'indice di rifrazione relativo dei due mezzi adiacenti, θ_o è l'angolo di incidenza del fascio di luce sul mezzo (1) ed il segno + corrisponde alla polarizzazione s della luce mentre il segno - alla polarizzazione p della luce. Dalle relazioni si osserva come la rotazione e l'ellitticità sono proporzionali alla magnetizzazione tramite il parametro magneto-ottico Q .

2.5.3 Modello classico per l'effetto magneto-ottico

Classicamente, quando un'onda elettromagnetica si propaga attraverso un mezzo, il campo elettrico della luce genera un moto degli elettroni nel mezzo stesso. Questo porta ad un momento di dipolo indotto che, al primo ordine, è proporzionale all'intensità del campo elettrico e questo significa che le proprietà dielettriche di un mezzo possono essere ottenute considerando l'equazione del moto degli elettroni dopo l'applicazione di un campo [15, 19]. Consideriamo, per semplicità, un mezzo con elettroni legati con frequenza propria ω_o nell'approssimazione armonica; l'equazione del moto di un

elettrone sotto l'influenza di un'onda elettromagnetica è:

$$\frac{d^2\vec{r}}{dt^2} + m\omega_o^2\vec{r} + \gamma\frac{d\vec{r}}{dt} = -e\vec{E} - \frac{e}{c}\frac{d\vec{r}}{dt} \times B\hat{z} \quad (2.8)$$

dove \vec{r} è il vettore posizione dell'elettrone relativo alla sua posizione di equilibrio, \hat{z} indica la direzione del campo magnetico applicato e γ è il termine di smorzamento.

Da un punto di vista qualitativo, luce con polarizzazione circolare sinistra (destra) induce un moto circolare sinistro (destro) degli elettroni di conduzione del metallo. In assenza di un campo magnetico esterno, i raggi dell'orbita dei due moti circolari sono gli stessi e poiché il momento di dipolo elettrico di un elettrone è proporzionale al raggio della sua orbita circolare, le costanti dielettriche sono le stesse e non si osserva nessuna rotazione. Applicando, invece, un campo magnetico esterno nella direzione di propagazione dell'onda elettromagnetica si introduce una forza di Lorentz che agisce su ciascun elettrone e che è orientata verso (in direzione opposta) il centro dell'orbita circolare per moto circolare sinistro (destro). Come risultato, uno dei raggi dell'orbita aumenta mentre l'altro diminuisce portando così ad una costante dielettrica diversa per luce con polarizzazione circolare sinistra e destra. Pertanto è la forza di Lorentz dovuta al campo magnetico applicato che genera una rotazione proporzionale alla magnetizzazione.

2.5.4 Descrizione quantistica dell'effetto magneto-ottico

Nei materiali ferromagnetici l'effetto Faraday è più forte rispetto a quello che si manifesta in materiali non magnetici. Recenti spiegazioni, basate sull'ipotesi della presenza di un campo locale dello stesso ordine del campo di Weiss (10^6 - 10^7 Oe), hanno portato all'osservazione di tale effetto. L'esistenza del campo di Weiss è stata spiegata nell'ambito del modello di scambio di Heisenberg; tuttavia, questo modello non può essere applicato perché il campo di Weiss non si accoppia al moto elettronico, il quale è responsabile delle proprietà dielettriche del materiale.

Il problema fu risolto da Hume (1937) che propose una spiegazione basata sull'interazione spin-orbita. L'accoppiamento spin-orbita può essere scritto come $\sim(\nabla V \times \vec{p}) \cdot \vec{s}$ e risulta dall'interazione del moto elettronico con il

gradiente del campo elettrico (\vec{p} è il momento dell'elettrone ed \vec{s} è lo spin dell'elettrone). Questa interazione accoppia lo spin dell'elettrone con il suo moto e connette, quindi, le proprietà magnetiche alle proprietà ottiche di un ferromagnete [15, 19].

Per materiali non magnetici, l'effetto totale è debole perché c'è un numero uguale di elettroni con spin *up* e spin *down*, mentre nel caso opposto, il non equilibrio tra la popolazione di spin genera un grande effetto magneto-ottico.

Nei suoi studi Hume calcolò gli indici di rifrazione per polarizzazioni 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. Assumendo, inoltre, che:

- la frequenza della luce è molto più grande rispetto al tempo di rilassamento spin-reticolo
- l'interazione dell'elettrone con il campo elettrico della radiazione è più grande rispetto all'interazione con il campo magnetico
- la lunghezza d'onda della luce è più grande della spaziatura atomica
- l'interazione di un elettrone con gli altri elettroni e con i nuclei può essere considerata con un potenziale medio $V(r)$

possiamo descrivere il sistema attraverso la seguente hamiltoniana:

$$H = H_o + H' + H'' \quad (2.9)$$

dove:

$$H_o = \frac{p^2}{2m} + V(r) \quad (2.10)$$

$$H' = \frac{\hbar}{4m^2c^2} (\nabla V \times \vec{p}) \cdot \vec{\sigma} \quad (2.11)$$

$$H'' = \frac{e}{mc} \vec{A} \cdot \vec{p} \quad (2.12)$$

dove H' è l'hamiltoniana relativa all'interazione di spin-orbita mentre H'' è

l'hamiltoniana relativa all'interazione del materiale con l'onda elettromagnetica.

Per calcolare il tensore di conducibilità si utilizza il metodo di Argyers [15]. Tale approccio ricava il tensore di conducibilità dall'operatore densità di corrente mostrando come i termini fuori diagonale siano antisimmetrici, proporzionali alla magnetizzazione e diano, quindi, origine all'effetto magneto-ottico.

Capitolo 3

Apparati sperimentali

3.1 La radiazione di sincrotrone

Una particella carica emette radiazione elettromagnetica ogni qualvolta viene sottoposta ad una forza e quindi accelerata [20]. Si indica con *radiazione di sincrotrone* la radiazione elettromagnetica prodotta nel caso particolare di particelle cariche che viaggiano a velocità relativistiche immerse in campi magnetici o elettrici che le forzano a circolare in percorsi chiusi, mantenendo costante la loro energia. L'intensità della radiazione emessa è inversamente proporzionale alla massa delle particelle accelerate; per questo motivo solo elettroni e positroni sono considerati come possibili sorgenti di radiazione di sincrotrone. Oggi la radiazione di sincrotrone prodotta dagli anelli di accumulazione di terza generazione rappresenta la sorgente di luce quasi coerente più utilizzata per lo studio della materia nelle sue varie fasi (condensata, gassosa e liquida).

Le caratteristiche principali della radiazione di sincrotrone sono le seguenti ([21, 22, 23]):

1. Spettro di emissione continuo avente frequenze che vanno dai raggi infrarossi ai raggi X duri, a seconda dell'energia degli elettroni (da 1 eV a 10 KeV)
2. Elevata brillantezza del fascio (definita come il numero di fotoni emessi al secondo per mm^2 dell'area della sorgente, per mrad^2 di angolo solido sotteso dalla distribuzione spaziale della radiazione prodotta, per lo

0.1% della larghezza dello spettro elettromagnetico) che può arrivare a raggiungere il valore di 10^{20} fotoni/sec/mm²/mrad²/0,1%bw(10^{12} volte maggiore del valore della brillantezza delle normali sorgenti di luce da laboratorio)

3. Collimazione del fascio di fotoni: si può calcolare [24] che la distribuzione angolare dell'intensità della radiazione emessa nel piano dell'orbita è approssimativamente proporzionale al fattore $1/\gamma$, dove γ è maggiore dell'unità dal momento che $\gamma = [1-\beta^2]^{-1/2}$ dove $\beta=v/c$. Nel caso di particelle cariche in moto a velocità v prossime a quella della luce c , $\gamma \gg 1$. Questo fatto giustifica l'estrema collimazione del fascio
4. Alto grado di polarizzazione della luce emessa, che risulta polarizzata linearmente nel piano dell'orbita degli elettroni, ed ellitticamente sopra e sotto tale piano
5. Struttura temporale della radiazione emessa: gli elettroni che circolano nell'orbita dell'anello sono raggruppati in *pacchetti* (*bunches*) che hanno una certa distanza temporale l'uno dall'altro, e generano quindi radiazione di sincrotrone in modo discontinuo

Attualmente tutte le sorgenti di radiazione di sincrotrone sono anelli di accumulazione (*storage rings*), costituiti da un percorso quasi circolare in cui gli elettroni vengono fatti circolare in condizioni di ultra alto vuoto (*Ultra High Vacuum*) allo scopo di produrre radiazione elettromagnetica.

Il percorso circolare degli elettroni all'interno dell'anello è guidato da quattro diversi tipi di magneti, aventi ciascuno la propria funzione:

- magneti curvanti (*bending magnets*), che deflettono il fascio elettronico circolante nell'anello forzandolo a compiere un percorso circolare chiuso, e che producono radiazione di sincrotrone avente uno spettro continuo con energie del fotone comprese fra il visibile ed i raggi X duri; la divergenza angolare della radiazione prodotta da questi dispositivi è proporzionale al fattore $1/\gamma$, mentre la brillantezza è di circa 10^{10} - 10^{11} fotoni/sec/mm²/mrad²/0,1%bw

- i quadrupoli magnetici, che focalizzano il fascio
- i sestupoli magnetici, che compensano gli effetti di aberrazione cromatica del fascio e di non linearità del moto degli elettroni, le quali possono portare ad ingenti perdite nella corrente dell'anello
- i magneti guidanti (*steering magnets*), che sono in grado di compiere piccoli aggiustamenti della traiettoria circolare degli elettroni per ottimizzare l'orbita del fascio elettronico.

All'interno dell'anello si trovano inoltre collocate alcune cavità a radiofrequenza (*RF cavity*) la cui funzione è quella di rifornire gli elettroni dell'energia persa nell'emissione di radiazione elettromagnetica [25].

La caratteristica peculiare dei sincrotroni di terza generazione è la presenza, tra un gruppo di magneti curvanti ed il successivo, di sezioni diritte in cui è possibile collocare i dispositivi d'inserzione (*insertion devices*), che possono essere *wigglers* o ondulatori, capaci di produrre un fascio maggiormente collimato e brillante rispetto a quello generato dai magneti curvanti. In particolare, un ondulatore è costituito da una matrice di magneti ripetuta periodicamente in modo che gli elettroni, durante le oscillazioni, siano in fase con la radiazione prodotta dalle oscillazioni precedenti e la divergenza del fascio elettronico diminuisca di un ordine di grandezza. Di conseguenza, la brillantezza può raggiungere valori fino a 10^{20} fotoni/sec/mm²/mrad²/0,1%bw. Questi effetti di interferenza costruttiva valgono solo per una particolare lunghezza d'onda e per le sue armoniche di ordine superiore, quindi lo spettro della radiazione emessa da un ondulatore è quasi monocromatico. La lunghezza d'onda della radiazione prodotta può essere scelta variando il campo magnetico che agisce sugli elettroni. Per gli elettromagneti ciò avviene cambiando la corrente che scorre nelle bobine, mentre per i magneti permanenti il campo magnetico può essere modificato variando la distanza (*gap*) fra la sezione superiore e quella inferiore dell'*array* di magneti (in particolare, aumentando la *gap* il campo magnetico diminuisce, e viceversa).

La radiazione di sincrotrone, prodotta da magneti curvanti o da *insertion devices*, viene trasportata alla camera sperimentale tramite un sistema di

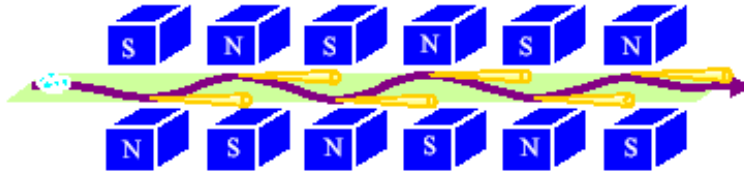


Figura 3.1: Rappresentazione schematica di un onduttore wiggler

ottiche composto da specchi, fenditure e reticoli di diffrazione. In tal modo la radiazione viene monocromatizzata e focalizzata in modo opportuno.

3.1.1 L'anello di luce di sincrotrone Elettra di Trieste

Elettra è la sorgente italiana di luce di sincrotrone di terza generazione, operativa dal 1993, situata nei pressi di Basovizza nel comprensorio dell'Area Science Park, sul territorio del comune di Trieste. L'anello di accelerazione è ottimizzato per produrre radiazione nel *range* che va dai raggi ultravioletti ai raggi X duri con una brillantezza che, per alcune *beamlines*, può raggiungere i 10^{19} fotoni/sec/mm²/mrad²/0.1%bw.

Gli elettroni vengono prodotti per effetto termoelettrico nel Linac, un acceleratore lineare di 66 m di lunghezza e successivamente iniettati all'interno dell'anello di accumulazione dove la loro orbita viene stabilizzata e la loro energia aumentata fino a 2 GeV o a 2.4 GeV. Il Linac opera ad una frequenza di 3 GHz e produce pacchetti di elettroni che si estendono spazialmente per 5.4 mm o 7 mm, a seconda che l'energia degli elettroni nell'anello sia rispettivamente 2 GeV o 2.4 GeV, e distanziati fra loro da una separazione temporale il cui minimo valore può essere di 2 ns per un numero massimo di 432 bunches circolanti contemporaneamente nell'anello.

L'anello di Elettra è composto da dodici gruppi di magneti curvanti identici fra loro, che formano una circonferenza di 259.2 m. In esso sono presenti dodici punti sorgente da magneti curvanti ed undici sezioni diritte per insertion devices. Lungo il percorso circolare si trovano, inoltre, quattro cavità oscillanti operanti ad una frequenza di 500 MHz, necessarie per rifornire il fascio elettronico dell'energia persa in seguito all'emissione di radiazione elettromagnetica.

Elettra ospita numerose beamlines, il cui numero è maggiore rispetto alla quantità di sorgenti di radiazione disponibili: la domanda sempre crescente di stazioni sperimentali aventi come sorgente la luce di sincrotrone ha avuto come conseguenza la necessità per alcune beamlines di condividere la medesima sorgente, sia essa un magnete curvante o un insertion device. Attualmente il sincrotrone Elettra dispone di sedici beamlines operative, ed altre sono in fase di progettazione o di costruzione [26].

3.1.2 BACH, *the Beamline for Advanced diCHroism*

BACH, la *beamline* per dicroismo avanzato, costruita e resa operativa ad Elettra dall'ottobre del 2001, è stata progettata per fornire un flusso di circa $10^{11}/10^{12}$ fotoni/sec in un intervallo di energie tra i 35 eV ed i 1600 eV. Gli ondulatori di tipo elicoidale (Apple II) permettono il completo controllo della polarizzazione della radiazione emessa.

Grazie alle sue caratteristiche BACH offre la possibilità di compiere esperimenti nell'ambito di alcune spettroscopie fotoniche ed elettroniche dipendenti dalla polarizzazione della luce, le quali costituiscono uno strumento molto potente per lo studio delle proprietà elettroniche e magnetiche della materia condensata.

Le due stazioni sperimentali presenti alla fine dei due bracci A e B della beamline permettono di utilizzare diverse tecniche di misura. Queste vanno dall'assorbimento dei raggi X (XAS), allo scattering inelastico risonante (RIXS) e non risonante (IXS) di raggi X, al dicroismo magnetico lineare (XMLD) e circolare (XMCD), alla fotoemissione (PES) e alla fotoemissione risolta in angolo (ARPES).

La terza stazione sperimentale è stata aggiunta recentemente (2003) e permette di effettuare microscopia a raggi X in trasmissione sia in modalità full field che in modalità scanning.

La sorgente di luce di sincrotrone scelta per soddisfare le esigenze di alta brillantezza e controllo della polarizzazione per le quali BACH è stata progettata, è formata da due ondulatori elicoidali di tipo Apple-II, posti in serie l'uno dopo l'altro nella sezione diritta numero 8.2 dell'anello di Elettra.

Questa scelta è stata fatta per ottimizzare il flusso di fotoni in due distinti

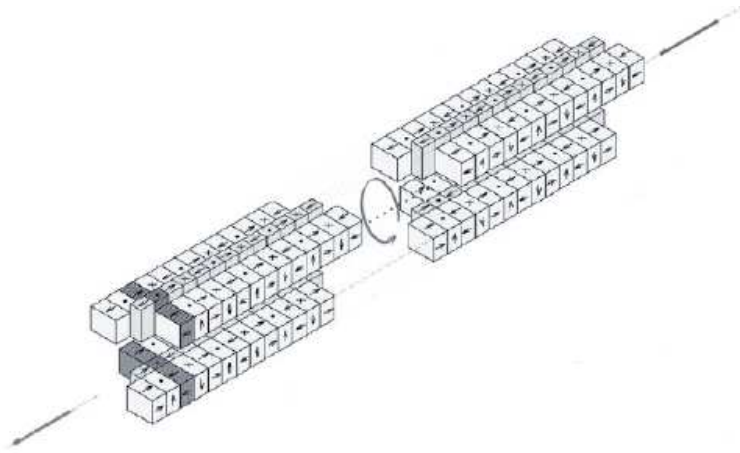


Figura 3.2: Rappresentazione schematica di un onduttore elicoidale di tipo AppleII (*Advanced Planar Polarized Light Emitter*)

intervalli di energia, (50-150)eV per l'onduttore per le basse energie (*Low Energy Undulator* o *LE*), e (600-1000)eV per l'onduttore per le alte energie (*High Energy Undulator* o *HE*). La peculiarità di questo tipo di onduttori sta nel poter produrre fotoni polarizzati linearmente o circolarmente nel piano dell'orbita degli elettroni semplicemente modificando il *layout* della loro struttura magnetica. Ognuno di essi è costituito da due sezioni di due file ciascuna di magneti permanenti, collocate una al di sotto e una al di sopra del piano dell'orbita degli elettroni. Due delle quattro file di magneti sono in grado di muoversi rispetto alle altre due, che rimangono invece fisse, e questo permette di cambiare il campo magnetico lungo la direzione di propagazione da planare a ellittica e quindi lo stato di polarizzazione della luce.

La beamline BACH è costituita da quattro sezioni successive: (I) la sezione di prefocalizzazione (*prefocusing*) che è composta da due specchi sferici posti in serie (SM1 e SM2), i quali deflettono e focalizzano la radiazione rispettivamente nel piano orizzontale e verticale; (II) il monocrromatore, composto da una fenditura d'entrata, uno specchio piano (PM1), quattro reticoli di diffrazione sferici interscambiabili (SG1-4) ottimizzati per avere maggiore risoluzione o maggiore flusso, e una fenditura d'uscita; (III) la sezione di rifocalizzazione (*refocusing*), formata da due specchi piano-

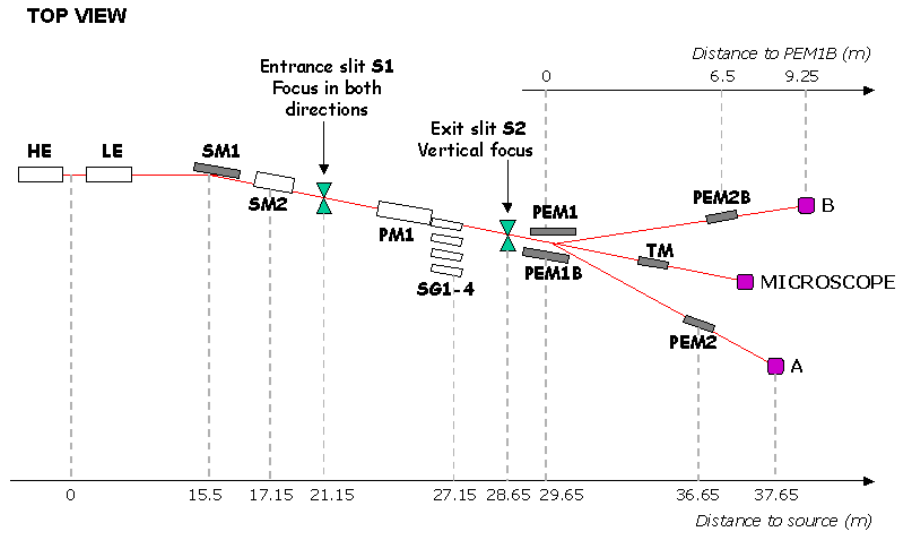


Figura 3.3: Schema della beamline BACH (vista dall'alto)

ellittici piani (PEM1 e PEM1B) che focalizzano orizzontalmente la radiazione nei bracci della beamline, e da due specchi piano-ellittici (PEM2 e PEM2B) posizionati rispettivamente nel braccio A e nel braccio B per la rifocalizzazione verticale del fascio; per quel che riguarda la terza *branch line*, dedicata alla microscopia, la rifocalizzazione viene eseguita contemporaneamente in orizzontale e verticale da uno specchio toroidale; infine (IV) le due camere sperimentali e il microscopio TwinMic posti al termine dei tre bracci ([27, 28, 29]).

3.1.3 Descrizione della stazione sperimentale per microscopia con radiazione X

Il microscopio è posto dopo l'*exit slit* del monocromatore, tra i bracci A e B precedentemente illustrati, come schematizzato nella figura 3.4.

Lo spot in arrivo in questo punto non è abbastanza piccolo da essere focalizzato a dimensioni inferiori al μm , ed è quindi necessario ridurre la sua dimensione orizzontale a qualche decina di μm (poi rimpicciolito ulteriormente dalla PreZP). Introducendo uno specchio toroidale (TM) dopo l'*exit slit* e usando lo spot all'*exit slit* come sorgente per lo specchio, è possibile ottenere uno spot di $(10 \times 10) \mu\text{m}^2$ che può essere ridotto dalla ZP a $(50 \times 50) \text{nm}^2$ sul campione.

Per eliminare l'effetto delle aberrazioni indotte dallo specchio, è stato nec-

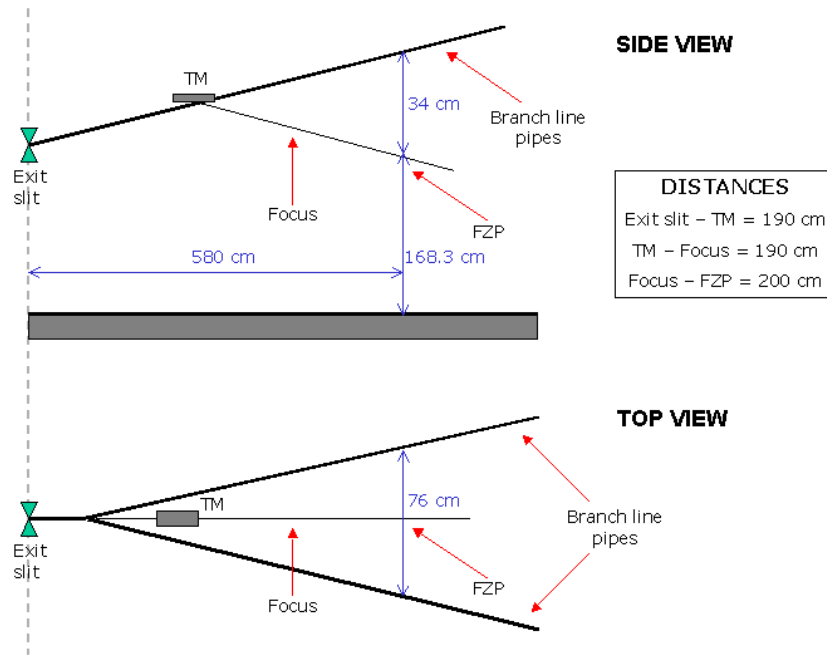


Figura 3.4: Stazione sperimentale del TwinMic nella beamline BACH

essario introdurre un *pin hole* nella posizione del focus, le cui dimensioni definiscono le dimensioni della sorgente per la PreZP. Aumentando il diametro del pinhole aumenta anche il flusso di fotoni in arrivo, ma aumenta anche la dimensione dello spot.

Il flusso finale sul campione è determinato da diversi fattori come le perdite dovute alla geometria del pin hole e della ZP, la riflettività dello specchio e l'efficienza della ZP. Le perdite dovute alla geometria sono principalmente dovute all'aberrazione ottica indotta dallo specchio toroidale. In particolare, con un pinhole di dimensioni $(10 \times 10) \mu\text{m}^2$ la perdita è attorno al 90% mentre nella ZP la perdita è attorno al 97.5%. Questi valori seppur grandi sono accettabili in quanto questo è il miglior compromesso tra la richiesta di un flusso alto e le dimensioni di spazio ristrette in cui il microscopio è posizionato tra le altre due camere di BACH. La riflettività dello specchio è un altro importante fattore limitante. Dallo studio di tutti questi fattori emerge che la dimensione dello spot è limitata principalmente alle alte energie [30].

Twin X-ray Microscope (TwinMic)

Le due modalità di microscopia in trasmissione di raggi X (full field e scanning) hanno capacità differenti ma complementari in termini di acquisizione di immagini e spettroscopia. Il nuovo approccio usato per la prima volta proprio nel progetto TwinMic mira alla costruzione di una stazione sperimentale polifunzionale che combini i due tipi di microscopia in uno strumento unico e compatto, con una facile commutazione tra le due modalità. Le particolarità del progetto TwinMic sono:

- lo sviluppo molto preciso dei moduli semovibili per ogni setup del microscopio
- la fabbricazione delle ottiche di diffrazione dei raggi X da differenti laboratori europei
- l'implementazione di nuove tecniche sensibili al contrasto di fase

Per la prima volta un microscopio a raggi X è costruito con la collaborazione dei principali gruppi europei che si occupano di detector e ottiche dei raggi X, nanotecnologia, imaging e spettroscopia raggi X usando differenti meccanismi di contrasto [31].

I vantaggi di TwinMic rispetto ad altri strumenti già esistenti sono la combinazione di differenti modalità di microscopia e la possibilità di montare i campioni in un ambiente controllabile (da alto vuoto ad atmosfera di gas) con un singolo strumento. Si possono quindi effettuare: (I) imaging con raggi X per una caratterizzazione morfologica combinata con studi di dinamica e tomografia (risoluzione di circa 50nm); (II) un'analisi spettromicroscopica che include una mappatura degli elementi e una determinazione della composizione chimica dei campioni (risoluzione di circa 100nm); (III) una caratterizzazione del campione nel suo ambiente naturale, liquido o gassoso che sia.

La potenzialità principale del TwinMic è che tali caratteristiche vengono conservate per un ampio range di energia, compreso tra (0.25-2)KeV permettendo così di vedere, tramite il fenomeno dell'assorbimento e la conseguente differenza di contrasto, acqua, Na, Mg, Al, Si, P, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Co, Zn, Ga, Ge, As, Se e Sr, i quali hanno molta importanza per le scienze



Figura 3.5: Foto del TwinMic: si notano le due camere principali contenenti i moduli semovibili e al centro la camera riservata al supporto per il campione. Quest'ultima può essere in comunicazione o isolata dal resto dello strumento. Il fascio di raggi X arriva da destra, incide sul campione al centro ed esce a sinistra, dove è installato il CCD

ambientali, la geochimica, la biologia, la medicina e lo studio dei materiali [32].

Ottiche del TwinMic

Nel microscopio TwinMic le modalità full field e scanning sono state integrate in un unico strumento secondo il seguente set-up:

Lo schema delle ottiche include elementi di focalizzazione prima e dopo il campione, e tali elementi possono essere sostituiti a seconda di ciò che si vuole ottenere.

In TwinMic è fondamentale la possibilità di variare la coerenza del fascio di fotoni, questo perché la modalità full field dà un ottimo imaging con fascio di fotoni totalmente o parzialmente incoerente, mentre la modalità scanning richiede un fascio coerente per limitare la diffrazione.

Nel TwinMic una ZP convenzionale genera il micro spot in modalità scanning, mentre in modalità full field questa ottica è sostituita da un nuo-

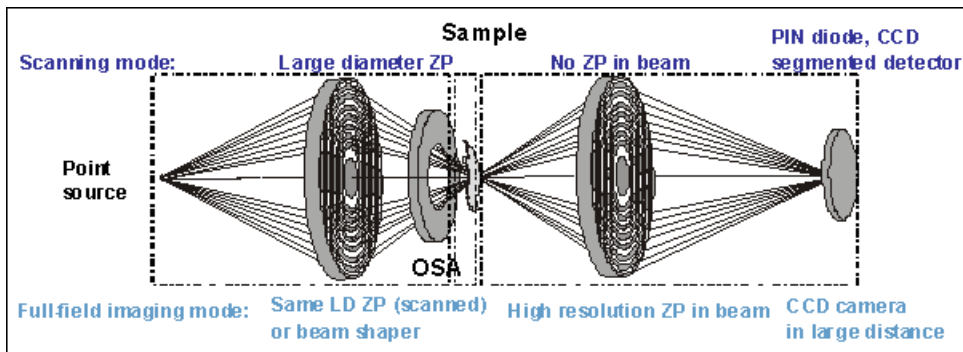


Figura 3.6: Schema dell'ottica del TwinMic per modalità full field e scanning. Il punto sorgente è costituito dal pin hole della beamline

vo elemento ottico di diffrazione di raggi X che permette di modellare la dimensione del fascio secondo le dimensioni del campione.

Le ZP utilizzate durante questo lavoro sono costituite da Ni e depositate su un substrato di nitrato di silicio spesso 50 nm. La ZP che focalizza il fascio dopo il campione, detta MicroZP o anche PostZP, ha un diametro di 75 mm, spessore compreso tra (100-200)nm e larghezza della zona più esterna di 50 nm; la ZP che focalizza il fascio prima del campione, detta condenserZP o PreZP, ha un diametro di 1mm, spessore compreso tra (100-200)nm e larghezza della zona più esterna di 116 nm.

Caratteristiche operative e modalità di realizzazione di *zone plate* per TwinMic

Nella regione dei raggi X soffici, le tecniche diffrattive che utilizzano zone plate di varia forma sono di grande interesse a causa della loro capacità di formare immagini a una grande risoluzione spaziale (dell'ordine delle decine di nm). Una zone plate, nella sua forma più semplice, è costituita da zone opache alternate da zone trasparenti, definite in modo tale che la somma della lunghezza di cammino tra sorgente e punto ricevente differisca di una lunghezza d'onda da una zona all'altra (zone di Fresnel).

Questi elementi di focalizzazione sono quindi costituiti da zone circolari concentriche i cui raggi sono dati approssimativamente dalla seguente

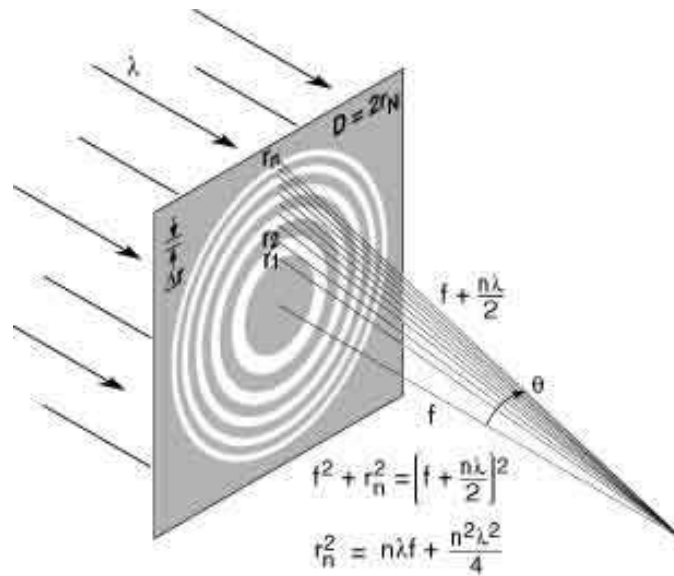


Figura 3.7: Fresnel zone plate

relazione [33]:

$$r_n^2 = mn\lambda f_m + \frac{m^2 n^2 \lambda^2}{4} \quad (3.1)$$

dove n è il numero delle zone, m denota l'ordine di diffrazione ($m=0, \pm 1, \dots$) con le corrispondenti lunghezze focali f_m date da $f_m=f/m$, λ è la lunghezza d'onda della radiazione, mentre il termine $(n^2\lambda^2)/4$ rappresenta l'aberrazione sferica assumendo una sorgente o un oggetto ad una distanza infinita dalla zone plate. Questo termine può essere trascurato per $f \gg n\lambda/2$, cioè nel caso in cui si hanno delle lenti con apertura numerica (N.A.¹) piccola, come spesso avviene nel caso di lunghezze d'onda per raggi X.

Il corrispondente limite di risoluzione trasversa δ_t calcolato da Rayleigh per una lente con apertura numerica N.A. è dato da :

$$\delta_t = 0.61 \frac{\lambda}{mN.A.} \quad (3.3)$$

¹L'apertura numerica (N.A.) di una lente è definita da $N.A.=\sin\theta$, dove θ è l'angolo misurato dall'asse ottico al fuoco al di là della lente. Così l'apertura numerica di una zone plate utilizzata come lente è data da $N.A.=r_n/f=D/2f$ o dalla seguente relazione:

$$N.A. \cong \frac{\lambda}{2\Delta r} \quad (3.2)$$

che risulta particolarmente utile quando si considerano risoluzioni spaziali

Se il termine di correzione per l'aberrazione sferica può essere trascurato possono essere ottenute altre due relazioni molto utili dalle espressioni precedenti. Una riguarda il legame tra la risoluzione di Rayleigh δ_t con l'ampiezza della zona più esterna δ_{r_n} di una zone plate con n zone:

$$\delta_t = \frac{1.22\delta_{r_n}}{m} \quad (3.4)$$

L'altra, invece, riguarda il legame tra il diametro $D=2r_n$ della zona più esterna, la lunghezza focale f , l'ordine di diffrazione m e la lunghezza d'onda λ :

$$D\delta_{r_n} = mf\lambda \quad (3.5)$$

Per ottenere un'ottima risoluzione, una zone plate dovrebbe essere illuminata con della radiazione con monocromaticità eguale al numero totale delle zone:

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} \geq mN \quad (3.6)$$

Considerando l'espressione (3.4) è imperativo utilizzare la migliore tecnologia di microfabbricazione per realizzare cerchi il più possibile perfetti e piazzarli con una precisione che è circa un terzo della risoluzione desiderata. La tecnica utilizzata per la realizzazione di zone plate è la litografia con fascio elettronico che consiste nello scrivere un *pattern* desiderato in qualche mezzo, tipicamente il polimero PMMA (PoliMetilMetaAcrilato) con un fascio di elettroni (tipicamente con energia da 50 KeV a 100 KeV e con diametro da 50 nm a 10 nm).

L'efficienza di diffrazione per una zone plate denota la frazione di raggi X che incide su questo elemento ottico e viene diffratta nell'ordine desiderato. Possiamo definire, così, l'efficienza di diffrazione η_m per un specifico ordine m come:

$$\eta_m = \frac{1}{\pi^2 m^2} \quad (3.7)$$

Per una zone plate con un'alternanza perfetta tra zone opache e zone trasparenti, l'efficienza del primo ordine di diffrazione è del 10%. Tuttavia, se le zone opache sono sostituite da materiale (Au, Ni, Ge) che introduce uno sfasamento di π l'efficienza può arrivare al 40%; sfortunatamente nessun materiale incide sulla fase senza assorbire parte della radiazione nella zona dei raggi X

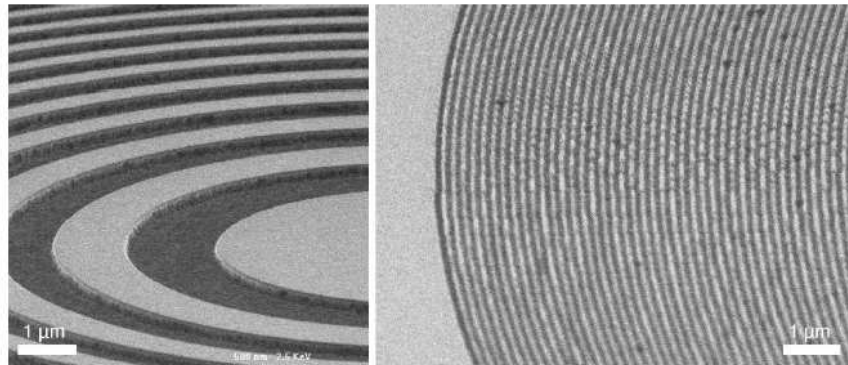


Figura 3.8: Immagine SEM della parte centrale (sinistra) e della parte più esterna (destra) di una zone plate per microscopia con radiazione X (in questo caso si tratta di zone plate di tantalio)

soffici e così l'efficienza diminuisce. Occorre, quindi, trovare un compromesso tra lo sfasamento e l'assorbimento del materiale introdotto.

Per ottenere ottimi risultati, lo spessore delle zone deve essere controllato accuratamente ed, in particolare, per schermi ad alta risoluzione lo spessore deve essere più piccolo dell'ampiezza delle zone. Purtroppo, la fabbricazione di tali strutture ad alto *aspect ratio*² è tuttora una problematica non risolta.

Caratteristiche di design del TwinMic

Per quanto riguarda la strumentazione, speciale attenzione è stata riservata alla realizzazione di un sistema compatto, modulare e indipendente.

TwinMic è caratterizzato da movimenti accurati con la dovuta risoluzione spaziale (meno di 50-100 nm a seconda della modalità) accompagnati da:

- design completamente simmetrico
- movimentazioni *backlash-free* sviluppate appositamente e *micro-actuators* compatibili col vuoto

²Il rapporto tra lo spessore della zona e l'ampiezza della zona è chiamato *aspect ratio* ed è un parametro importante perché la difficoltà di ottenere alti valori di *aspect ratio* rappresenta una delle limitazioni nella fabbricazione di zone plate ad alta efficienza

- controllo a circolo chiuso usando encoder ottici (trasduttori lineari di posizione)

La richiesta di un design compatto dei moduli per una versatilità di applicazioni ha imposto la decisione di installare le due distinte modalità in due camere, rispettivamente con una dimensione di 40 cm x 40 cm x 50 cm, con uno spazio intermedio per il campione che può stare in aria, vuoto o ambiente a gas condizionato. Il design modulare permette l'implementazione di elementi ottici diffrattivi con lunghezza focale di (2-350)mm.

Per quanto riguarda, invece, l'elettronica e l'informatica, la prima assieme alle sue interfacce copre una molteplicità di strumentazioni e non è specificatamente adattabile a un singolo strumento. Come interfaccia informatica è stato scelto il Labwiev/Labwindows (alta modulabilità nell'integrazione di altri dispositivi e facile implementazione di equipaggiamento scientifico aggiuntivo richiesto dall'utente).

Per sfruttare al massimo le due differenti modalità di imaging sono stati implementati i seguenti detector: (I) una fotocamera CCD ad alta risoluzione *back-illuminated* con 1340x1300 pixel e una dimensione del pixel di 24 μm per imaging in modalità full field; (II) un veloce *front-illuminated* CCD con 128x128 pixel e con la dimensione del pixel di 24 μm per *differential phase contrast* e *dark-field imaging*.

Entrambe le fotocamere possono essere utilizzate con un sistema di conversione per fotoni ad energie superiori a 800 eV per evitare danneggiamenti dovuti alla radiazione e la perdita in *dynamic range*. Nello schema ottico è anche compreso un set di fotodiodi e fotocamere di controllo e preallineamento [27].

3.2 Apparato sperimentale per misure di magnetottica

3.2.1 Sorgente laser

La sorgente di luce utilizzata è un laser al femtosecondo operante in regime di *mode locking* passivo, composto da un oscillatore (*Mira Coherent 900*) pompato da un laser a diodi (*Coherent Verdi V10*) in grado di emettere

una potenza massima di 10 W in continua. Il mezzo attivo dell'oscillatore è un cristallo di titanio-zaffiro (*Ti:Sapphire*). Il laser può emettere luce in un range di lunghezza d'onda compreso tra i 700 nm ed i 900 nm, ha un *repetition rate* di 76 MHz e la potenza media misurata in uscita è di circa 1.9 W. Gli impulsi emessi con questa configurazione hanno una durata di (100-120)fs e sono distanziati temporalmente di 13 ns.

Nelle nostre misure, il laser è stato impostato per emettere luce ad una lunghezza d'onda di circa 800 nm.

3.2.2 Descrizione set-up sperimentale per misure MOKE

Per misurare piccole variazioni di segnale è necessario servirsi di tecniche di trattamento del segnale che solitamente consistono nell'utilizzo congiunto di un amplificatore lock-in e di un dispositivo (*chopper* meccanico o modulatore fotoelastico come discusso in seguito) che introduce una modulazione con frequenza nota nel segnale da misurare.

Il lock-in isola ed estrae dal segnale, complessivamente letto dal fotodiodo, la componente alla frequenza di modulazione del segnale. In questo modo, tutta la parte di segnale dovuta a disturbi e, quindi, non proveniente dalle dinamiche analizzate viene eliminata: ne risulta quindi un segnale nel quale sono presenti solo le informazioni relative all'effetto della modulazione ed il rumore è soppresso.

Per le misure di magneto-ottica in geometria longitudinale, il set-up sperimentale utilizzato è illustrato nella figura 3.9.

Il fascio di luce, dopo esser stato parallelizzato, passa in una lamina $\lambda/2$ unita ad un polarizzatore orientato a 45° rispetto al banco ottico e successivamente in un modulatore fotoelastico (PEM) posizionato verticalmente. La luce viene poi focalizzata sul campione che si trova tra le espansioni di un elettromagnete ed è collocato su un montaggio che consente di posizionarlo a piacimento. Ad una distanza di circa 3 cm dal campione è posizionata una telecamera con sistema di lenti che riproduce sul CCD l'immagine del campione ingrandita. Inoltre, vicino al campione viene collocata una sonda Hall necessaria a monitorare i valori di campo magnetico.

L'intensità luminosa del primo ordine di diffrazione prodotto dalla matrice

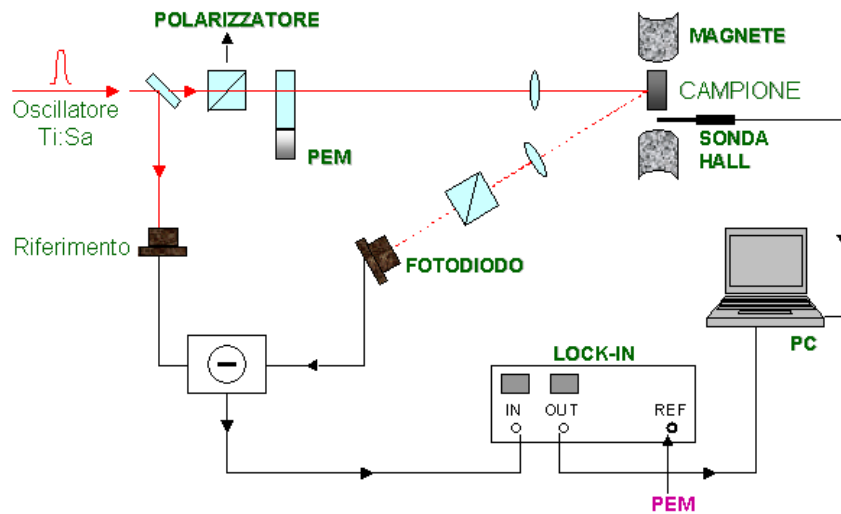


Figura 3.9: Set-up sperimentale per misure MOKE

di nanodots, viene raccolta da un fotodiodo, che è preceduto rispettivamente da una lente focalizzatrice e da un polarizzatore motorizzato orientato orizzontalmente. Il segnale viene acquisito dal lock-in in modalità differenziale, cioè sottraendo dal segnale rilevato dal fotodiodo il segnale di riferimento non modulato, in modo da eliminare le fluttuazioni della sorgente laser non inerenti all'interazione della luce sul campione.

Inoltre, abbiamo provato un'altra configurazione per il nostro set-up sperimentale. Questa configurazione consiste nel posizionare il PEM orizzontalmente tra il campione e l'analizzatore orientato a 45° rispetto al banco ottico. Tuttavia, la configurazione che offre, per le nostre misure, il segnale meno rumoroso è quella precedentemente descritta.

Attraverso il formalismo delle matrici di Jones è possibile descrivere in modo semplice lo stato di polarizzazione di un'onda elettromagnetica che ha interagito con elementi ottici lineari di vario tipo. Il vantaggio di questo formalismo è di introdurre, in un primo momento, le cosiddette matrici di Jones (matrici 2×2) per rappresentare i vari elementi ottici, ed in un momento successivo, moltiplicare le matrici per ottenere l'intensità del segnale dopo il passaggio della luce nei vari elementi ottici. Le tipologie di elementi che possono essere rappresentati includono polarizzatori lineari e circolari, lamine di ritardo ($\lambda/2, \lambda/4$) e ritardatori di fase isotropi.

Nel set-up utilizzato gli elementi che contribuiscono a modificare lo stato di polarizzazione sono il polarizzatore, il PEM e l'analizzatore; tutte le altre ottiche servono a modificare l'intensità del fascio e non verranno prese in considerazione.

Seguendo il formalismo di Jones gli elementi ottici del set-up possono essere descritti come segue. Il campo elettrico dopo il primo polarizzatore orientato a 45° rispetto al banco ottico:

$$E = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}$$

Il PEM orientato verticalmente:

$$PEM = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\Delta \cos \omega t} \end{pmatrix}$$

dove Δ è la modulazione massima ed ω è la frequenza della modulazione.

Il campione posto tra le espansioni dell'elettromagnete:

$$S = \begin{pmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{pmatrix}$$

L'analizzatore orientato orizzontalmente:

$$A = \begin{pmatrix} \cos^2 \theta & \sin \theta \cos \theta \\ \sin \theta \cos \theta & \sin^2 \theta \end{pmatrix}$$

La matrice del PEM può essere semplificata usando l'espansione di Anger-Jacobi, in modo tale da ottenere:

$$PEM = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & J_0(\Delta) + 2J_2(\Delta) \cos(2\omega t) + 2iJ_1(\Delta) \sin(\omega t) \end{pmatrix}$$

dove J_0 , J_1 , J_2 sono le funzioni di Bessel del primo tipo. Il coefficiente J_0 viene posto uguale a zero se sceglie, come valore di sfasamento del PEM, $\Delta = 2.407$ rad.

Il segnale MOKE rilevato dal fotodiodo può essere scritto come:

$$I = |E \cdot PEM \cdot S \cdot A|^2 \quad (3.8)$$

Dopo alcune semplificazioni è possibile ricavare le espressioni per le componenti ω e 2ω del segnale del fotodiodo:

$$I_{\theta=0}(\omega) = 8J_1 \text{Im}(r_{sp} r_{pp}^*) \sin(\omega t) \quad (3.9)$$

$$I_{\theta=0}(2\omega) = 8J_2 \operatorname{Re}(r_{sp}r_{pp}^*) \cos(2\omega t) \quad (3.10)$$

dove θ è l'angolo relativo alla posizione dell'analizzatore rispetto al banco ottico.

Il segnale di armonica fondamentale (ω) è proporzionale alla parte immaginaria della rotazione Kerr complessa, ossia l'ellitticità, mentre il segnale di seconda armonica (2ω) è proporzionale alla parte reale della rotazione Kerr complessa, ossia la rotazione del piano di polarizzazione della luce. Così, impostando l'amplificatore lock-in sulla prima o seconda armonica della modulazione del PEM, si può misurare sia la rotazione che l'ellitticità.

Modulatore fotoelastico

Un modulatore fotoelastico è un dispositivo in grado di produrre una modulazione dello stato di polarizzazione di un fascio di luce. Per fare questo viene sfruttato l'effetto fotoelastico, ossia attraverso l'applicazione di uno stress meccanico al mezzo ottico si varia l'indice di rifrazione del mezzo stesso e quindi la velocità di propagazione dell'onda elettromagnetica.

La parte attiva di un PEM consiste solitamente in un cristallo di forma rettangolare di biossido di silicio (SiO_2) alle cui estremità, sui lati corti, sono posti due elementi piezoelettrici che ne inducono una vibrazione responsabile della modificazione dell'indice di rifrazione del cristallo stesso. La modulazione della polarizzazione si ottiene sfruttando la birifrangenza indotta nel cristallo dagli elementi piezoelettrici; questi, infatti, comprimono il cristallo lungo un solo asse, modificando quindi l'indice di rifrazione del cristallo soltanto lungo tale asse mentre nella direzione ortogonale l'indice di rifrazione rimane costante. In questo modo si ottiene un fenomeno di birifrangenza la cui entità dipende dall'ampiezza di oscillazione dei piezoelettrici. Supponendo di considerare un'onda elettromagnetica polarizzata linearmente si ha, quindi, che la componente del campo elettrico nella direzione di oscillazione dei piezoelettrici (asse ottico) subisce un ritardo di fase che varia tra zero ed un valore fissato (impostabile) rispetto alla componente del campo elettromagnetico nella direzione ortogonale all'asse ottico del PEM.

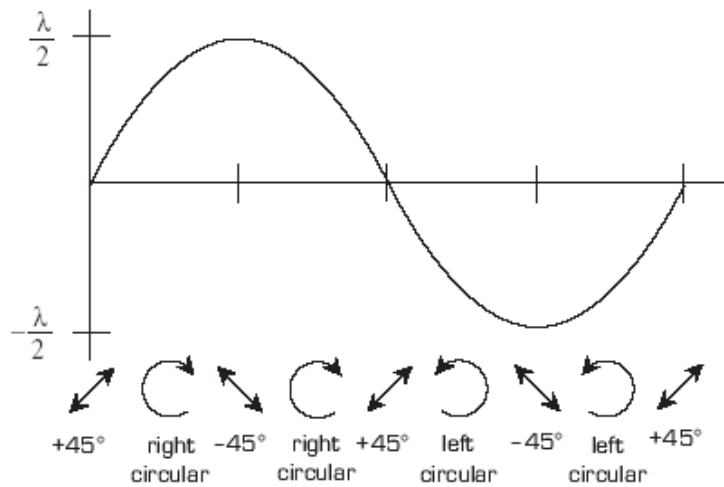


Figura 3.10: Viene mostrato il ritardo in funzione del tempo per un ciclo di modulazione; si indicano anche gli stati di polarizzazione a tempi diversi durante un ciclo. In particolare, il PEM agisce da lamina $\lambda/2$ all'istante del ritardo massimo e ruota il piano di polarizzazione di 90°

Ne risulta quindi uno sfasamento tra le due componenti, che si traduce nella modificazione dello stato di polarizzazione dell'onda elettromagnetica.

Il PEM funziona in modo risonante. Infatti, l'elemento ottico del PEM è pilotato ad una frequenza ben precisa, che coincide con quella propria di risonanza del cristallo e ciò induce una modulazione della birifrangenza del cristallo. Se la frequenza della modulazione è fissa e coincide con la frequenza di risonanza dell'elemento ottico (che generalmente è di 50 kHz) l'ampiezza delle oscillazioni è invece variabile: è proprio l'ampiezza di oscillazione a determinare l'entità dello sfasamento tra le due componenti. In generale, aumentando la tensione massima applicata ai piezoelettrici, aumenta lo stress meccanico sul cristallo e quindi aumenta anche la variazione dell'indice di rifrazione del cristallo rispetto al valore normale; da qui deriva lo sfasamento tra le due componenti ortogonali del campo, che provoca la modificazione dello stato di polarizzazione del campo stesso [34].

La legge che descrive lo sfasamento tra le due componenti ortogonali del

campo elettromagnetico è data da [35]:

$$\delta(t) = \frac{2\pi}{\lambda} (n_x - n_y) = \frac{2\pi}{\lambda} [n_x - (n_{y0} - \Delta n_y \sin(\omega t))] = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n_y \sin(\omega t) \quad (3.11)$$

dove λ è la lunghezza d'onda della luce utilizzata, ω è la frequenza propria di oscillazione del PEM e n_x, n_y sono gli indici di rifrazione del mezzo ottico del PEM: quello ortogonale all'asse ottico è costante, mentre quello parallelo all'asse ottico varia in funzione della tensione di alimentazione del piezoelettrico, che a sua volta varia sinusoidalmente nel tempo. La modulazione dello stato di polarizzazione ha, quindi, un andamento sinusoidale e gli stati di polarizzazione tra i quali avviene la modulazione dipendono essenzialmente sia dalla forma della polarizzazione in ingresso che dal ritardo impostato.

Amplificatore lock-in

In generale un amplificatore lock-in è in grado di misurare un segnale in tensione alternata e di fornire in uscita un segnale in tensione continua proporzionale all'ampiezza del segnale misurato in alternata. Questo dispositivo è detto amplificatore perché la tensione continua presente all'uscita è solitamente molto maggiore dell'ampiezza del segnale in alternata ed è detto lock-in perché si aggancia ad una particolare frequenza e misura la componente a tale frequenza ignorando tutto il resto del segnale.

Il componente fondamentale del lock-in è un dispositivo sensibile alla fase (PSD, *Phase Sensitive Detector*) che viene anche definito demodulatore; questo circuito, infatti, separa in diverse componenti il segnale in ingresso in base alla frequenza di queste e conserva solo quella la cui frequenza è identica a quella di riferimento tenendo conto anche della eventuale fase tra i due segnali [36].

L'impiego di un PSD per effettuare la rettifica del segnale è ciò che permette di distinguere la componente desiderata del segnale da tutto il resto (rumori ed interferenze) che viene soppresso. Affinchè il PSD possa discriminare la frequenza da conservare è necessario fornire al dispositivo un segnale (segnale di riferimento) la cui frequenza è quella alla quale il PSD effettuerà la ricerca nel segnale applicato in ingresso.

In particolare, il PSD converte il segnale AC (corrente alternata) in DC

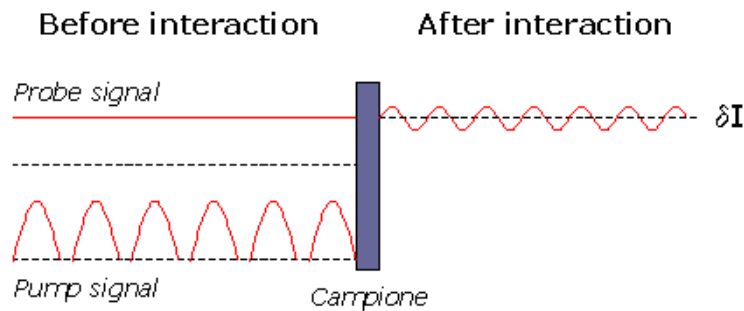


Figura 3.11: Interazione tra il segnale di probe ed il segnale di pump: il lock-in estrae un segnale modulato ma di bassa intensità da un segnale di molti ordini di grandezza superiore

(corrente continua). Unitamente al segnale, il lock-in amplifica solo quel rumore con componente spettrale molto vicina alla frequenza di riferimento, eliminando così tutto il rumore spettrale rimanente. Il rumore rilevato si manifesta con minime oscillazioni del segnale in uscita dallo strumento. Questo perché il rumore all'entrata del lock-in non viene raddrizzato dal PSD ma arriva in output come segnale AC modulato. A questo punto il segnale misurato, che invece è stato convertito a DC, viene separato dal rumore con un semplice filtro passa-basso che taglia la corrente alternata. Il PSD opera moltiplicando due segnali: quello proveniente dal canale input (segnale dell'esperimento) e la sinusoide generata dal *reference trigger* con frequenza uguale al segnale entrante nel canale di riferimento. Tale sinusoide è generata a partire da una tensione di riferimento che deriva dal segnale stesso, con uguale frequenza e relazione di fase costante a quella del segnale. In questa configurazione il PSD rileva ogni minima variazione della frequenza del segnale misurato, poiché il riferimento è ad esso agganciato in fase.

Normalmente, un lock-in può essere utilizzato fondamentalmente per separare un segnale di interesse da un *background* costituito da disturbi e rumori di fondo. Nel nostro caso, il lock-in viene utilizzato per estrarre un segnale modulato ma di bassa intensità da un segnale relativamente pulito ma caratterizzato da un'ampiezza di molti ordini di grandezza superiore (vedi figura 3.11).

3.2.3 Descrizione set-up sperimentale per misure TR-MOKE

La tecnica di misura pump&probe viene utilizzata per l'indagine di fenomeni ultraveloci. Il principio generale su cui si basa questa tecnica è il seguente: il campione da analizzare viene colpito con degli impulsi di luce (pump) che generano un qualche tipo di perturbazione nel campione stesso. Dopo un intervallo di tempo regolabile, un impulso sonda (probe) colpisce il campione e viene misurata la sua trasmissione o la sua riflessione. Monitorando l'impulso di probe in funzione del ritardo temporale, si ottengono informazioni sul decadimento dell'eccitazione generata o comunque del processo innescato dal pump.

Il set-up sperimentale necessario ad effettuare misure magneto-ottiche risolte in tempo consiste in un sistema di pump&probe. Anche in questo caso, poiché le dinamiche di magnetizzazione da evidenziare sono molto piccole rispetto al segnale complessivo, sono state utilizzate tecniche per il trattamento ed il miglioramento del segnale rilevato, che consistono, come nel caso precedente, nell'adozione di un sistema basato su un amplificatore lock-in ed un PEM. Nello seguente figura è mostrato lo schema complessivo del set-up utilizzato:

Il fascio di luce in uscita dal laser viene separato, tramite un *beam splitter*, in due fasci di diversa intensità. In particolare, si crea un primo fascio di intensità pari al 70% dell'intensità iniziale ed un secondo fascio costituito dal restante 30%: il fascio più intenso viene utilizzato come pump mentre quello meno intenso come probe.

Lungo la linea del pump sono collocati rispettivamente un chopper meccanico, una slitta motorizzata per la creazione del ritardo temporale tra l'impulso di pump e il relativo impulso di probe, un polarizzatore ed una lente convergente che focalizza il fascio sul campione. Lungo la linea del probe, invece, rimangono gli stessi elementi utilizzati per le misure MOKE (vedi sezione 3.2.2).

La posizione dei due fasci sul campione è monitorata attraverso un microscopio munito di una telecamera digitale. Lo spot corrispondente al primo ordine di diffrazione viene raccolto da un fotodiodo, che è preceduto rispettivamente da una lente focalizzatrice e da un polarizzatore motorizzato ori-

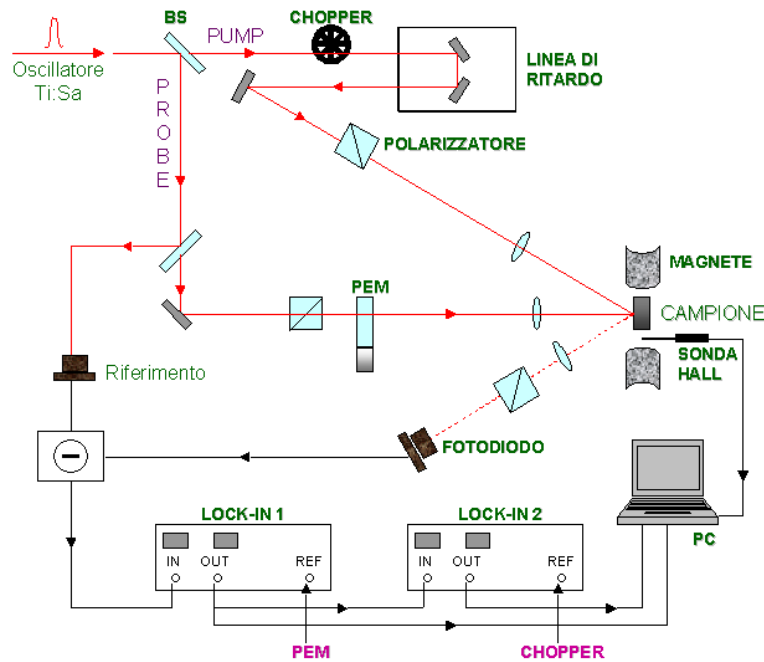


Figura 3.12: Set-up sperimentale per misure TR-MOKE

entato orizzontalmente in modo da non permettere ad eventuali contributi luminosi provenienti dal pump (polarizzato verticalmente) di entrare nel fotodiodo. Il segnale viene acquisito dal lock-in in modalità differenziale (vedi descrizione del set-up sperimentale per misure MOKE).

La regolazione dell'intensità del fascio di probe avviene ruotando la lamina $\lambda/2$ mentre i polarizzatori sulla linea del pump e del probe rimangono fissi. Tali polarizzatori, inoltre, sono incrociati tra loro (in particolare, quello sulla linea di pump è verticale, mentre quello sulla linea di probe è orizzontale) per evitare che sul campione, dove i due raggi sono spazialmente sovrapposti, si possano verificare fenomeni di interferenza e, come già detto, per evitare ad eventuali contributi luminosi provenienti dal pump di entrare nel fotodiodo. Inoltre, è altrettanto importante che la potenza del probe sia minore di quella del pump, in modo tale che il fascio di probe non produca anch'esso un riscaldamento apprezzabile dei dots, andando quindi ad influenzare la dinamica da analizzare.

Una volta verificato l'allineamento di tutti gli elementi ottici, prima di iniziare le misure, occorre trovare la coincidenza spaziale e temporale dei

fasci di pump e di probe sul campione. Questa procedura, che va ripetuta ogni volta che si modifica il campione da analizzare, è di estrema importanza in ogni sistema di pump&probe.

In particolare, per la coincidenza spaziale si agisce sulle regolazioni di posizione e orientamento degli specchi e delle lenti convergenti tenendo monitorata la posizione dei due spot sul campione attraverso la telecamera, mentre per la coincidenza temporale si deve agire sulla slitta motorizzata. Per la determinazione della coincidenza temporale si utilizza un cristallo non lineare, posizionato al posto del campione stesso. Sostituito poi il campione al cristallo è sufficiente solo un piccolo aggiustamento della posizione dei due spot per ritrovare la coincidenza spaziale.

Coincidenza spaziale

Trovare la coincidenza spaziale tra due fasci significa fare in modo che essi raggiungano la stessa area del campione; in particolare, dal momento che il pump è più largo del probe, si deve fare in modo che il probe sia centrato nell'area eccitata dal pump. La posizione degli spot è tenuta sotto controllo da un microscopio, al quale è collegata una telecamera digitale interfacciata con il computer. Agendo sulle regolazioni (x,y,z) della telecamera, si individuano i due spot sul campione ed agendo sia sugli specchi che sulle lenti convergenti del set-up si avvicinano tra loro i due spot fino a sovrapporli. Questa parte di allineamento è relativamente semplice; la parte più laboriosa, invece, consiste nel garantire tale allineamento anche durante il moto della slitta. Infatti, anche piccoli spostamenti dei due spot possono compromettere la misura, in quanto è possibile che il probe colpisca una parte di campione non più completamente illuminata dal pump. Quindi, per evitare questo problema abbiamo realizzato un sistema di *feedback* in modo da minimizzare lo spostamento relativo tra pump e probe e garantire così che il fascio di probe non esca dall'area colpita dal pump. In particolare, abbiamo utilizzato ³ due specchi mossi da motori piezoelettrici e controllati da un computer per mantenere allineati con continuità i due fasci sul campione. Abbiamo implementato il sistema di retroazione utilizzando

³Per definire la posizione di un fascio di luce è necessario fissare due punti nello spazio

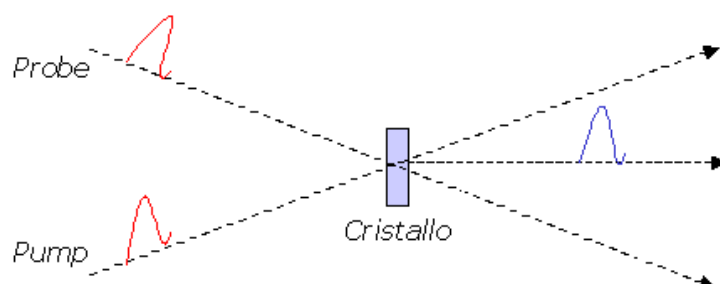


Figura 3.13: Produzione di seconda armonica nel cristallo non lineare

due fotodiodi a quadranti su cui viene operato, rispettivamente, l'imaging dello spot su uno dei due specchi e dello spot sul campione impiegando due vetri e due telescopi.

Coincidenza temporale ed autocorrelazione

Determinata la coincidenza spaziale occorre trovare quella temporale. Per fare questo si utilizza un cristallo non lineare trasparente (β -BaB₂O₄ di tipo I). Incidendo con un fascio di luce impulsato con una particolare incidenza rispetto alla superficie, il cristallo produce un fascio di radiazione collineare con frequenza doppia (seconda armonica) di quella incidente che fuoriesce dal cristallo. Il cristallo viene posizionato sul portacampioni e su di esso si allineano spazialmente gli spot di pump e di probe.

I due fasci di seconda armonica uscenti dal cristallo e prodotti dal pump e dal probe sono facilmente visibili. In prossimità della coincidenza, la condizione di conservazione del numero d'onda nel processo di conversione causa la comparsa di un terzo fascio (colore blu) in uscita la cui intensità è proporzionale alla cross-correlazione temporale degli impulsi dei due fasci (in questo caso all'autocorrelazione dell'impulso laser) (vedi figura 3.13). Massimizzando questa intensità si ottiene la condizione di coincidenza spaziale e temporale richiesta.

Misurando l'intensità di questo fascio in funzione del ritardo si ottiene, inoltre, il profilo di autocorrelazione dell'impulso prodotto dal laser in dipen-

denza del ritardo:

$$I_{corr}(t) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I(t')I(t-t')dt' \quad (3.12)$$

Fissando la forma funzionale di $I(t)$ è possibile risalire al valore della larghezza a mezza altezza σ_t dell'impulso ottenendo, quindi, una misura della durata dell'impulso stesso. Ipotizzando un profilo temporale gaussiano per l'impulso e misurando la $\text{FWHM}_{\text{corr}}$ del profilo di autocorrelazione si ottiene:

$$\sigma_t = \frac{1}{\sqrt{2}}\text{FWHM}_{\text{corr}} \quad (3.13)$$

In particolare si ottiene $\text{FWHM} = 162$ fs e quindi l'impulso ha una durata temporale di 115 fs.

Dopo aver allineato la linea di ritardo e trovato la coincidenza di pump e probe si sostituisce il cristallo non-lineare con il campione ponendolo nella stessa posizione rispetto al resto del set-up sperimentale. Per far questo si usano i due fasci come riferimento: in condizione di coincidenza (temporale) essi si dovranno sovrapporre sulla superficie del campione.

Capitolo 4

Risultati e discussione dati

4.1 Risultati ed analisi dei dati di microscopia

4.1.1 Procedure di preparazione del campione

Prima di essere inserito nel microscopio, il campione è stato appositamente fissato al porta campione¹ per essere magnetizzato in aria vista l'estrema delicatezza del substrato di Si_3N_4 del campione. La magnetizzazione è stata realizzata tramite un magnete permanente di circa 0.7 T utilizzato in geometria planare, ossia avvicinando il magnete lateralmente rispetto all'array di nanodots e poi allontanandolo allo stesso modo.

Il porta campione è stato poi inserito nella camera intermedia compresa tra le due camere principali che alloggiavano le ottiche. La pressione all'interno del microscopio è stata fatta scendere molto lentamente per evitare la rottura del substrato di Si_3N_4 dovuta ad una possibile differenza di pressione tra le due camere. Le pressioni delle camere sono state quindi monitorate attentamente durante l'intero processo di pompaggio fino a raggiungere un valore finale di pressione pari a 10^{-6} mbar.

¹Il porta campione è costituito da un disco di alluminio con un foro al centro dell'ordine di qualche millimetro entro cui il campione deve essere centrato. È studiato in modo tale da poter essere fissato e rimosso con facilità dal suo modulo semimovibile installato tra le due camere del microscopio, senza però perdere l'allineamento con l'asse ottico del microscopio, minimizzando quindi il lavoro di riallineamento del sistema e, più in particolare, del campione. Tale procedura deve essere comunque ripetuta a causa di un errore spaziale non trascurabile nel fissaggio del campione realizzato dall'utente

L'energia di picco della beamline è stata monocromatizzata sulla soglia L_3 di assorbimento del ferro (707 eV) per massimizzare il contrasto.

Il campione è stato posizionato in modo tale che il fascio incida perpendicolarmente alla superficie dei dots. In queste condizioni ci si aspetta un contrasto magnetico nelle zone dei dots in cui i momenti magnetici sono diretti perpendicolarmente alla superficie (parallelamente al fascio).

Come detto prima, una volta inserito un nuovo campione nella camera intermedia del microscopio occorre procedere al riallineamento delle ottiche. Si è supposto che le ZP e la OSA, non essendo state mosse, fossero già sull'asse ottico e quindi si è spostato il campione sul piano ortogonale all'asse ottico con dei piccoli movimenti a spirale, fino ad ottenere l'array di dots all'interno del campo visivo.

4.1.2 Acquisizione delle immagini in modalità full field

Sono state acquisite le prime immagini con un tempo di esposizione breve (5-30 secondi). In questo caso si nota come il contrasto dovuto alla presenza di ferro nei dots sia evidente, mentre la messa a fuoco sia ancora da ottimizzare. Spostando la MicroZP lungo l'asse ottico si sono ottenute diverse immagini in diverse condizioni di focalizzazione con tempo di esposizione di 30 secondi per velocizzare il processo. Una volta trovata la posizione della MicroZP che massimizza la messa a fuoco si acquisisce l'immagine dell'array di nanodots.

In questo caso, nonostante la risoluzione sia migliorata ottimizzando la messa a fuoco e nonostante il contrasto dovuto alla presenza di ferro sia buono, la risoluzione è ancora troppo bassa per poter vedere l'eventuale differenza di contrasto al centro dei dots dovuta ad un'eventuale fase di magnetizzazione a vortice: occorre quindi spostare il rivelatore CCD per aumentare la risoluzione² allontanandolo di circa 2 metri rispetto alla posizione iniziale.

Le prime immagini acquisite con CCD allontanato risultano ovviamente sfocate. La messa a fuoco viene realizzata cambiando la posizione della Mi-

²Dal momento che il segnale proveniente dalla MicroZP ha una divergenza angolare fissata si capisce intuitivamente come l'immagine acquisita con il rivelatore posto ad una distanza maggiore risulti ingrandita e di conseguenza come la risoluzione del microscopio aumenti

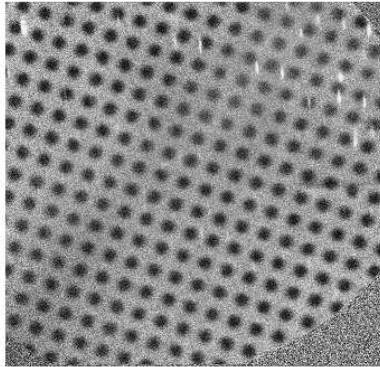


Figura 4.1: Immagine acquisita in modalità full field con energia 707 eV, con polarizzazione circolare destra e tempo di esposizione pari a 2 minuti

croZP sull'asse ottico del microscopio; trovata la posizione ottimale per il focusing con un tempo di esposizione di 30 secondi, si sono acquisite immagini con tempi di esposizione di 2 minuti.

Prima di effettuare un imaging del campione è opportuno eseguire un *background correction*, ossia fare un imaging con il campione fuori dal campo visivo e poi sottrarre tale informazione dall'immagine acquisita con il campione nel campo visivo. In questo modo, le immagini sono nettamente migliori in quanto vengono eliminati i rumori di fondo (il tempo di esposizione dell'imaging del background deve essere chiaramente uguale al tempo di esposizione dell'effettiva misura sul campione).

Dall'immagine ottenuta non si riesce a vedere nessun contrasto dovuto al momento magnetico di un'eventuale magnetizzazione con fase a vortice. Quindi, per cercare di mettere in evidenza la possibile presenza di una tale fase si è passati a cambiare alcuni parametri.

4.1.3 Acquisizione delle immagini in modalità full field con cambio di polarizzazione e di energia

La polarizzazione del fascio di fotoni viene cambiata da circolare destra ($\Phi = +9.28$ mm) a circolare sinistra ($\Phi = -9.28$ mm); questo perchè nonostante una prima analisi non evidenzi nessuno spot al centro del vortice, potrebbe essere presente comunque una leggera differenza di intensità al centro del dot e, quindi, dopo un cambio di polarizzazione tale lieve differenza dovrebbe

invertirsi. Successivamente si è anche provveduto a cambiare l'energia del fascio di fotoni, per verificare che effettivamente l'energia si trovasse sulla soglia L_3 di assorbimento del ferro.

Di seguito si riportano le immagini con le diverse polarizzazioni e a diverse energia:

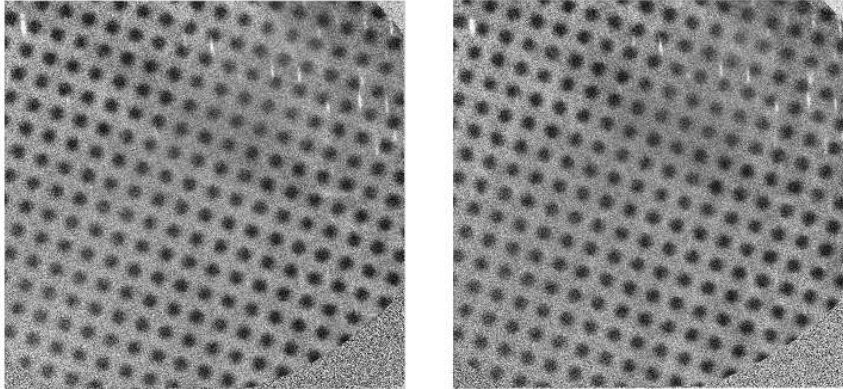


Figura 4.2: Immagini acquisite in modalità full field con energia 707 eV e polarizzazione circolare destra (a destra) e sinistra (a sinistra). Il tempo di esposizione per entrambe le immagini è di 2 minuti

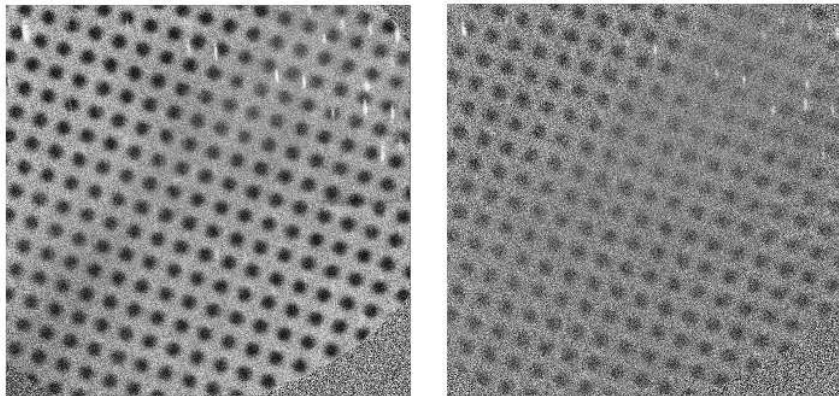


Figura 4.3: Immagini acquisite in modalità full field con energia 707 eV (a sinistra) e 699 eV (a destra), polarizzazione circolare destra e tempo di esposizione di 2 minuti

Osservando le immagini ottenute è evidente che il contrasto migliora quando l'energia è maggiore o uguale alla soglia di assorbimento del ferro,

mentre sotto la soglia il contrasto è nettamente peggiore. Non sembrano, invece, esserci differenze tra polarizzazione circolare destra e sinistra.

4.1.4 Limitazioni e problemi

La modalità full field si è dimostrata efficace per quel che riguarda l'imaging del sistema in esame; tuttavia, sono presenti altre possibilità che sono state a loro volta prese in considerazione.

Innanzitutto il TwinMic offre la possibilità di operare in modalità scanning. Tale modalità non è stata utilizzata per i seguenti motivi:

- la modalità scanning non presenta dei vantaggi in termini di risoluzione laterale rispetto alla modalità full field; le due modalità di imaging sono comparabili e si attestano su valori prossimi a (100-150)nm
- in modalità scanning le eventuali variazioni della posizione del campione lungo l'asse del microscopio risultano più dannose, per quel che riguarda la focalizzazione, rispetto alla modalità full field

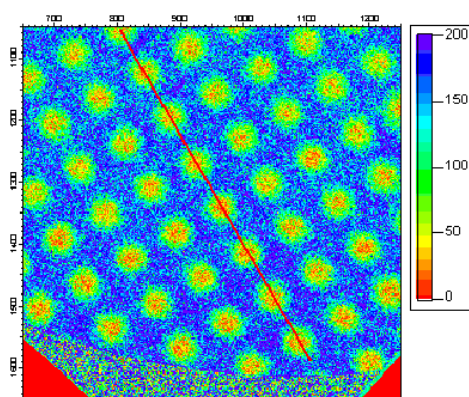
Inoltre, in modalità scanning si inclina il campione rispetto al caso di incidenza normale della modalità full field. In particolare, in modalità scanning, il nuovo setup può eventualmente aiutare nell'imaging della fase a vortice dando la possibilità di distinguere tra le diverse orientazioni dei momenti nel piano del dot stesso. Questo perché in tale configurazione parte dei momenti del vortice si trovano ad avere una componente non nulla della magnetizzazione diretta parallelamente (o anti-parallelamente) al fascio di fotoni incidenti. Tuttavia, tale tipo di misura non è stata eseguita in quanto la profondità di fuoco è risultata essere di circa $4 \mu\text{m}$, valore che rende impossibile una simultanea focalizzazione di tutto l'array di dots una volta inclinato il campione.

Infine, si è verificata la presenza di instabilità sul substrato di nitruro di silicio sia di natura meccanica che termica. La prima è dovuta a vibrazioni indotte da fattori esterni quali pompe da vuoto e rumore ambientale, mentre la seconda è dovuta a un riscaldamento locale del substrato a causa del fascio di fotoni incidente. Per ovviare a queste ultime due problematiche la

soluzione sarà, in futuro, quella di utilizzare substrati più spessi, passando dai 25 nm utilizzati ad almeno 75 nm.

4.1.5 Analisi dei dati di microscopia

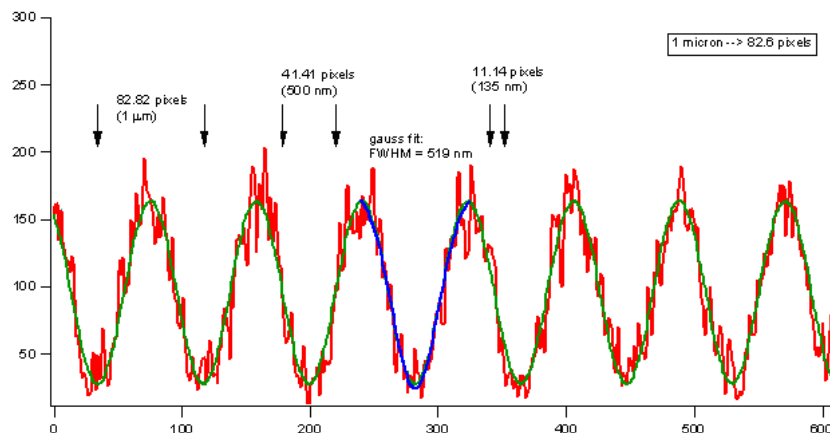
È riportata di seguito l'immagine acquisita a 707 eV mostrata in precedenza ed opportunamente modificata e ingrandita:



Come si può osservare, sembrano esserci dots per i quali l'intensità della zona centrale è diversa rispetto ad altri (dot marcati con *). Pur essendo da verificare questo potrebbe essere un segnale di una diversa magnetizzazione della fase a vortice. Al contrario, le misure effettuate a polarizzazioni circolari opposte non mostrano sostanziali differenze tra loro (l'analisi di tali immagini non è riportata). Questa osservazione è in disaccordo con la conclusione appena tratta e lascia, di conseguenza, aperta l'interpretazione delle immagini acquisite. In futuro sarà necessario eseguire misure a maggior risoluzione spaziale su campioni in cui la fase a vortice è sicuramente presente, cercando di evidenziare eventuali differenze al variare della polarizzazione della luce incidente.

Riportando in grafico il profilo della linea segnata si possono avere informazioni sulle dimensioni dei dots e la risoluzione del TwinMic.

Il profilo ottenuto è stato fittato con una curva sinusoidale, mentre per il singolo dot si ha utilizzato un profilo gaussiano. Si nota come i dots siano effettivamente di diametro attorno ai 500 nm. Inoltre la risoluzione spaziale del microscopio può essere stimata attorno ai 135 nm e quindi in accordo con le previsioni teoriche relative allo strumento.



4.1.6 Discussione dei dati di microscopia

Le immagini ottenute in modalità full field, seppure ottime in quanto a contrasto, non sembrano rivelare la presenza della fase di magnetizzazione a vortice cercata e questo potrebbe essere dovuto a due principali fattori:

- la risoluzione del microscopio, in queste condizioni, non è sufficiente a distinguere lo spot al centro del vortice e metterlo in evidenza rispetto al resto del dot
- la fase di magnetizzazione a vortice non è effettivamente presente

La risoluzione spaziale del microscopio è un elemento su cui già si sta lavorando in modo da poter essere migliorata in futuro tramite la fabbricazione di nuove ZP. Infatti essa dipende direttamente dallo spessore della zona più esterna della ZP di focalizzazione: minore è tale valore, migliore sarà la risoluzione laterale.

Dal punto di vista tecnologico, però, la realizzazione di ZP con zona esterna molto ridotta (30 nm) è resa problematica in caso di diametri della ZP grandi (200 nm). Questi ultimi, d'altra parte, risultano necessari in misure simili a quelle presentate per non limitare ulteriormente il flusso di fotoni incidenti sul campione.

La possibile assenza di fase di magnetizzazione a vortice può essere imputabile ad una errata magnetizzazione, dovuta all'assenza, per i campioni in nostro possesso, di un ciclo di isteresi specifico sperimentalmente determinato. Tali dati sono però molto importanti come punto di partenza per

decidere le modalità di misure future (anche risolte in tempo) e per decidere le dimensioni e la dislocazione di nuovi campioni.

Infine, dall'analisi delle immagini è stato possibile risalire alla risoluzione spaziale del microscopio (135 nm). Per poter sfruttare tale risoluzione nello studio delle proprietà magnetiche dei nanodots, sarà necessario esaminare dots con dimensioni più grandi (circa 1 μm di diametro), disposti su substrati più spessi (75 nm) in modo da garantire una maggiore manovrabilità e versatilità d'impiego.

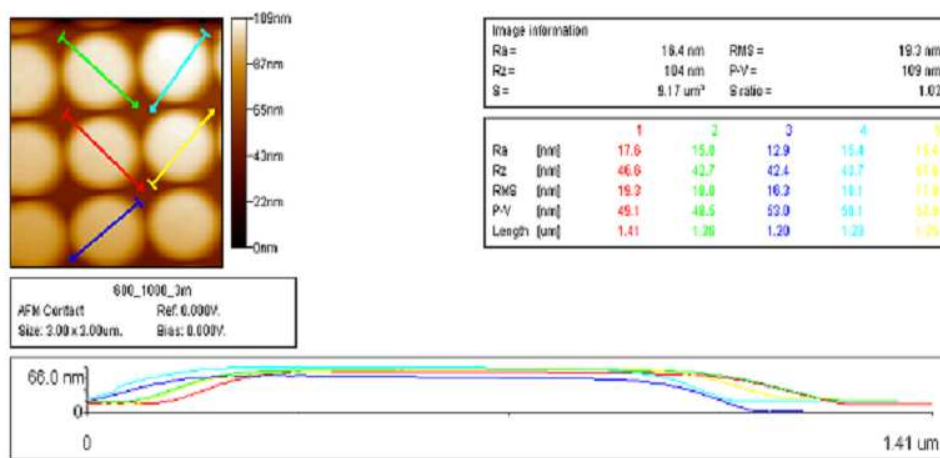
4.2 Caratterizzazione dei campioni tramite microscopia *AFM*

La caratterizzazione morfologica della matrice di nanodots è stata fatta solo per i campioni di magneto-ottica. La conoscenza delle esatte dimensioni dei dots dei campioni utilizzati è, infatti, importante per comprendere il legame esistente tra le dimensioni dei dots e le proprietà dinamiche degli stessi. La tecnica più veloce per effettuare scansioni di superfici con risoluzione nanometrica è la microscopia a forza atomica (vedi capitolo 2).

A partire dalle immagini acquisite, abbiamo determinato le dimensioni caratteristiche (diametro, passo, altezza o spessore, diametro) dei nanodots nel seguente modo.

Per la stima del passo (spaziatura tra i centri di due dot adiacenti), si effettua la trasformata di Fourier dell'immagine della matrice dei dots. Nello spazio k della trasformata, la distanza tra due picchi corrisponde all'inverso della distanza tra i dots moltiplicata per un fattore 2π . Il vantaggio di operare in questo modo sta nel fatto che il risultato è mediato tra tutti i dots presenti nell'immagine di cui è stata fatta la trasformata, e permette quindi una precisione nettamente superiore rispetto a quella ottenibile da una semplice misura della distanza tra i dots.

La stima dell'altezza dei dots si effettua attraverso una funzione integrata nel programma di gestione dell'AFM, che riconosce, attraverso le gradazioni di grigio dell'immagine acquisita, la distanza di ciascun punto dal livello zero. Il programma effettua anche una trasformata di Fourier dell'altezza



dei dots in funzione della posizione, restituendo quindi anche in questo caso un risultato mediato e per questo più preciso. L'altezza è stata ottenuta come differenza tra l'altezza media dei dots e la distanza del substrato dallo zero.

Per la stima del diametro medio di ogni singolo dot si calcola, attraverso il programma di gestione dell'AFM, l'area occupata dai dots ad una altezza data dalla somma del *background* più l'80% dell'altezza media dei dots. Contando il numero di dots contenuti nell'area considerata, si ricava il diametro medio dei dots a partire dall'area media di ciascun dot, ottenuta dal rapporto tra l'area totale misurata ed il numero di dots presenti.

Per quanto riguarda il campione utilizzato per le misure di magneto-ottica, le misure AFM indicano valori in disaccordo rispetto a quelli nominali. In particolare, si ottengono i seguenti valori: diametro pari a (785 ± 10) nm rispetto ai 600 nm nominali, altezza pari a (50.7 ± 1) nm e passo pari a 1 μm .

4.3 Risultati ed analisi dei dati di magneto-ottica

4.3.1 Procedure di preparazione del campione

Per poter effettuare misure di magneto-ottica il campione deve essere posizionato tra le espansioni di un magnete. Questo, però, crea una serie di problemi come, per esempio, la raccolta del segnale da parte del fotodiode a causa di spazi ristretti, la posizione del campione più alta rispetto alla sorgente laser ed ancora la ricerca di nuovi elementi di sostegno del campione diversi da quelli che vengono usualmente utilizzati. Per risolvere quest'ultimo problema abbiamo utilizzato solo materiali di alluminio (materiale non magnetico) per evitare spostamenti del campione una volta applicato il campo magnetico esterno. In particolare abbiamo fissato alla base della copertura dell'elettromagnete una slitta sulla quale abbiamo posto a sua volta un'asta di alluminio alla cui estremità si trova un ruotatore con l'alloggiamento per il campione (figura 4.4). Questo sistema di montaggio ci ha permesso di avere tutti i gradi di libertà possibili (avanzamento, arretramento, inclinazione e rotazione).



Figura 4.4: Sistema di posizionamento del campione tra le espansioni dell'elettromagnete

4.3.2 Acquisizione dati MOKE

Per studiare le proprietà magnetiche statiche del campione abbiamo realizzato misure MOKE in geometria longitudinale seguendo il set-up descritto precedentemente (vedi figura 3.9).

L'intensità luminosa dello spot del primo ordine di diffrazione viene raccolta da un fotodiodo che è collegato ad uno dei canali di input di un amplificatore lock-in. Quest'ultimo misura la tensione della componente di segnale alla frequenza uguale al riferimento in uscita dal PEM. Infatti, il segnale rilevato contiene diverse informazioni: la componente a 50 kHz è proporzionale all'ellitticità del fascio di luce mentre la componente a frequenza doppia (100 kHz) è proporzionale alla rotazione del fascio di luce. Così, nelle nostre misure abbiamo acquisito la componente del segnale a 50 kHz ottenendo un ciclo di isteresi statico la cui forma dà informazioni dettagliate sul meccanismo secondo cui la magnetizzazione, entro ciascun nanodot, varia sotto l'azione di un campo magnetico esterno.

Il campo magnetico (valore massimo 1.2 T) viene generato da un elettromagnete (GMW, modello *5403FG*) che è alimentato da un generatore di corrente-tensione (PowerTen, modello *P62B-3066*) in grado di fornire una corrente massima di 66 A ed una tensione massima di 30 V. Per controllare l'output massimo di alimentazione del generatore corrente-tensione e gli altri parametri sperimentali si utilizza un programma di LabView sviluppato appositamente.

Il verso della corrente fornita all'elettromagnete, e quindi il verso del campo magnetico applicato, può essere invertito tramite uno *switch* (GMW, modello *5970-160*).

Per poter costruire il ciclo di isteresi risulta necessario scrivere un programma di LabView che comandi gli strumenti di misura nel seguente modo. Impostato il valore massimo di corrente, il programma costruisce il ciclo di isteresi portando la corrente dal massimo impostato allo zero (primo quadrante), poi invertendo la corrente va dallo zero al massimo negativo (terzo quadrante) e dal massimo negativo allo zero (secondo quadrante), ed infine invertendo ancora la corrente va dallo zero al massimo positivo (primo quadrante). I parametri che possono essere impostati a piacere per ogni misura

sono il numero di punti per quadrante, il numero di cicli da raccogliere per effettuare la media ed il tempo d'attesa dipendente dalla costante di integrazione dell'amplificatore lock-in.

4.3.3 Analisi e discussione dei dati MOKE

Sono stati acquisiti vari cicli di isteresi in diverse configurazioni sperimentali (variando la terminazione del segnale, in modalità fotovoltaica) in modo da poter scegliere quella che poteva offrire il segnale meno rumoroso.

La migliore configurazione trovata è quella di acquisire il segnale, in modalità differenziale, terminandolo con una resistenza di $1\text{ k}\Omega$. Qui di seguito si riporta il ciclo di isteresi ottenuto mediando 30 cicli (ogni ciclo acquisisce 30 punti per quadrante) in un range di corrente tra le bobine dell'elettromagnete pari a $\pm 7\text{ A}$, corrispondenti a $\pm 130\text{ mT}$:

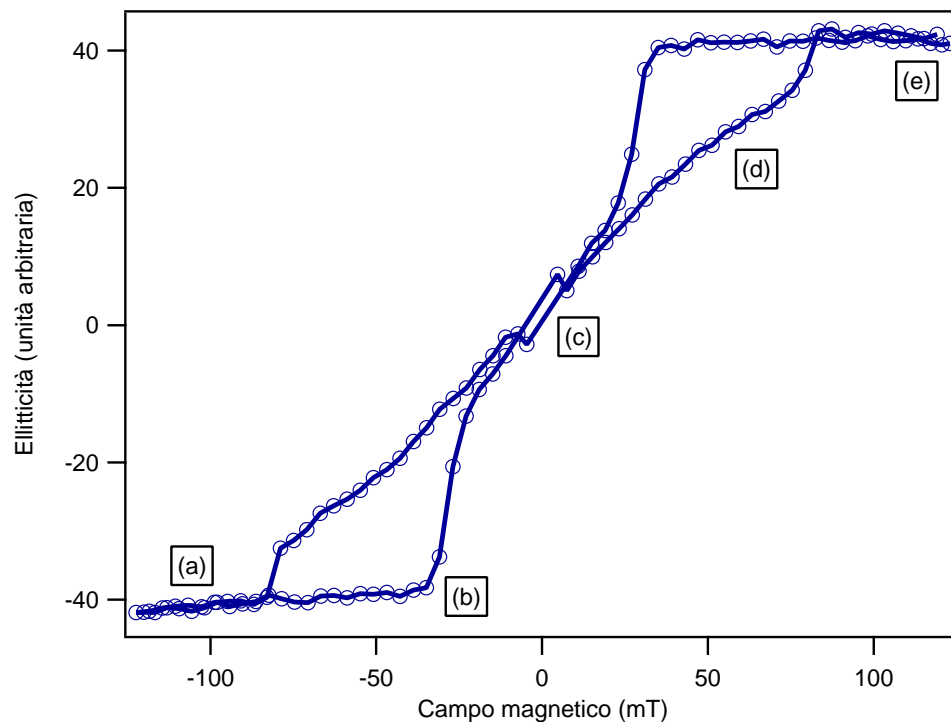
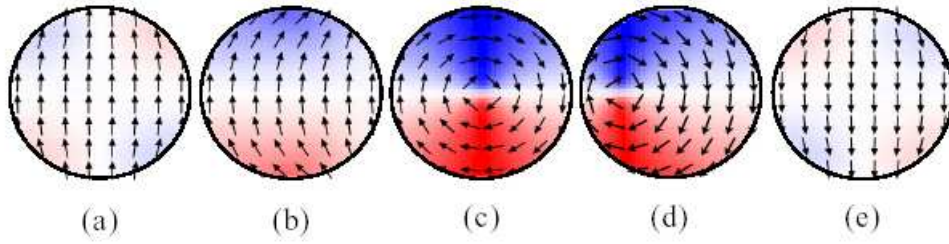


Figura 4.5: Variazione dell'ellitticità in funzione del campo magnetico applicato esternamente ($D_{dot} = 785\text{ nm}$). Le lettere (a,b,c,d,e) indicano le varie fasi di evoluzione della magnetizzazione



L'alta definizione delle tecniche litografiche permette di considerare tutte le particelle dell'array virtualmente identiche. In questo modo le proprietà medie misurate per la matrice di nanodot possono essere anche interpretate come proprietà individuali di un singolo dot. Il ciclo di isteresi ottenuto (figura 4.5) dà informazioni sullo stato magnetico alla rimanenza (campo magnetico nullo) e sul meccanismo secondo cui la magnetizzazione, entro ciascun nanodot, varia sotto l'azione di un campo magnetico esterno.

Infatti, come il campo magnetico applicato viene diminuito dalla zona di saturazione negativa, i nanodots conservano un momento proprio (fase a singolo dominio)(a) fino all'inizio della nucleazione dei vortici(b). La comparsa di una configurazione a vortice (fase a vortice)(c) si ha in prossimità di valori di campo quasi nulli. In questa fase, il ciclo di isteresi è caratterizzato da una zona lineare in cui la magnetizzazione rimane parallela o antiparallela in prossimità di tutti i punti più vicini al bordo del dot stesso. Tuttavia, la discrepanza dall'andamento lineare è dovuta semplicemente al meccanismo di acquisizione dati, ed in particolare al tempo necessario allo switch ad invertire il verso della corrente prima che il lock-in abbia acquisito il segnale di ellitticità.

Aumentando il campo magnetico, il vortice si deforma in modo che il suo centro viene spinto lontano dal centro geometrico del dot (d). Il vortice diventa, quindi, instabile e viene completamente annichilato a valori di campo relativamente alti dove si raggiunge la zona di saturazione positiva (e).

Inoltre, abbiamo simulato un ciclo di isteresi tramite un programma di simulazione micromagnetica che calcola gli automodi magnetici di un singolo nanodot tenendo conto dell'interazione di scambio e di dipolo in presenza di un campo magnetico esterno. Il profilo del ciclo di isteresi ottenuto è

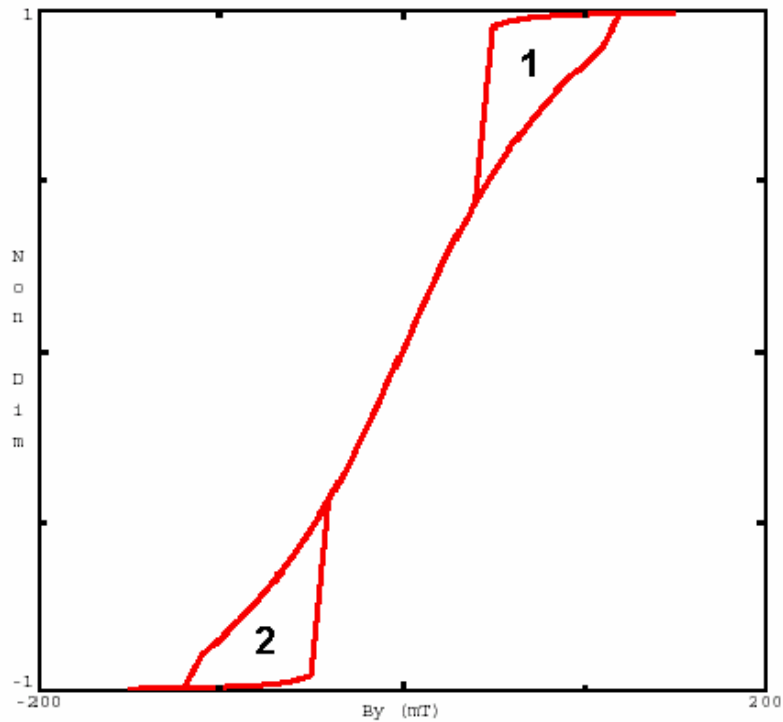


Figura 4.6: Ciclo di isteresi statico ottenuto con simulazione micromagnetica ($D_{dot} = 600 \text{ nm}$)

mostrato in figura 4.6.

La simulazione micromagnetica è stata effettuata per dot con diametro pari a 600 nm, altezza pari a 50 nm e passo pari a 1000 nm. Occorre tener conto che in un dot reale, i campi di nucleazione e di annichilizzazione del vortice sono sempre un pò anticipati a causa di difetti di fabbricazione. In questo modo, si può riuscire ad ottenere la saturazione del dot con un campo pari a 100 mT o poco più, ed ottenere così un ciclo di isteresi con le zone (1) e (2) più ristrette rispetto a quelle ottenute nella nostra simulazione micromagnetica.

Inoltre, il ciclo di isteresi ottenuto sperimentalmente mostra come le zone (1) e (2) sono più vicine tra di loro. Questo comportamento è dovuto essenzialmente all'interazione magnetica tra i dot che risultano essere molto vicini tra loro [37].

4.3.4 Acquisizione dati TR-MOKE

Per studiare le proprietà magnetiche dinamiche del campione abbiamo realizzato misure MOKE risolte in tempo in geometria longitudinale seguendo il set-up descritto precedentemente (vedi figura 3.12).

Utilizzando la tecnica pump&probe siamo in grado di analizzare lo stato dinamico del sistema dopo un intervallo di tempo dall'eccitazione del sistema.

Le misure effettuate consistono, infatti, nell'acquisizione dell'ellitticità del primo ordine di diffrazione in funzione del ritardo temporale tra pump e probe. Raccogliamo, quindi, la variazione di ellitticità in funzione dell'intervallo di tempo trascorso a partire dall'eccitazione del sistema attraverso l'impulso di pump.

L'energia degli impulsi di pump è di 10 nJ mentre l'energia degli impulsi di probe è minore di 1 nJ. A causa della piccola variazione di ellitticità che deve essere misurata si utilizza una tecnica a doppio lock-in per aumentare la sensibilità della misura e permettere, così, una completa e rapida caratterizzazione delle proprietà magnetiche dinamiche del campione. In particolare, in questa configurazione, un modulatore meccanico modula l'intensità del fascio di pump a 150 Hz mentre un modulatore fotoelastico modula l'intensità del probe a 50 kHz.

Il sistema di acquisizione, partendo dalla situazione in cui i due fasci sono temporalmente coincidenti, acquisisce il segnale, quindi sposta la posizione della slitta motorizzata di una quantità definita, e procede con una nuova acquisizione.

In questo modo abbiamo acquisito quattro cicli dinamici spostandoci dalla coincidenza pump-probe in avanti ed indietro, rispettivamente per due volte ossia di 1.9 μm . Il fascio di luce percorre la linea di ritardo per quattro volte, per cui il ritardo temporale introdotto è pari a 26 fs.

4.3.5 Analisi e discussione dei dati TR-MOKE

Utilizzando lo stesso programma di acquisizione precedentemente descritto per le misure MOKE, ogni ciclo dinamico è stato ottenuto facendo la media di 40 cicli ed acquisendo 30 punti per quadrante per ogni ciclo.

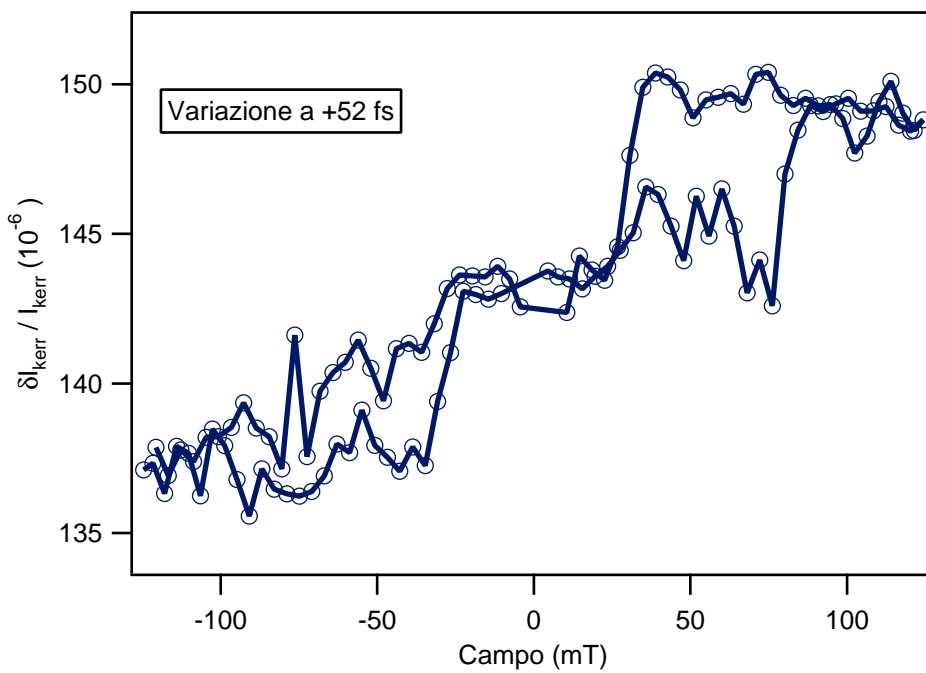
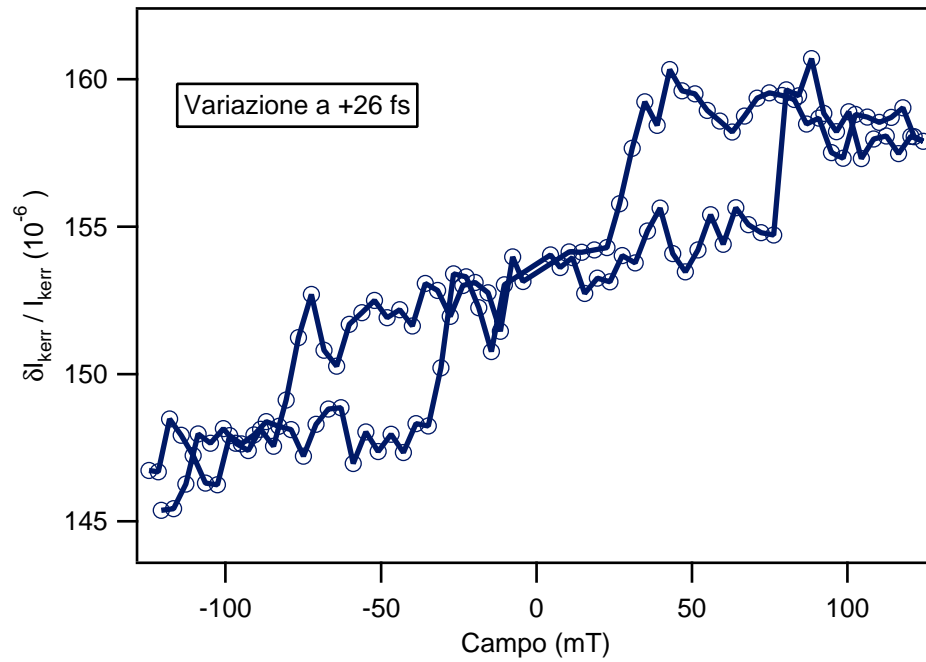


Figura 4.7: Cicli di isteresi dinamici ottenuti a ritardi positivi

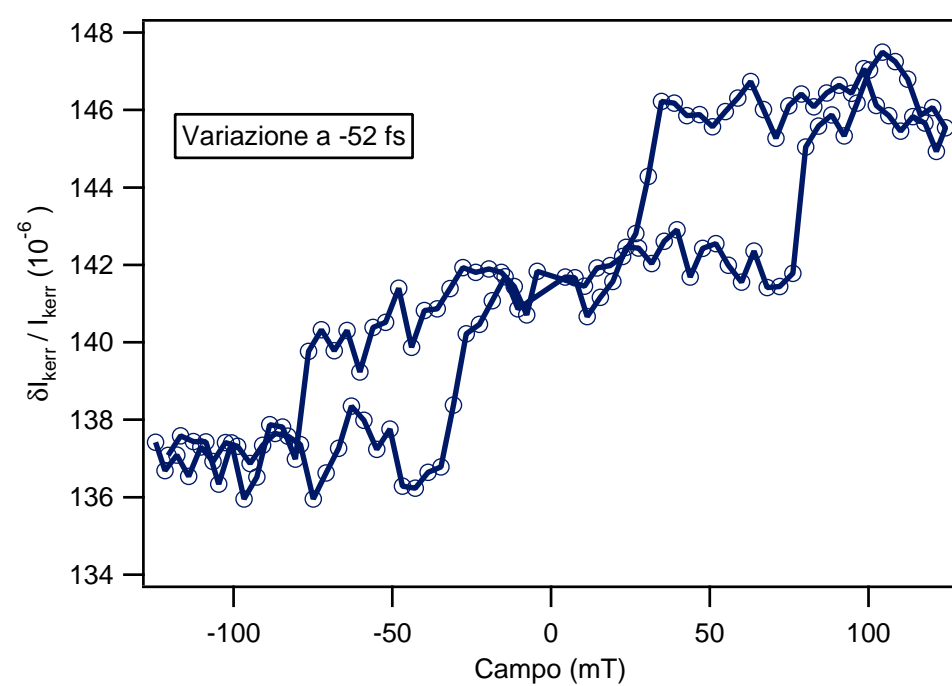
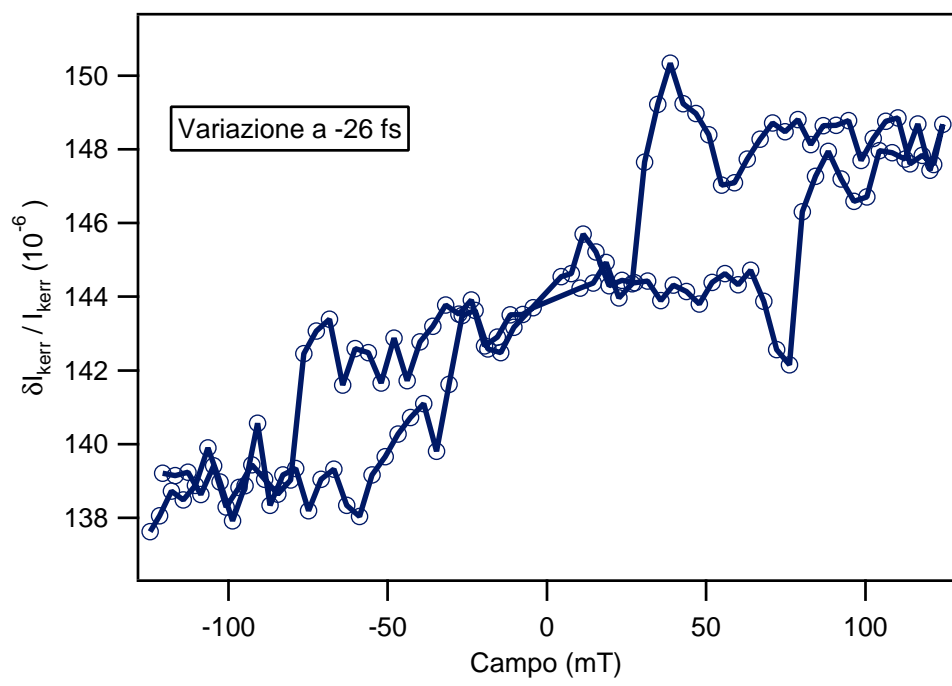


Figura 4.8: Cicli di isteresi dinamici ottenuti a ritardi negativi

Per completezza viene mostrato qui di seguito anche il ciclo di isteresi dinamico ottenuto in coincidenza dei fasci di pump-probe.

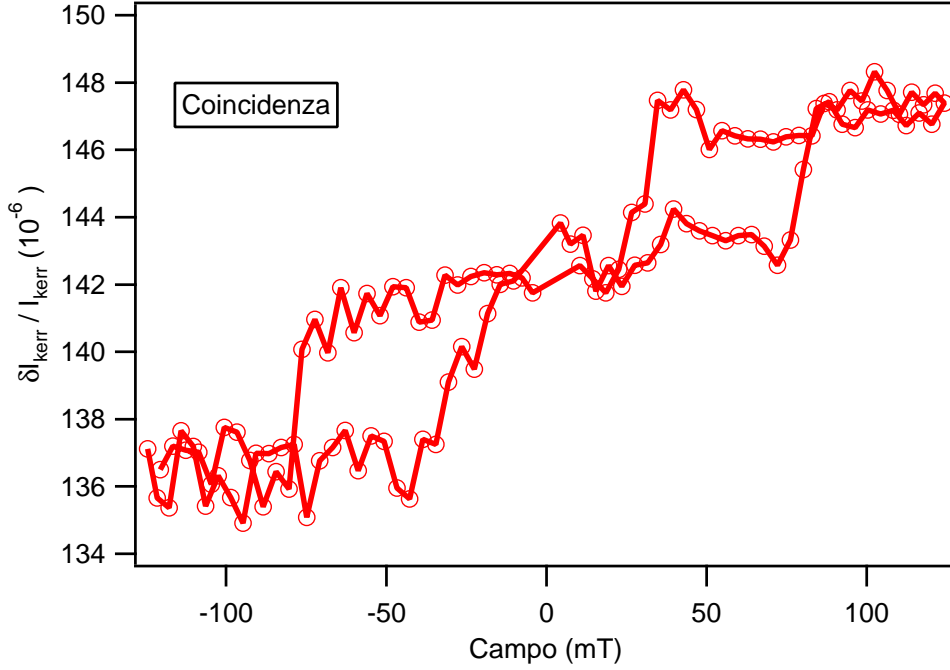


Figura 4.9: Ciclo di isteresi dinamico ottenuto in coincidenza di pump-probe

I cicli di isteresi dinamici ottenuti mostrano una variazione di segnale dieci volte più piccola dell'*offset* ($1.5 \cdot 10^{-6}$). In particolare, a partire dalla zona di saturazione negativa si osserva un andamento costante fino a valori di campo pari a -40 mT. Diminuendo ancora il campo si nota una variazione del segnale seguita nuovamente da un tratto costante che si protrae fino a valori di campo pari a circa 80 mT. Aumentando il campo si nota nuovamente una variazione di segnale fino al raggiungimento della zona di saturazione positiva caratterizzata da un andamento costante.

Come già detto (vedi sezione 3.2.2), il segnale Kerr, I_{Kerr} , rilevato dal primo lock-in, con riferimento a 50 kHz, è proporzionale a:

$$I_{Kerr} \propto J_1(\Delta) \text{Im}(r_{pp}^* r_{sp}) \quad (4.1)$$

Nella configurazione longitudinale, il segnale Kerr associato al primo

ordine di diffrazione è ottenuto sostituendo, rispettivamente, i coefficienti di Fresnel [6] con:

$$r_{pp}^* = f_1 r_{pp}^* \text{ ed } r_{sp} = f_1^m r_{sp}^m \quad (4.2)$$

dove r_{pp}^* e r_{sp}^m sono, rispettivamente, il coefficiente non magnetico e il coefficiente magnetico del tensore di riflettività, f_1 ed f_1^m sono, rispettivamente, il fattore di forma geometrico del primo ordine ed il fattore di forma magnetico assumendo che la magnetizzazione parallela al piano di incidenza, m_{\parallel} , sia costante nel volume del dot. I due fattori di forma sono dati dai seguenti integrali effettuati sulla superficie S del dot:

$$f_1 = \int_S e^{-i\vec{r}\vec{q}} ds \quad (4.3)$$

$$f_1^m = \int_S m_{\parallel} e^{-i\vec{r}\vec{q}} ds \simeq m_{\parallel} f_1 \quad (4.4)$$

Nel nostro set-up, il secondo lock-in registra la variazione del segnale magneto-ottico, δI_{Kerr} , indotta dall'eccitazione del pump:

$$\delta I_{Kerr} = \delta R + \delta M = \delta R + K J_1(\Delta) \delta [Im (f_1 r_{pp}^* f_1^m r_{sp}^m)] \quad (4.5)$$

dove δR è il contributo non magnetico derivante dalla variazione di temperatura del campione alla frequenza di modulazione del pump (150 Hz). Perciò, δR è proporzionale al segnale di riflettività. Invece, δM è proporzionale al coefficiente Kerr K , alla funzione di Bessel $J_1(\Delta)$ ed alla variazione di riflettività.

Nelle nostre misure abbiamo acquisito la variazione, indotta dal pump, dei cicli di isteresi come funzione del ritardo degli impulsi di pump e di probe per un campione con $D_{dot} = 785$ nm. Poichè δM è proporzionale alla magnetizzazione m_{\parallel} la forma delle variazioni misurate dei cicli di isteresi (vedi figure 4.7, 4.8) è abbastanza simile alla forma del ciclo di isteresi statico (vedi figura 4.5) dal momento che δI_{Kerr} dipende dalla magnetizzazione del campione.

Per ottenere informazioni sulla dinamica di magnetizzazione, si deve valutare la differenza della variazione δI_{Kerr} a $+H$ e a $-H$, corrispondente a

valori opposti di m_{\parallel} rispetto all'origine. Questa procedura è basata sul fatto che solo il contributo δM cambia segno sotto inversione di campo magnetico, mentre δR rimane invariato [38]. Così, tutti i contributi non magnetici che non cambiano segno dopo inversione di campo sono completamente eliminati e, quindi, δI_{Kerr} è proporzionale al segnale magnetico δM .

In questo modo, la variazione δM del segnale magnetico è data da:

$$\delta M = \frac{1}{2} [\delta I_{Kerr}(H, m_{\parallel}) - \delta I_{Kerr}(-H, -m_{\parallel})] \quad (4.6)$$

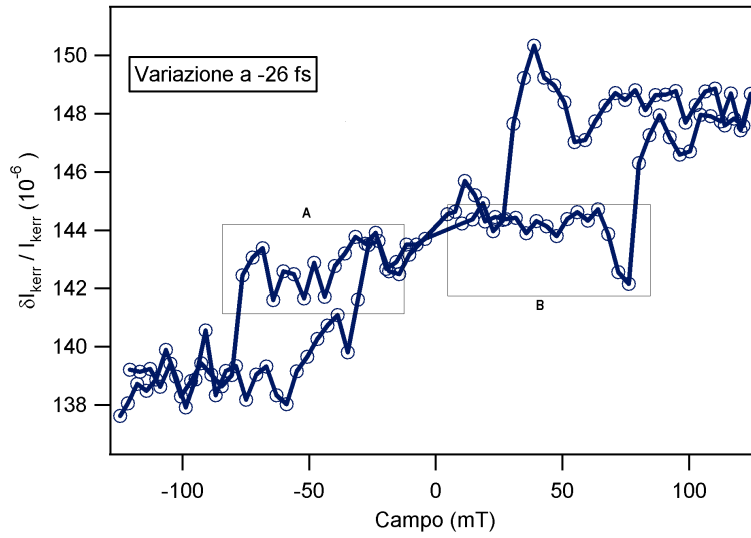
mentre la variazione δR del contributo non magnetico è data da:

$$\delta R = \frac{1}{2} [\delta I_{Kerr}(H, m_{\parallel}) + \delta I_{Kerr}(-H, -m_{\parallel})] \quad (4.7)$$

Una conferma della validità della nostra analisi è data dal fatto che se si esegue questa sottrazione per $H=0$ si ottiene un segnale nullo. In particolare, quando $m_{\parallel}=0$, il segnale δM svanisce e solo il contributo δR dà una variazione quasi nulla della magnetizzazione, ossia:

$$\delta M = \frac{1}{2} [\delta I_{Kerr}(H, 0) - \delta I_{Kerr}(-H, 0)] \simeq 0 \quad (4.8)$$

In questo modo, la variazione del segnale Kerr osservato, dopo la sottrazione di δR , può essere legata, senza ambiguità, alle dinamiche di magnetizzazione.



In particolare, si può osservare che se si esegue la sottrazione tra tutti i punti compresi nella zona (A) e nella zona (B) rispetto a $m_{\parallel}=0$ si ottiene una variazione di segnale nulla, e quindi la zona lineare del ciclo di isteresi dinamico è caratterizzata da un andamento costante. Questo significa che la traslazione e l'annichelazione del vortice non dipendono dalla temperatura.

Quando, invece, si esegue la sottrazione per $m_{\parallel}\neq 0$ non si osserva nessuna dinamica di magnetizzazione in quanto la variazione δM è dovuta solamente al riscaldamento medio indotto dall'eccitazione del pump. Per questo motivo, tutti i cicli di isteresi dinamici ottenuti a vari ritardi temporali di pump-probe mostrano un andamento più o meno simile.

Capitolo 5

Conclusioni

In questo lavoro di tesi abbiamo studiato le dinamiche di magnetizzazione di sistemi confinati, ed in particolare di una matrice di nanodots.

Nella prima parte del lavoro, si sono investigate le proprietà magnetiche di nanostrutture ordinate ferromagnetiche attraverso microscopia con radiazione X. Tramite questa tecnica sperimentale abbiamo ottenuto un imaging dei nanodots cercando di evidenziare il loro stato di magnetizzazione.

Le immagini ottenute, seppure ottime in quanto a contrasto, non sembrano rivelare la presenza della fase di magnetizzazione a vortice cercata. Questo potrebbe essere dovuto a due fattori principali: (i) la risoluzione del TwinMic, in queste condizioni, non è sufficiente a distinguere lo spot al centro del vortice e metterlo in evidenza rispetto al resto del dot, (ii) la fase di magnetizzazione a vortice non è presente.

La possibile assenza di fase di magnetizzazione a vortice può essere imputabile ad una errata magnetizzazione, dovuta all'assenza, per i campioni in nostro possesso, di un ciclo di isteresi specifico determinato sperimentalmente.

Tali dati, però, sono molto utili come punto di partenza per decidere le modalità di misure future (anche risolte in tempo) e per decidere le dimensioni e la dislocazione di nuovi campioni.

Dall'analisi delle immagini è stato, inoltre, possibile risalire alla risoluzione spaziale del TwinMic (135 nm). Per poter sfruttare tale risoluzione nello studio delle proprietà magnetiche dei nanodots, sarà necessario esaminare

dots con dimensioni più grandi (circa $1 \mu\text{m}$ di diametro) e dislocati su film più spessi (75 nm) in modo da garantire una maggiore manovrabilità e versatilità d'impiego.

Eventuali informazioni utili future potrebbero venire da misure con tecniche di pump&probe risolte in tempo volte a dare un pò di chiarezza riguardo al controllo della magnetizzazione di queste nanostrutture. In particolare, l'idea è quella di usare un micro impulso di campo magnetico per eccitare il sistema (pump) e la luce di sincrotrone opportunamente monocromatizzata e polarizzata (probe) per ottenere l'imaging in funzione del ritardo rispetto al pump. In tal modo si desidera ricostruire la dinamica dei momenti magnetici presenti sul dot in modo da capire, eventualmente, come essi rispondano a eccitazioni esterne ed evolvano nel tempo.

Nella seconda parte del lavoro, si sono investigate le proprietà magnetiche di nanostrutture ordinate ferromagnetiche attraverso misure di magneto-ottica in configurazione longitudinale. Tramite questa tecnica sperimentale abbiamo ottenuto inizialmente un ciclo di isteresi e successivamente la sua variazione dopo un'eccitazione ottica del sistema.

Il ciclo di isteresi ottenuto (misure MOKE) dà informazioni sullo stato magnetico e sul meccanismo secondo cui la magnetizzazione, entro ciascun nanodot, varia sotto l'azione di un campo magnetico esterno. In particolare, si mette in evidenza la presenza di una fase a singolo dominio e di una fase a vortice che viene annichilata a valori di campo magnetico relativamente alti. La variazione del ciclo di isteresi (misure TR-MOKE), ottenuta tramite tecnica pump&probe, dà informazioni sullo stato dinamico del sistema dopo un intervallo di tempo dall'eccitazione del sistema. In particolare, l'andamento delle variazioni dei cicli di isteresi è pressochè uguale e questo è dovuto al riscaldamento medio della matrice di nanodots indotto dal pump.

Eventuali informazioni utili future potrebbero venire da misure magneto-ottiche risolte in tempo (tecnica pump&probe) realizzate tramite una sorgente laser con repetition rate minore rispetto a quella utilizzata. In questo modo si eviterebbe il riscaldamento medio della struttura indotto dal pump e si potrebbe avere maggior chiarezza riguardo alle dinamiche di magnetizzazione tenendo conto dei legami presenti tra la modificazione fisica delle dimensioni delle nanostrutture e le proprietà magnetiche delle stesse.

Tali informazioni sarebbero, quindi, molto utili per il controllo ottico della magnetizzazione (possibilità di invertirne la direzione) in strutture di dimensioni nanometriche.

Bibliografia

- [1] T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto, and T. Ono. Magnetic vortex core observation in circular dots of permalloy. *Science*, 289:930, 2000.
- [2] K.Nakanishi, N.Berova, and R.W.Woody. *Circular dichroism: principles and applications*. VCH Publisher, London, 1994.
- [3] R.P. Cowburn, D.K. Koltsov, A.O. Adeyeye, and M.E. Welland. Single-domain circular nanomagnets. *Phys. Rev. Lett.*, 83:1042, 1999.
- [4] K.B. Crozier, A. Sundaramurthy, G.S. Kino, and C.F. Quate. Optical antennas: resonators for local field enhancement. *J. Appl. Phys.*, 94:4632, 2003.
- [5] P. Muhlschlegel, H.J. Eisler, O.J.F. Martin, B. Hecht, and D.W. Pohl. Resonant optical antennas. *Science*, 308:1607, 2005.
- [6] M.Grimsditch and P.Vavassori. The diffracted magneto-optic kerr effect: what does it tell you? *J. of Phys.:Condensed Matter*, 16:276, 2004.
- [7] M.Grimsditch, P. Vavassori, V.Novosad, and V.Metlushko. Vortex chirality in an array of ferromagnetic dots. *Phys. Rev. B*, 65:65, 2002.
- [8] J.P.Park and P.A.Crowell. Interactions of spin waves with a magnetic vortex. *Phys. Rev. Lett.*, 95:95, 2005.
- [9] W.K.Hiebert, A.Stankiewicz, and M.R.Freeman. Direct observation of magnetic relaxation in a small permalloy disk by time-resolved scanning kerr microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 79:1134, 1997.

- [10] F.Hansteen, A.Kimel, A.Kirilyuk, and T.Rasing. Femtosecond photomagnetic switching of spins in ferrimagnetic garnet films. *Phys. Rev. Lett.*, 95:95, 2005.
- [11] A.Kimel, A.Kirilyuk, P.Usachev, R.Pisarev, and T.Rasing. Laser-induced ultrafast spin reorientation in the antiferromagnet tmfeo_3 . *Nature*, 429:850, 2004.
- [12] A.Kimel, A.Kirilyuk, P.Usachev, R.Pisarev, and T.Rasing. Ultrafast non-thermal control of magnetization by instantaneous photomagnetic pulses. *Nature*, 435:655, 2005.
- [13] A.Comin, C.Giannetti, G.Samoggia, P.Vavassori, and F.Parmigiani. Elastic and magnetic dynamics of nano-magnet ordered arrays impulsively excited by sub-ps laser pulses (sottomesso a *Phys. Rev. Lett.*).
- [14] D. Attwood. *Soft X-rays and extreme ultraviolet radiation*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999.
- [15] A. Comin, tesi di dottorato.
- [16] A.Zvezdin and V.Kotov. *Modern magneto-optics and magneto-optical materials*. Taylor & Francis Group, New York, 1997.
- [17] Chun-Yeol You and Sung-Chul Shin. Generalized analytic formulae for magneto-optical kerr effects. *J. Appl. Phys.*, 84:541, 1998.
- [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] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. Wiley & sons, New York, 1975.
- [21] E.Koch. *Handbook on synchrotron radiation*. Edito da Ernest Eckhard Koch, Amsterdam, 1983.

- [22] J.A. Nielsen and D. McMorrow. *Elements of modern X-ray physics*. Wiley & sons, New York, 2001.
- [23] H. Winich and S. Doniach. *Synchrotron radiation research*. Plenum Press, New York, 1980.
- [24] G.Margaritondo. A primer in synchrotron radiation: everything you wanted to know about synchrotron emission of x-rays but were afraid to ask. *J. of Synchrotron Radiation*, 5:148, 1995.
- [25] G. Margaritondo. *Introduction to synchrotron radiation*. Oxford University Press, Oxford, 1988.
- [26] www.elettra.trieste.it.
- [27] M. Zangrando and M. Finazzi. Bach, the beamline for advanced dichroic and scattering experiments at elettra. *Rev. of Scientific Instruments*, 3:1313, 2001.
- [28] M. Zangrando, tesi di dottorato, Soft X-ray optics and soft X-ray spectrometer for a circularly polarized radiation source at Elettra, 2002.
- [29] M. Zangrando and M. Zacchigna. Polarized high-brilliance and high-resolution soft x-ray source at elettra: the performance of beamline bach. *Rev. of Scientific Instruments*, 1:31, 2004.
- [30] M. Zangrando, M. Finazzi, and M. Zacchigna. A multipurpose experimental station for soft x-ray microscopy on bach beamline at elettra. *Proceedings SPIE*, 4506:154, 2001.
- [31] www.TwinMic.org.
- [32] B.Kaulich, J.Kovac, and M.Podnar. Twinmic: a european twin microscope station combining full field imaging and scanning microscopy. *J. de Physique IV*, 104:103, 2003.
- [33] J.Kirz, C.Jacobsen, and M.Howells. Soft x-ray microscopes and their biological applications. *Q.Rev. of Biophysics*, 28:24, 1995.
- [34] Hinds Instruments, PEM-90 Application Note.

- [35] Hinds Instruments, PEM-90 Photoelastic modulator system: state of art polarization modulation.
- [36] P. Elmer, Specifying lock-in amplifier (Technical Note TN-1001).
- [37] V.Novosad, K.Y.Guslienko, and H.Shima. Effect of interdot magneto-static interaction on magnetization reversal in circular dot arrays. *Phys. Rev. B*, 65:65, 2002.
- [38] A.Comin, M.Rossi, C.Mozzati, F.Parmigiani, and G.Banfi. Femtosecond dynamics of co thin films on si support. *Solid State Commun.*, 129:227, 2004.

Ringraziamenti

Sono molto grato a Fulvio Parmigiani per avermi fatto conoscere il mondo della ricerca e per avermi permesso di eseguire questo lavoro. Grazie ancora Fulvio.

Grazie al gruppo BACH del sincrotrone Elettra (Trieste) per le misure di microscopia con radiazione X. In particolare ringrazio Marco Zangrando e Michele Zacchigna non solo per il notevole supporto scientifico offertomi ma anche per l'aiuto logistico per l'accesso al centro di ricerca. Ringrazio, inoltre, Burkhard Kaulich per avermi accolto con molto piacere a lavorare sul microscopio TwinMic.

Grazie al gruppo Elphos dell'università cattolica del Sacro Cuore (Brescia) per le misure di magneto-ottica. In particolare ringrazio Claudio Giannetti, una guida scientifica oltre che un amico. Grazie ancora Claudio per la tua disponibilità. Un ringraziamento importante va anche a Gabriele Ferrini per la disponibilità dimostratami nel discutere i problemi relativi al set-up sperimentale per le misure di magneto-ottica e per la revisione finale di questo lavoro di tesi.

Ringrazio Paolo Vavassori per le simulazioni micromagnetiche e per le innumerevoli discussioni riguardanti l'ottimizzazione del set-up sperimentale per le misure di magneto-ottica.

Ringrazio Enrico Zaglio per il supporto elettronico relativo al funzionamento dell'elettromagnete ed i suoi componenti.

Ringrazio Giulio Oliviero per le misure di microscopia a forza atomica.

Per quanto riguarda le persone a me più care, un primo pensiero è rivolto ai miei genitori. Se sono arrivato dove sono metà del merito è anche loro:

grazie Maria e Pierino.

Grazie anche a voi: Stefano, Federica e Lorenzo, Matteo e Barbara, nonna Betta per essermi stati vicini in tutti questi anni e perché su una famiglia ci si può sempre contare.

Grazie ai miei amici per le grandi serate passate insieme. Siete tanti, ma siete tutti nel mio cuore.

Grazie, infine, ai miei compagni di università con i quali ho condiviso questo lungo cammino. È stato bello faticare e gioire insieme.

Questo lavoro di tesi è dedicato a Massimo Sancrotti. Grazie per averci arricchito con il tuo insegnamento. Arrivederci Massimo