

**Ressonância Ferromagnética em Filmes Simples Ferromagnéticos
(FM) e Bicamadas Ferro/Antiferromagnéticas (FM/AF) em função
da temperatura**

Bruno Cordeiro Silva

Fevereiro de 2016

BRUNO CORDEIRO SILVA

**Ressonância Ferromagnética em Filmes Simples
Ferromagnéticos (FM) e Bicamadas
Ferro/Antiferromagnéticas (FM/AF) em função
da temperatura**

Dissertação apresentada à UNIVERSIDADE FEDERAL DE
MINAS GERAIS, como requisito parcial para a obtenção do
grau de MESTRE EM FÍSICA.

Área de concentração: Física da matéria condensada

Orientador: Prof. Dr. Klaus Wilhelm Heinrich Krambrock (UFMG)

Coorientador: Prof. Dr. Thiago Eduardo Pedreira Bueno (UFES)

Departamento de Física - ICEX - UFMG

Fevereiro de 2016

AGRADECIMENTOS

À minha família: Maria Lúcia, Hamilton, Daniel e Luciana.

Aos amigos (brothers e sister) do laboratório: Daniel, Daniele, Elias, Henrique, Thiago e Fred. Pelo suporte técnico, motivação e principalmente companheirismo.

Ao Laboratório de Espectroscopia Hiperfina e Física de Superfície: Dr. Gustavo Fóscolo e Prof. Dr. Roberto Paniago, pelas medidas de MOKE.

Ao LEMAG/UFES liderada pelo Professor Edson Passamani Caetano, e seus alunos como Tales Costa de Freitas, Alisson Carlos Krohling, Tiago Pulce Bertelli e ao técnico Rafael Oliari Muniz que me ajudaram na produção das amostras e também pelas medidas de VSM.

Quero fazer um agradecimento especial ao meu orientador e coorientador Prof. Dr. Klaus Wilhelm Heinrich Krambrock e Prof. Dr. Thiago Eduardo Pedreira Bueno pelas orientações, dedicação, paciência e tempo dedicado.

Sem essas pessoas esse trabalho não teria se tornado realidade, meu muito obrigado.

(Bruno Cordeiro Silva)

Sumário

1	Introdução	1
2	Energia Livre Magnética	3
2.1	Introdução	3
2.2	Energia Zeeman	3
2.3	Energia Magnetocristalina	4
2.3.1	Simetria Cúbica	7
2.3.2	Simetria Uniaxial	9
2.4	Energia de Superfície	11
2.5	Anisotropia de Desmagnetização	12
2.6	Energia Livre Magnética para Filme Simples	15
2.7	Energia Livre Magnética para Bicamadas FM/AF	15
2.7.1	Energia de Exchange Bias	15
2.7.2	Energia de Parede de Domínio	18
2.7.3	Anisotropia Rotatória	19
2.7.4	Energia Livre Magnética para uma Bicamada FM/AF	20
3	Técnicas Experimentais	21
3.1	Evaporação Catódica (<i>Sputtering</i>)	21
3.1.1	Deposição Oblíqua e Efeito de Sombra (<i>Self-Shadowing</i>)	24
3.1.2	Fabricação das Amostras	25
3.2	Técnicas de Magnetometria	27

3.2.1	Magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM)	27
3.2.2	Efeito Kerr Magneto-ótico (MOKE)	29
3.3	Ressonância Ferromagnética	30
3.3.1	Frequência de Larmor	31
3.3.2	Ondas de Spins e Susceptibilidade Magnética	33
3.3.3	Absorção de Microondas	37
3.3.4	Relação de Dispersão para Ressonância Ferromagnética	39
3.3.5	Ajuste Numérico	42
3.3.6	Largura de Linha	45
3.3.7	Espectrômetro de FMR	47
4	Resultados Experimentais e Discussões	52
4.1	Medidas de Magnetometria	52
4.1.1	Medidas de Magnetometria de Amostra Vibrante (VSM)	52
4.1.2	Medidas de Magnetometria Kerr (MOKE)	54
4.2	Medidas de Ressonância Ferromagnética (FMR)	56
4.2.1	Filmes finos de Cobalto (Co)	56
4.2.2	Filmes finos de <i>Permalloy</i> (Py)	68
4.2.3	Bicamadas FM/AF (Py(10 nm)/IrMn(12 nm))	74
5	Conclusões e perspectivas	82
A	Temas Relacionados	84
A.1	Tabela de Conversão de Unidades	84
A.2	Ressonância Remanescente de Borda da deposição oblíqua e a Importância da Preparação de Amostra	84
	Referências	88

Lista de Figuras

2.1	Curvas de magnetização de um monocristal de Níquel, de simetria cúbica, em função dos seus eixos de simetria [14].	5
2.2	Coordenadas esféricas do vetor de magnetização.	6
2.3	Dependência angular do campo de ressonância ferromagnética de simetria cúbica de filme de Fe(11 nm), usando uma frequência de microondas de 11 GHz [10].	8
2.4	Curvas de magnetização de um monocristal de Cobalto com simetria uniaxial em relação a seus eixos de simetria [14].	9
2.5	Imagem de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV) para um filme fino ferromagnético de Cobalto fabricado por deposição oblíqua [39].	10
2.6	Dependência angular da ressonância ferromagnética de um filme fino policristalino de Cobalto 3 nm, frequência 9,22 GHz, apresentando a simetria uniaxial.	10
2.7	Dependência de K_{ef} em função da espessura t para filmes finos de Co/Pd crescidos em UHV para duas temperaturas de crescimento diferentes, 20°C e 200°C, e para dois substratos diferentes (a) vidro e b) mica [42].	12
2.8	Diagrama mostrando o alinhamento dos momentos magnéticos paralelo ao campo magnético H gerando uma magnetização \vec{M} . Devido aos dipolos magnéticos não compensados nas extremidades dos grãos surge um campo desmagnetizante H_d , de sentido oposto ao campo externo e a magnetização.	13
2.9	Desenho esquemático da esfera de Cobalto com uma fina camada de CoO e a direita as curvas de histerese da partícula acima da temperatura de Néel (em círculos) e abaixo da temperatura de Néel (em quadrados) sob um campo magnético aplicado [44].	16

2.10	Modelo das curvas de histerese para uma bicamada FM/AF, (a) acima e (b),(c),(d) e (e) abaixo da temperatura de Nèel explicando o deslocamento da histerese devido ao fenômeno de <i>exchange bias</i> [7].	17
2.11	Parede de Domínio na interface de uma bicamada FM/AF [52].	18
2.12	Dependências angulares de FMR simuladas numericamente de um filme simples FM (em verde), uma bicamada FM/AF (em vermelho) e os valores médios do campo ressonante (em preto). A informação importante para se observar é o comportamento da dependência angular da bicamada FM/AF considerando a anisotropia rotatória igual a (a) zero e (b) diferente de zero [7].	20
3.1	Processo simplificado de deposição por <i>Sputtering</i> [10][Modificado].	23
3.2	a)Nucleação das partículas depositadas aleatoriamente. b) A deposição cresce na forma de colunas inclinadas para a direção de incidência do vapor de partículas e além disso cada coluna terá uma taxa de crescimento diferente criando uma textura na morfologia [57].	24
3.3	a) Imagem de Microscopia Eletrônica de Transmissão (MET) para uma multicamada onde o Tântalo (7 nm) foi fabricado por <i>sputtering</i> oblíquo com inclinação de 60° [49]. As imagens b) e c) foram feitas por Microscopia de Tunelamento (STM) para filmes de ferro crescidos por MBE sobre Si(111) com inclinação de 60° e 90°, respectivamente [60].	25
3.4	Um imagem de microscopia eletrônica de varredura de um filme fino de Cobalto 3,0 μm apresentando anisotropia de forma [39]. Esta figura foi apresentada anteriormente na seção 2.3.2, porém, ela foi novamente adicionada ao texto, visando melhorar a didática e facilitar a compreensão do assunto.	25
3.5	Fotografia da Máquina de Sputtering da DF/UFES.	26
3.6	Em (a) o desenho esquemático da deposição oblíqua, e em (b) fixação do substrato de silício no porta-amostras do Sputtering da DF/UFES.	27
3.7	Desenho esquemático de um VSM indicando em a) transdutor eletromecânico responsável pela vibração da amostra, b) a haste onde se fixa a amostra, c) o eletroímã que induz a magnetização na amostra, e d) as bobinas detectoras responsáveis pela detecção do fluxo magnético [14] (Modificado).	28
3.8	Sistema PPMS instalado no Lemag do DF/UFES.	28

3.9	Desenho Esquemático de um MOKE [65] modificado.	30
3.10	MOKE implementado no DF da Universidade Federal de Minas Gerais. . .	30
3.11	Movimento de precessão do spin.	33
3.12	Ondas de Spin no modo uniforme.	34
3.13	Ondas de Spin para k não nulo.	34
3.14	Ressonância Ferromagnética em filmes finos ferromagnéticos dentro da cavidade ressonante [7].	35
3.15	Espectro de FMR em função do H , na forma de uma Lorentziana com largura de linha ΔH	38
3.16	Espectro da derivada da absorção de microondas em função do H	39
3.17	Espectro de FMR produzido pelo espectrômetro de ressonância ferromagnética do DF/UFMG. Exemplo de espectro de filme fino de Py(10 nm) a temperatura ambiente e na orientação do eixo fácil, com frequência de 9,220 GHz, atenuação de 30 dB, com o respectivo ajuste numérico.	42
3.18	Simulação numérica da dependência do campo de ressonância com a magnetização considerando que $M \gg H_U$, e mostrando que uma grandeza é inversamente proporcional a outra.	44
3.19	Exemplo de dependência angular de FMR para filmes de Permalloy com 12 nm de espessura com apenas o amortecimento de Gilbert [10].	46
3.20	Superposição do espalhamento de dois mágnons para duas amostras de Fe ₃ Si/MgO sobre Si sobre dois angulos deposição diferentes feita por Barsukov <i>et. al.</i> [15] modificado.	48
3.21	Detalhamento Simplificado do Equipamento de Ressonância Ferromagnética [10].	49
3.22	Imagem do a) sistema criogênico ESR910 e b) um zoom na região onde a amostra é fixada e também mostrando os dois termopares, um junto a amostra e o outro na saída do fluxo de Hélio, e o aquecedor (<i>heater</i>) que é responsável pelo aquecimento do fluxo de Hélio. A imagem original foi modificada retirada do manual.	50
3.23	Comportamento da tensão do Termopar de Cromel/Ouro em função da temperatura, de acordo com o manual Oxford ESR910.	51

3.24	Dependência angular de 0° , eixo fácil, a 90° , eixo duro, das medidas de FMR de um filme simples de Py(10 nm) a) 300 K e b) 6 K respectivamente, com frequência de 9,220 GHz.	51
4.1	Curvas de histerese obtidas por magnetometria de amostra vibrante (a) do filme FM de Py(10 nm), e a (b) da bicamada FM/AF de Py(10 nm)/IrMn(12 nm).	54
4.2	Medidas de magnetometria obtidas pela técnica MOKE para (a) um filme simples de Py(10 nm) e (b) para uma bicamada FM/AF composta por Py(10 nm)/IrMn(12 nm).	54
4.3	Espectros de FMR medidos no plano do filme de Co(3 nm) com frequência de radiação de 9,22 GHz a temperatura ambiente.	57
4.4	Dependência angular do campo de ressonância para o filme de Co (3nm) medido com frequência de ressonância de 9.22 GHz. Os círculos pretos correspondem aos dados experimentais e a linha contínua ao ajuste numérico através da Equação 3.40.	58
4.5	Dependência angular da largura de linha para o filme de Co(3 nm) medido com frequência de ressonância de 9,22 GHz. Os círculos pretos correspondem aos dados experimentais e a linha contínua ao ajuste numérico através da Equação 3.47.	59
4.6	(a) Espectros de absorção de micro-ondas para o filme de Co com 3nm de espessura em diferentes temperaturas. (b) Valores de $H_r \times T$ e $\Delta H \times T$ obtidos através do ajuste numérico utilizando a Equação 3.37.	60
4.7	Dependência angular, (a) do campo de ressonância e (b) da largura de linha, no plano de um filme de cobalto 3 nm em função da temperatura Os pontos representam as medidas experimentais e as linhas representam os ajustes numéricos. A frequência foi de 9,22 GHz, com atenuação de 30 dB.	62
4.8	Ajuste das dependências angulares de FMR das amostras de Co (3 nm) para a magnetização efetiva, anisotropia uniaxial e largura de linha de Gilbert.	64
4.9	Pontos experimentais da magnetização efetiva e da anisotropia uniaxial acrescentando um ponto não experimental da temperatura de <i>Curie</i> de 1340 K do Filme Fino FM de Co(3 nm) em função da temperatura, como o ajuste numérico segundo a Lei de Bloch e a Equação de Callen, respectivamente.	65

4.10	Diagrama que relaciona o formato e orientação do grão (representado pela elipse preenchida) em relação as curvas de densidades de energia anisotrópica superficial (representada pelas curvas tracejadas sem preenchimento). O eixo fácil está na direção do alongamento do grão e o eixo duro está na direção mais estreita do grão. As curvas de densidades de energia anisotrópicas são apresentadas em três situações: i) na temperatura igual a zero, $T=0$; ii) na temperatura acima de zero, $T>0$; e iii) na temperatura de <i>Curie</i> . É representado também que a magnetização \vec{M} precessiona em torno do campo em torno do campo externo \vec{H}_0 formando um cone de magnetização, e esse cone gira em relação ao grão durante as medidas de dependência angular na FMR.	67
4.11	Espectros de FMR do Filme Simples FM de <i>permalloy</i> de (a) 3nm e (b) 10 nm em função da temperatura. Em (c) a dependência angular do campo ressonante em função da espessura com zoom. Em (d) fazer largura de linha Com zoom. Em (e) a dependência angular do campo ressonante em função da espessura com zoom. Em (f) fazer largura de linha Com zoom. Medidas usando uma frequência de micro-ondas de 9,22 GHz, com atenuação de 30 dB e a temperatura ambiente.	69
4.12	Dependência angular do (a) campo de ressonância e da(b) largura de linha do filme simples de Py (10 nm) em função da temperatura.	71
4.13	Pontos experimentais da a) magnetização efetiva e da b) anisotropia uniaxial acrescentando um ponto não experimental da temperatura de <i>Curie</i> de 843 K do filme simples FM de Py(10 nm) em função da temperatura, com o ajuste numérico segundo a Lei de Bloch e a Equação de Callen, respectivamente. E em c) a contribuição da largura de linha de Gilbert em função da temperatura.	72
4.14	(a)Campo de ressonância e (b)Largura de linha um filme simples de Py(10nm) em função do tratamento térmico. T0 é sem tratamento térmico, T150, T300, T450, T600 são tratamentos térmicos de 150°, 300°, 450°, 600° durante vinte minutos, respectivamente.	73
4.15	Medidas de FMR do filmes simples de Py(10 nm) e da bicamada Py(10 nm)/IrMn(12 nm).	76

4.16	Dependência angular do (a) campo de ressonância da (b) largura de linha do filme FM/AFM Py(10nm) / IrMn (12nm), e em c) o campo ressonante e a d) largura de linha do filme simples Py(10 nm) em função da temperatura. Os itens c) e d) foram novamente plotados para destacar a diferença entre o o filme simples FM e da bicamada FM/AF em função da temperatura.	77
4.17	Pontos experimentais da anisotropia de <i>exchange bias</i> e b) anisotropia rotatória em função da temperatura de uma bicamada Py(10nm)/IrMn(12nm). 78	78
4.18	Simulação numérica do campo de <i>exchange bias</i> H_{EB} e do campo coercivo H_C em função da razão r [82] modificada.	79
4.19	Simulação numérica do campo de <i>exchange bias</i> em função da temperatura considerando apenas dois tipos de grãos: os grãos J_{net2} que possuem uma razão $r < 0,5$ contribuindo para um campo de <i>exchange bias</i> H_{EB2} e os grãos do tipo J_{net1} que possuem uma razão $r < 0,5$ acima da temperatura crítica T_r contribuindo para o campo de <i>exchange bias</i> H_{EB1} . A figura é da referência [82] modificada.	80
4.20	Simulação numérica do campo coercivo em função da temperatura para grãos mono-dispersivos e poli-dispersivos [83].	81
A.1	Espectro de FMR de uma amostra com borda, com frequência de 9,22 GHz. 85	85
A.2	Imagem da a) medida integrada e o b) ajuste numérico de cada Lorenziana da medida em 160° , com frequência de 9,22 GHz.	86
A.3	Dependências angulares do ajuste numérico da Loreziana da borda, com frequência de 9,22 GHz.	86
A.4	Dependência angular do H_r em função da coordenada azimutal da Borda.	87
A.5	Imagem da (a) Serra de Corte preciso usando (b) fio diamantado de espessura 0,20mm em processo de corte.	87

Lista de Tabelas

4.1	Parâmetros de ajuste das dependências angulares de FMR das amostras de Co (3 nm) para a magnetização efetiva, anisotropia uniaxial e largura de linha de Gilbert	63
4.2	Valores para a Magnetização efetiva ($4\pi M_{ef}$), Campo uniaxial (H_U), e largura de linha ΔH , para filmes de Py com espessura de 3 e 10 nm.	70
4.3	Parâmetros de ajuste das dependências angulares de FMR das amostras de Py(10 nm) para a magnetização efetiva e anisotropia uniaxial para tratamentos térmicos de 150° , 300° , 450° , 600°	73
A.1	Tabela de Conversão do sistema SI para o sistema CGS [9].	84

Resumo

A spintrônica é a grande promessa para o avanço na indústria eletrônica. Diferentemente da indústria atual de eletrônica baseada em dispositivos semicondutores que fazem uso somente de correntes de carga, a spintrônica é baseada em correntes de spin polarizadas. Dispositivos como válvulas de spin, baseados em dois ou mais filmes ferromagnéticos (FM) que mudam as suas resistências elétricas drasticamente (efeito magneto-resistivo) dependendo do alinhamento magnético dos filmes FM. Tais dispositivos são promissores para nesta tecnologia, não somente para a gravação magnética mas também na área de sensores biológicos e gases. Devido a essa importância é fundamental entender bem as propriedades magnéticas de filmes finos ferromagnéticos (FM) e bicamadas ferro/antiferromagnéticos (FM/AF) que formam a estrutura básica de uma válvula de spin. Neste trabalho apresentamos resultados de preparação e caracterização de filmes finos FM e bicamadas FM/AF. Os filmes simples FM investigados de Cobalto e *Permalloy* (Py) e a bicamada FM/AF de Py/IrMn foram produzidos pelo método de evaporação catódica (*sputtering*) oblíquo sobre substratos de Si(100), resultando em filmes finos policristalinos com grãos alongados na direção perpendicular da deposição. Como técnica principal de caracterização magnética dos filmes usamos a ressonância ferromagnética (FMR) que através da dependência angular no plano do filme permite obter informações sobre a magnetização efetiva, anisotropias magnéticas e processos de relaxação magnética, além da interação de troca (*exchange bias*) no caso da bicamada FM/AF. O nosso principal foco do trabalho é obter dados experimentais sobre essas propriedades magnéticas em função da temperatura (10 K - 300 K), dados quase inexistentes na literatura, e modelar estas propriedades usando a teoria fenomenológica da ressonância ferromagnética. Os dados da magnetização efetiva e das anisotropias magnéticas obtidas a partir de dependências angulares de FMR, em função da temperatura, do campo ressonante ($H_r \times \phi$) foram ajustados numericamente segundo a *Lei de Bloch* e a *Equação de Callen*, respectivamente, e mostraram boa concordância. Já os dados da relaxação magnética dos filmes FM foram obtidos a partir das dependências angulares da largura de linha ($\Delta H \times \phi$) da FMR que envolve contribuições intrínsecas e extrínsecas como a relaxação de Gilbert e a relaxação de dois mágnons. Mostramos que apenas a relaxação intrínseca é afetada pela temperatura. Também mostramos que tratamentos térmicos próximo de 300° C em filmes magnéticos depositados por *sputtering* aumentam a magnetização efetiva e sua anisotropia. Foi verificado experimentalmente que para a bicamada FM/AF de Py/IrMn a existência de uma temperatura

crítica T_R na qual abaixo de T_R a anisotropia rotatória aumenta exponencialmente e a anisotropia de *exchange bias* diminui, e acima desta temperatura as duas anisotropias diminuem.

Abstract

Spintronic is a great promise for advance in the electronic industry. Differently to actual electronic semiconductor devices which use only current of electrical charges spintronic is based on currents of polarized spins. Devices as for example spin valves consist of two or more conducting ferromagnetic (FM) thin films which change drastically their electrical resistance (giant magnetoresistance) depending on the relative alignment of their magnetization directions. Devices based on different magnetic thin films are not only interesting for storing information but also for biological and gas sensors. Due to the great importance it is fundamental to understand well the magnetic properties of ferromagnetic (FM) films and ferromagnetic/antiferromagnetic (FM/AF) bilayer that compose spin valves. In this work we present results of preparation and characterization of thin FM films and FM/AF bilayers. Thin ferromagnetic films of Cobalt (Co) and Permalloy (Py) and bilayers FM/AF consisting of Py/IrMn on Si (100) substrates were produced by oblique sputtering technique resulting in polycrystalline thin films with elongated grains oriented perpendicular to the deposition direction. We use the ferromagnetic resonance (FMR) as the principal magnetic characterization technique that through angular dependencies in the film plane allows to extract important magnetic parameters as for example the effective magnetization, magnetic anisotropy and magnetic relaxation processes in addition to the exchange bias in case of FM/AF bilayers. The main objective and focus of our work is to obtain experimental data of those magnetic properties as a function of temperature (10 - 300 K), data almost inexistent in the literature, and model these properties with the phenomenological ferromagnetic resonance theory. The effective magnetization and magnetic anisotropies obtained from the FMR angular dependencies of the resonant field ($H_r \times \phi$) as a function of temperature were numerically fitted according to Bloch's law and Callen's equation, respectively, and showed good agreement with theory. Data about the magnetic relaxation processes in FM and FM/AF bilayer were obtained from the FMR angular dependencies of the line widths of the resonant line ($\Delta H \times \phi$) which showed intrinsic and extrinsic contributions due to Gilbert and two magnons relaxation, respectively. Only the intrinsic Gilbert relaxation is affected by temperature. We show also that heat treatments at about 300°C of sputtered FM films increase the effective magnetization and the magnetic anisotropy. Experimentally, it was verified that the bilayers FM/AF present a critical temperature T_R (i) below T_R the rotational anisotropy increases exponentially and the exchange bias decreases and ii) above T_C both anisotropy decreases.

Capítulo 1

Introdução

Os filmes ferromagnéticos são objetos de estudo tanto do ponto de vista experimental quanto do ponto de vista teórico pelo seu potencial tecnológico e científico. Com o descobrimento da magnetoresistência gigante em 1988 [1, 2] foi possível o desenvolvimento de sensores usando multifilmes magnéticos, como por exemplo a válvula de spin. As válvulas de spins são usados nos cabeçotes dos discos rígidos de computadores para a leitura magnética [3]. Além disso, novas aplicações para esses dispositivos tem sido estudadas na área de biosensores [4, 5] e sensores de gás [6]. A estrutura básica das válvulas de spins é composta por uma bicamada ferro/antiferromagnética e por um filme simples ferromagnético separados através de uma camada não magnética. A bicamada FM/AF é responsável por criar uma magnetização presa em uma dada direção do filme ferromagnético da bicamada e uma magnetização livre do filme simples ferromagnético que é fácil de se magnetizar em qualquer direção. Quando a magnetização dos dois filmes ferromagnéticos são paralelos a resistividade elétrica é baixa, e quando a magnetização dos dois filmes são anti-paralelos, a resistividade é alta, caracterizando o efeito de magnetoresistência gigante.

A motivação principal deste trabalho é produzir e caracterizar os filmes simples e bicamadas magnéticas e estudar suas propriedades magnéticas em função da temperatura. Para a produção dos filmes magnéticos foi utilizada a técnica de evaporação catódica (sputtering) oblíqua, a qual produz filmes poli-cristalinos com uma anisotropia de forma devido a grãos alongados em uma determinada direção. As técnicas experimentais utilizadas neste trabalho foram a magnetometria de amostra vibrante (VSM) e a magnetometria Kerr (MOKE), para uma caracterização inicial dos filmes, e ressonância ferromagnética (FMR) como técnica principal. Através da dependência angular de FMR obtemos o campo de ressonância (H_r) e da largura de linha (ΔH) que fornecem valiosas informações sobre a magnetização efetiva e as anisotropias magnéticas dos filmes. Esses parâmetros

são ajustados a partir de um tratamento fenomenológico da energia livre magnética total dos sistemas. A magnetização efetiva e as anisotropias de forma são ajustados segundo a Lei de Bloch e a Equação de Callen, respectivamente. Através da dependência angular da largura de linha (ΔH) é possível obter informações sobre os processos de relaxações magnéticas. As duas principais contribuições para a largura de linha são o amortecimento de Gilbert que tem origem nas propriedades intrínsecas do filme e a relaxação de dois mágnons, que tem origem em defeitos na estrutura, superfície e interfaces do filme.

Este trabalho é dividido em cinco capítulos e um apêndice. No Capítulo 2 será apresentada a fundamentação teórica para o ajuste fenomenológico dos pontos experimentais da FMR a partir da energia magnética livre total. No Capítulo 3 serão apresentadas as técnicas experimentais utilizadas neste trabalho: (i) *sputtering* oblíquo para fabricação das amostras; (ii) magnetometria de amostra vibrante (VSM), (iii) magnetometria Kerr (MOKE), e (iv) ressonância ferromagnética (FMR). No Capítulo 4 serão apresentados os resultados experimentais devidamente ajustados segundo a teoria apresentada no Capítulo 2. E para finalizar, no Capítulo 5 serão apresentadas as conclusões deste trabalho. Existe um apêndice neste trabalho que apresenta uma seção para a conversão de unidades do sistema internacional de unidade (SI) para o sistema CGS, e mais uma seção sobre a importância e cuidados na preparação de amostras.

Capítulo 2

Energia Livre Magnética

2.1 Introdução

Neste capítulo será apresentado de forma fenomenológica, a energia livre magnética de um filme simples ferromagnético (FM) e de uma bicamada FM/AF (composta por duas camadas, uma ferromagnética e outra antiferromagnética). A energia livre magnética presente nesses filmes, é composta por vários termos, incluindo contribuições devido à magnetização, espessura, estrutura cristalina e geometria de grãos. As bicamadas possuem também termos de energia oriundos da interface FM/AF. Os principais termos da energia livre magnética são: (i) a energia Zeeman; (ii) as energias magnetocristalinas cúbica e uniaxial; (iii) as energias de superfície e interface; (iv) a energia de desmagnetização. Para a bicamada FM/AF serão adicionadas as seguintes contribuições: (v) energia de exchange bias; (vi) energia de formação da parede de domínio; e por fim, (vii) energia devido a anisotropia rotatória. A descrição detalhada dos vários termos da energia livre será apresentada a seguir.

2.2 Energia Zeeman

A energia Zeeman em materiais ferromagnéticos ocorre devido a interação dos momentos magnéticos $\vec{\mu}_i$ com o campo magnético externo, \vec{H} . Esta interação é dada por [8]:

$$E_Z = - \sum_i \vec{\mu}_i \cdot \vec{H} \quad (2.1)$$

A magnetização macroscópica pode ser escrita através do somatório dos momentos magnéticos individuais por unidade de volume:

$$\vec{M} = \frac{1}{V} \sum_i \vec{\mu}_i \quad (2.2)$$

Substituindo a Equação 2.2 na Equação 2.1 obtém-se

$$E_Z = -V \vec{M} \cdot \vec{H} = -At \vec{M} \cdot \vec{H} \quad (2.3)$$

sendo A e t a área e espessura do filme, respectivamente. No sistema CGS, a energia para um filme ferromagnético por unidade de área, é dada por:

$$\frac{E_Z}{A} = -t \vec{M} \cdot \vec{H} = -tMH \cos\phi \quad (2.4)$$

onde ϕ é o ângulo entre os vetores da magnetização e do campo magnético externo. A equação 2.4 nos mostra que o mínimo de energia é obtido através do alinhamento da magnetização com o campo magnético externo.

2.3 Energia Magnetocristalina

A energia magnetocristalina é caracterizada por um sistema ferromagnético com boa ordem cristalográfica e que possui diferentes campos de saturação para diferentes eixos de simetria cristalina. No caso de um material cristalino sua origem física é dada pela interação spin-orbita dos elétrons [9]. Eixos onde a saturação da magnetização ocorre em campos menos intensos são chamados de eixos fáceis e os eixos onde a saturação ocorre em campos mais intensos são chamados de eixos duros [11–13]. A Figura 2.1 possui três curvas de magnetização em função do campo magnético para as direções cristalográficas, [100], [110] e [111] do Níquel, que possui estrutura cristalina cúbica de face centrada (mostrado no inset [14]). O eixo fácil, que é paralelo à direção [111], alcança saturação magnética para campos da ordem de 50 Oe. Ao reposicionar a amostra, de forma que a direção [100] fique alinhada ao campo, este deve possuir uma intensidade de aproximadamente 300 Oe, para afim, saturar a amostra. Ou seja, para esta amostra, o eixo fácil, é saturado

magneticamente com um campo magnético quase seis vezes menor, se comparado ao eixo duro. Logo, o campo magnético necessário para magnetizar amostras cristalinas, depende da direção de simetria do cristal.

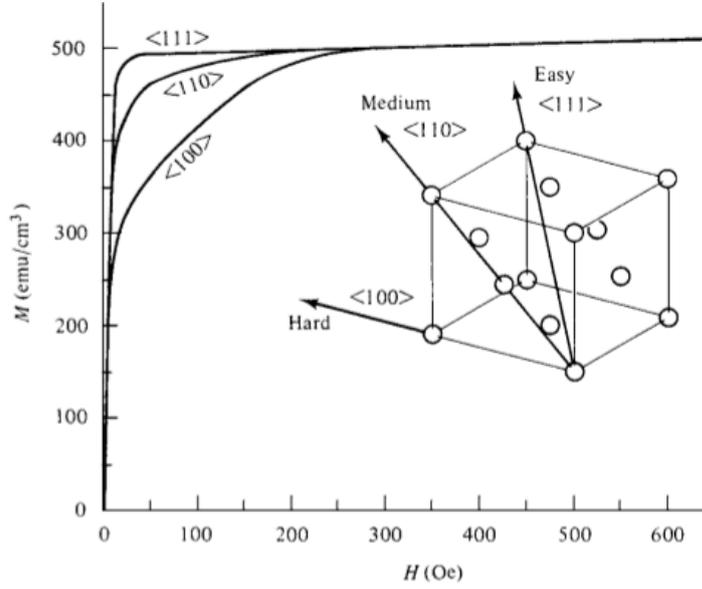


Figura 2.1: Curvas de magnetização de um monocristal de Níquel, de simetria cúbica, em função dos seus eixos de simetria [14].

Para o desenvolvimento da teoria fenomenológica da energia magnetocristalina, será inicialmente definido o vetor da magnetização dado por

$$\vec{m} = \frac{\vec{M}}{\|\vec{M}\|} = (\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) \quad (2.5)$$

onde

$$\begin{cases} \alpha_1 = \text{sen}\theta \cos\phi \\ \alpha_2 = \text{sen}\theta \text{sen}\phi \\ \alpha_3 = \cos\theta \end{cases} \quad (2.6)$$

Os ângulos θ e ϕ são os ângulos polar e azimutal, respectivamente, em coordenadas esféricas (ver Figura 2.2), e elas devem satisfazer a seguinte condição

$$\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2 = 1 \quad (2.7)$$

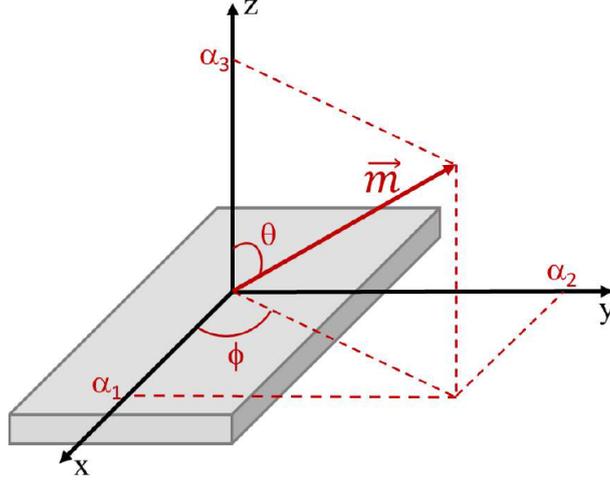


Figura 2.2: Coordenadas esféricas do vetor de magnetização.

Assim é possível expressar a energia magnetocristalina (E_{cri}) como uma série de potências da magnetização. Para um filme ferromagnético de magnetização \vec{M} a expressão generalizada da energia magnetocristalina fica

$$\begin{aligned}
 E_{cri}(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) &= E_0 + \sum_i b_i \alpha_i + \sum_{i,j} b_{ij} \alpha_i \alpha_j \\
 &+ \sum_{i,j,k} b_{i,j,k} \alpha_i \alpha_j \alpha_k + \sum_{i,j,k,l} b_{i,j,k,l} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l + \dots
 \end{aligned} \quad (2.8)$$

onde os termos $E_0, b_i, b_{i,j}, b_{i,j,k}, \dots$ correspondem as constantes da energia magnetocristalina cúbica de ordem zero, um, dois, três, ..., respectivamente. Essa energia depende da direção de magnetização e não do sentido, então os termo ímpares da Equação 2.8 devem ser desconsiderados para garantir $E(\vec{M}) = E(-\vec{M})$ ou $E(\alpha_i) = E(-\alpha_i)$. Desta forma a equação se reduz a

$$E_{cri}(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) = E_0 + \sum_{i,j} b_{ij} \alpha_i \alpha_j + \sum_{i,j,k,l} b_{i,j,k,l} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l + \dots \quad (2.9)$$

A equação 2.9 representa a forma geral da energia magnetocristalina. Dependendo da estrutura cristalina cada termo irá se expandir de forma diferente. Os principais sistemas a serem estudados são os sistemas (i) cúbicos e (ii) uniaxiais.

As constantes fenomenológicas que serão deduzidas a seguir, dependem do material e da temperatura. A experiência mostra que elas descrevem bem os resultados experi-

mentais, e seus sinais determinam o eixo fácil de magnetização, que pode ser identificado calculando o mínimo da energia magnetocristalina [9].

2.3.1 Simetria Cúbica

Para o caso de sistemas cúbicos deve-se expandir os termos da Equação 2.9, começando pelo termo de segunda ordem, temos:

$$\begin{aligned} \sum_{i,j} b_{i,j} \alpha_i \alpha_j &= b_{11} \alpha_{11}^2 + b_{22} \alpha_{22}^2 + b_{33} \alpha_{33}^2 \\ &+ (b_{12} + b_{21}) \alpha_1 \alpha_2 + (b_{13} + b_{31}) \alpha_1 \alpha_3 + (b_{23} + b_{32}) \alpha_2 \alpha_3 \end{aligned} \quad (2.10)$$

O mínimo da energia depende apenas da direção e não do sentido ($E(\vec{M}) = E(-\vec{M})$) da magnetização, então os termos cruzados devem ser considerados nulos ($b_{ij} = 0 \rightarrow \forall i \neq j$). Em sistemas cúbicos, os valores do índice i (1, 2 ou 3), são indistinguíveis, logo $b_{11} = b_{22} = b_{33}$. Então o termo anterior pode ser reescrito como

$$\sum_{i,j} b_{i,j} \alpha_i \alpha_j = b_{11} (\alpha_{11}^2 + \alpha_{22}^2 + \alpha_{33}^2) \quad (2.11)$$

Expandindo o terceiro termo da Equação 2.9 obtemos

$$\sum_{i,j,k,l} b_{i,j,k,l} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l = b_{1111} (\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4) + 6b_{1122} (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \alpha_3^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2) \quad (2.12)$$

Os termos ímpares foram tornados nulos para garantir ($E(\vec{M}) = E(-\vec{M})$). Usando as seguintes relações matemáticas baseadas na condição de normalização mostrada na Equação 2.7, obtemos a seguinte expressão matemática [9]:

$$1 = (\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2)^2 = \alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4 + 2(\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \alpha_3^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2) \quad (2.13)$$

Substituindo as identidades 2.7, 2.13, e os termos 2.11 e 2.12 na Equação 2.9 a energia magnetocristalina cúbica é:

$$E_{Cris}^{Cubica} = E_0 + b_{11} + b_{1111}(\alpha_1^4 + \alpha_2^4\alpha_3^4) + 6b_{1122}(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2) \quad (2.14)$$

Relacionamos as constantes E_0 e b_{ijkl} por coeficientes K_{Ci} , onde os coeficientes são chamados de coeficientes de anisotropia magnetocristalina cúbica

$$E_C = K_{C0} + K_{C1}(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2) + K_{C2}(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) + \dots \quad (2.15)$$

Sabendo que $K_{C1} \gg K_{C2}$, e substituindo as expressões envolvendo os cossenos diretores, apresentadas na Equação 2.6 na equação anterior obtemos

$$E_C = K_{C0} + \frac{1}{4}K_{C1}(\sin^4\theta \sin^2 2\phi + \sin^2 2\theta) \quad (2.16)$$

A constante de anisotropia magnetocristalina K_{C1} pode assumir valores positivos ou negativos [7], e sua unidade no sistema CGS é erg/cm^2 . Os filmes finos com simetria cúbica apresentam uma simetria $C4$. Ela pode ser percebida na dependência angular da ressonância ferromagnética sendo caracterizada por quatro picos de eixos fáceis e duros defasados em 90° . Um exemplo disto é apresentado na Figura 2.3.

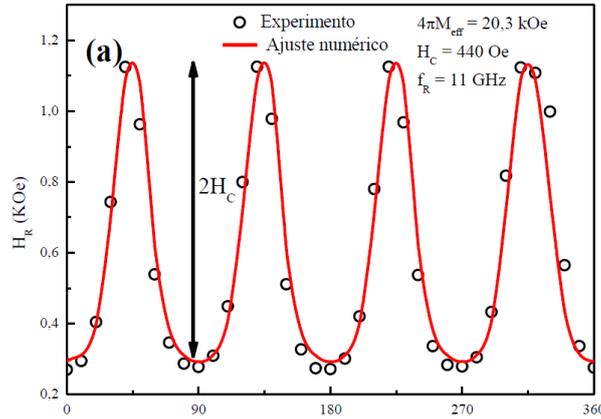


Figura 2.3: Dependência angular do campo de ressonância ferromagnética de simetria cúbica de filme de Fe(11 nm), usando uma frequência de microondas de 11 GHz [10].

2.3.2 Simetria Uniaxial

A simetria uniaxial surge de materiais com simetria cristalina hexagonal ou trigonal, onde o eixo fácil coincide com eixo uniaxial c , logo qualquer direção no plano perpendicular a esse eixo será um eixo duro. A Figura 2.4 apresenta a estrutura hexagonal de um monocristal de Cobalto e suas curvas de magnetização ao lado. Para o eixo de fácil magnetização, o campo magnético de saturação é aproximadamente de 1 kOe para a direção $[0001]$. Para o eixo duro o campo magnético de saturação está em torno de 10 kOe na direção $[10\bar{1}0]$, aproximadamente dez vezes maior que o necessário para saturar o eixo fácil de magnetização.

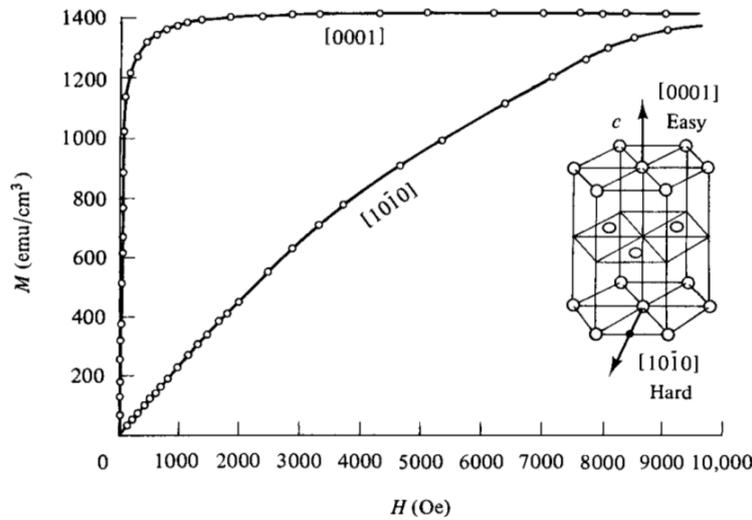


Figura 2.4: Curvas de magnetização de um monocristal de Cobalto com simetria uniaxial em relação a seus eixos de simetria [14].

Além dos materiais monocristalinos, essa simetria também surge em materiais policristalinos e sua origem está relacionada com a assimetria do grão ferromagnético sendo induzida durante o processo de fabricação do filme, criando uma morfologia específica e conseqüentemente um eixo fácil de magnetização [7]. Diversos métodos de fabricação de amostras que induzem o aumento da anisotropia uniaxial, como por exemplo a aplicação de um campo magnético durante a deposição [17–22], aquecimento através de um campo magnético [23–25] e a deposição oblíqua [26–38].

A Figura 2.5 apresenta uma imagem de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV) de um filme fino policristalino de Cobalto produzido por *sputtering* na condição de deposição oblíqua [39]. Esta imagem mostra que a deposição oblíqua cria um filme policristalino com grãos alongados em uma dada direção. Mais detalhes sobre a indução de anisotropia uniaxial serão apresentados adiante.

Filmes que apresentam anisotropia uniaxial no plano ($\theta = \frac{\pi}{2}$) também possuem uma

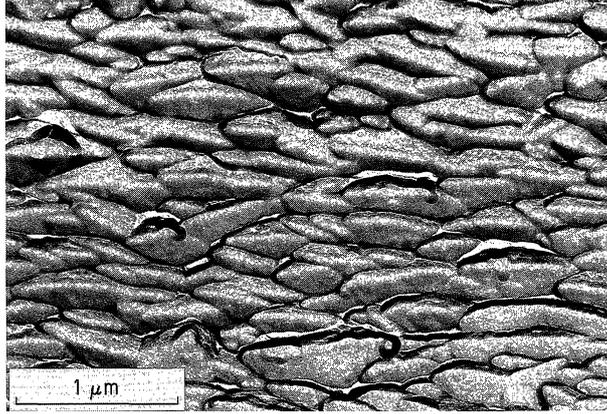


Figura 2.5: Imagem de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV) para um filme fino ferromagnético de Cobalto fabricado por deposição oblíqua [39].

dependência uniaxial para a energia. Então acrescentamos potencias pares para o ângulo azimutal resultando em

$$E_U(\theta, \phi) = (K_{U1} \sin^2\theta \sin^2(\phi - \eta) + K_{U2} \sin^4\theta \sin^4(\phi - \eta))t \quad (2.17)$$

onde η é a direção do eixo uniaxial em relação ao eixo x cartesiano e K_{U1} e K_{U2} são as constantes de anisotropia uniaxial de primeira e segunda ordem, respectivamente.

Na Figura 2.6 é apresentado um exemplo de dependência angular da ressonância ferromagnética de um filme fino ferromagnético policristalino de Cobalto com 3 nm de espessura apresentando uma simetria $C2$, caracterizando a simetria uniaxial.

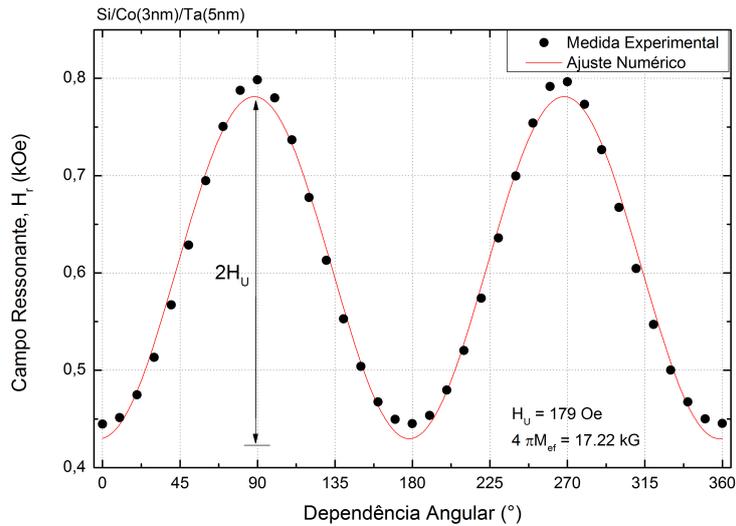


Figura 2.6: Dependência angular da ressonância ferromagnética de um filme fino policristalino de Cobalto 3 nm, frequência 9,22 GHz, apresentando a simetria uniaxial.

2.4 Energia de Superfície

A superfície de sólidos possui uma quebra na simetria da estrutura cristalina. Isso resulta na adição de novos termos a serem considerados no somatório da energia livre magnética total. Proporcionalmente existem mais átomos pertencentes à superfície para filmes finos do que para filmes espessos, logo, essa energia desempenha um papel importante para filmes finos até 10 nm. Neel foi o primeiro, em 1958, a propor sua existência [40].

Fenomenologicamente esta anisotropia é perpendicular ao plano da amostra, e sua expressão matemática para a energia de superfície por unidade de área é dado por

$$E_S = -K_{ef} \cos^2\theta \quad (2.18)$$

onde θ é o ângulo entre a direção da magnetização e a direção normal ao plano do filme. K_{ef} é a constante de anisotropia de superfície efetiva e sua unidade no sistema CGS é erg/cm^2 , que contém as contribuições de superfície K_S e de volume K_V . No caso de K_{ef} negativo, a magnetização tende para o plano da amostra, no caso positivo a magnetização tende para fora do plano da amostra.

Os primeiros a explicarem esta anisotropia foram Draaisma *et al.* trabalhando com filmes de *Co/Pd* propondo que o termo K_{ef} fosse expresso por [41]:

$$K_{ef} = K_V + \frac{2K_S}{t} \quad (2.19)$$

O termo K_S é multiplicado por dois devido a superfície ter dois lados e t é a espessura do filme. Definimos o conceito de espessura crítica t_c como o valor da espessura do filme onde a magnetização está perpendicular a sua superfície. Ela acontece quando o valor da constante de anisotropia de superfície efetiva é nula ($K_{ef} = 0$), então a espessura crítica é dada por

$$t_c = -\frac{2K_S}{K_V} \quad (2.20)$$

Para $t < t_c$ a magnetização é perpendicular a superfície do filme, e para $t > t_c$ a

magnetização é paralela ao plano do filme. Na Figura 2.7a e Figura 2.7b é apresentado um exemplo do comportamento da constante K_{ef} em função da espessura para filmes finos simples ferromagnéticos de Co/Pd a partir de duas temperaturas de crescimento diferentes, 20°C e 200°C , e sobre dois substratos diferentes, vidro e mica respectivamente, usando o método de crescimento epitaxial dentro de uma câmara de Ultra Alto Vácuo (UHV) (ver Figura 2.7) [42].

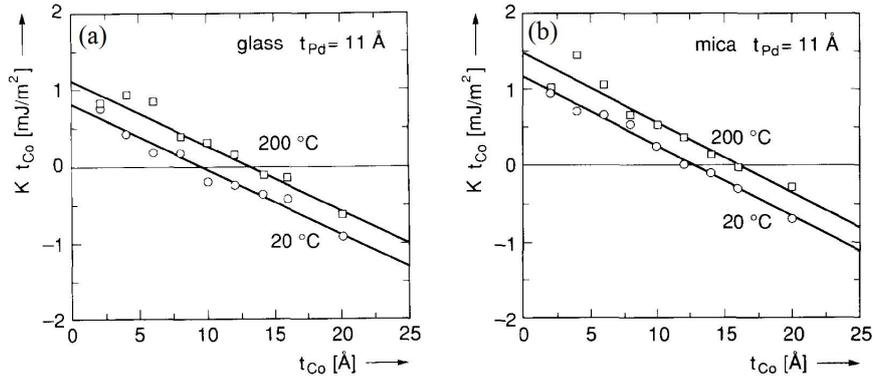


Figura 2.7: Dependência de K_{ef} em função da espessura t para filmes finos de Co/Pd crescidos em UHV para duas temperaturas de crescimento diferentes, 20°C e 200°C , e para dois substratos diferentes (a) vidro e (b) mica [42].

Os filmes tratados neste trabalho apresentam uma espessura maior que a espessura crítica, então sua magnetização está presa no plano do filme.

2.5 Anisotropia de Desmagnetização

A energia de desmagnetização, surge da existência de dipolos magnéticos não compensados na superfície da amostra quando magnetizada. A Figura 2.8 apresenta um diagrama que mostra o alinhamento dos momentos magnéticos com relação ao campo externo H_0 gerando uma magnetização \vec{M} e o surgimento de um campo de desmagnetização antiparalelo a magnetização. Dentro do grão os dipolos magnéticos se cancelam, porém nas extremidades do grão surgem dipolos magnéticos não compensados criando o campo desmagnetizante H_d (ver Figura 2.8).

O campo magnético interno da amostra depende da forma dos grãos e da direção do campo externo \vec{H} . Para grãos elípticos o campo magnético local interno é descrito como [43]:

$$\vec{H}_i = \vec{H} - \vec{H}_D \quad (2.21)$$

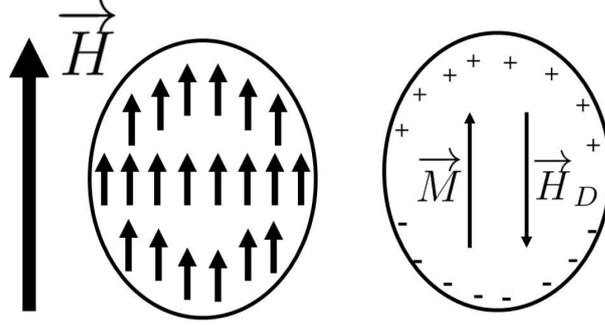


Figura 2.8: Diagrama mostrando o alinhamento dos momentos magnéticos paralelo ao campo magnético H gerando uma magnetização \vec{M} . Devido aos dipolos magnéticos não compensados nas extremidades dos grãos surge um campo desmagnetizante H_d , de sentido oposto ao campo externo e a magnetização.

onde \vec{H}_D depende da forma da amostra e é proporcional da magnetização e tem sentido oposto, então

$$\vec{H}_D = -\bar{\bar{D}} \cdot \vec{M} \quad (2.22)$$

onde $\bar{\bar{D}}$ é chamado de tensor de desmagnetização. A equação que descreve a energia de desmagnetização por unidade de área é definida como

$$E_D = -\frac{1}{2} \int \vec{M} \cdot \vec{H}_D dV \quad (2.23)$$

O fator de 1/2 evita que a energia dos dipolos sejam contados duas vezes. Substituindo a Equação 2.22 na Equação 2.23 é obtido

$$E_D = \frac{1}{2} V \vec{M} \cdot \bar{\bar{D}} \cdot \vec{M} \quad (2.24)$$

onde V é o volume da amostra e $\bar{\bar{D}}$ é um tensor diagonal que representa os eixos de um elipsóide [9], cujo traço, no sistema CGS, é

$$D_{xx} + D_{yy} + D_{zz} = 4\pi \quad (2.25)$$

O vetor magnetização \vec{M} no sistema de coordenadas esféricas pode ser representado

da seguinte forma

$$\vec{M} = M(\text{sen}\theta \cos\phi\hat{i} + \text{sen}\theta \text{sen}\phi\hat{j} + \cos\theta\hat{k}) \quad (2.26)$$

então

$$E_D = \frac{1}{2}VM^2(D_{xx}\text{sen}^2\theta \cos^2\phi\hat{i} + D_{yy}\text{sen}^2\theta \text{sen}^2\phi\hat{j} + D_{zz}\cos^2\theta\hat{k}) \quad (2.27)$$

Para um filme fino apenas D_{zz} é diferente de zero ($D_{zz} = 4\pi$), então a equação anterior é reduzida a

$$\frac{E_D}{A} = 2\pi tM^2 \cos^2\theta \quad (2.28)$$

A equação 2.28 descreve o comportamento da energia de desmagnetização para um grão ferromagnético de geometria elíptica. Os ângulos de mínima energia são para $\theta = \frac{\pi}{2}$ e $\frac{3\pi}{2}$. Esta anisotropia tem por consequência manter a magnetização no plano dos filmes finos. Outro efeito é conhecido como *self-shadowing*, é induzido pela deposição oblíqua, que gera grãos alongados de forma perpendicular a projeção da direção de deposição no plano do filme (ver Figura 2.5). Filmes policristalinos depositados por esse método apresentam uma simetria C2 e o eixo de fácil magnetização está na direção do eixo alongado do grão e o eixo duro está na direção perpendicular.

Pode existir a competição entre a energia de superfície, dada pela Equação 2.18, com a energia de desmagnetização, dada pela Equação 2.28, fazendo com que a magnetização tenha uma componente fora do plano ($\cos\theta \neq 0$). As energias associadas a superfície e a desmagnetização possuem a mesma dependência angular e são proporcionais ao $\cos^2\theta$. Desta forma é possível escrever a equação da anisotropia de desmagnetização e de anisotropia de superfície em uma equação apenas, chamada de energia de forma [7].

$$\frac{E_F}{A} = t \left(2\pi M^2 - \frac{2K_s}{t} \right) \cos^2\theta \quad (2.29)$$

2.6 Energia Livre Magnética para Filme Simples

A partir do que foi apresentado, é possível descrever a energia livre magnética total para os filmes ferromagnéticos finos simples da seguinte forma

$$E = E_Z + E_F + E_C + E_U \quad (2.30)$$

Substituindo as Equações 2.4, 2.16, 2.17, 2.29 na Equação 2.30 obtemos a energia livre total em coordenadas esféricas

$$\begin{aligned} E = & -MH[\text{sen}\theta_H \text{sen}\theta \cos(\phi + \phi_H) + \cos\theta_H \cos\theta] \\ & + \left(2\pi M^2 - \frac{2K_S}{t}\right) \cos^2\theta \\ & + K_{C0} + \frac{1}{4}K_{C1}(\text{sen}^4\theta \text{sen}^2 2\phi + \text{sen}^2 2\theta) \\ & + (K_{U1} \text{sen}^2\theta \text{sen}^2(\phi - \eta) + K_{U2} \text{sen}^4\theta \text{sen}^4(\phi - \eta))t \end{aligned} \quad (2.31)$$

2.7 Energia Livre Magnética para Bicamadas FM/AF

Até agora, foram apresentadas as principais energias magnéticas presentes em um filme simples ferromagnético. Agora, será abordado a interação da bicamada FM/AF que é composta de um filme antiferromagnético crescido sobre um filme ferromagnético. Para o tratamento fenomenológico de multicamadas, deve-se somar a energia magnética livre de cada filme ferromagnético (Equação 2.31), os termos referentes as interações entre as camadas FM e AF.

2.7.1 Energia de Exchange Bias

O *exchange bias* é um fenômeno causado pela interação de troca entre uma camada ferromagnética e outra antiferromagnética. O fenômeno consiste em um campo magnético que favorece a magnetização em um dado sentido, aumentando a coercividade e deslocando horizontalmente em campo a curva de histerese.

Em 1956, Meiklejohn e Bean estudaram o comportamento magnético de esferas de Cobalto. Estas esferas tinham sua superfície oxidada (CoO), cujo óxido possui temperatura

de Néel abaixo da temperatura ambiente [44, 45]. Foi observado que acima da temperatura de Néel a histerese das esferas era centrada em campo magnético zero. Quando o sistema era resfriado sob influência de um campo magnético abaixo a temperatura de Néel foi observado um deslocamento da curva de histerese, mostrando que havia algum tipo de interação entre o núcleo ferromagnético e a casca antiferromagnética. A Figura 2.9 mostra o desenho esquemático da esfera de cobalto com uma fina camada de CoO, que tem a característica semelhante a de uma bicamada FM/AF, e a curva de histerese da partícula em duas condições: (i) com a curva de histerese acima da temperatura de Néel, centrada em campo magnético zero (curva em círculos) e (ii) com o sistema resfriado sob campo aplicado abaixo da temperatura de Néel. Note que, a histerese se desloca para esquerda (curva em quadrados), além de apresentar um aumento do campo coercivo. Este deslocamento em campo do ciclo de histerese, implica que para uma mesma direção, os sentidos opostos possuem magnetizações de saturação diferentes.

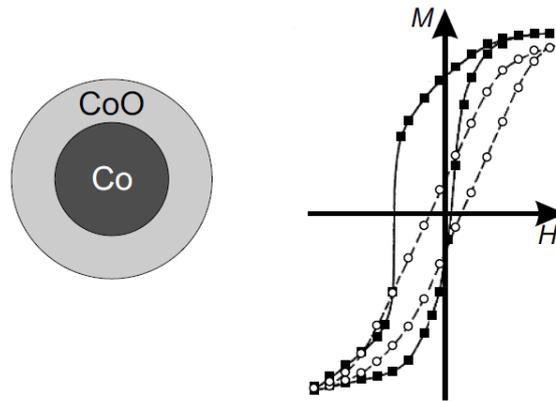


Figura 2.9: Desenho esquemático da esfera de Cobalto com uma fina camada de CoO e a direita as curvas de histerese da partícula acima da temperatura de Néel (em círculos) e abaixo da temperatura de Néel (em quadrados) sob um campo magnético aplicado [44].

A Figura 2.10 apresenta um modelo que explica de forma esquemática o deslocamento do ciclo de histerese. Acima da temperatura de Néel, e abaixo da temperatura de Curie, como indicado na Figura 2.10a, o filme antiferromagnético não apresenta nenhum ordenamento, então o magnetismo observado é apenas da camada ferromagnética, e o filme ferromagnético apresenta uma curva de histerese centrada em campo magnético zero. Resfriando o sistema abaixo da temperatura de Néel com o campo magnético aplicado, o filme antiferromagnético apresenta ordenamento magnético, e haverá em sua superfície um campo magnético descompensado, que também pode ser visto como um campo magnético interno dentro do filme. Esse campo interage com o filme ferromagnético orientando-o (veja na Figura 2.10b). Neste caso para inverter e saturar a magnetização do filme ferromagnético, é necessário aplicar um campo magnético muito maior se comparado com

o caso da Figura 2.10a para vencer o torque criado pelo campo magnético interno, mostrado nas Figuras 2.10c e 2.10d. Ao se diminuir em módulo o campo magnético externo a magnetização do filme ferromagnético gira na direção do campo interno (ver na Figura 2.10e).

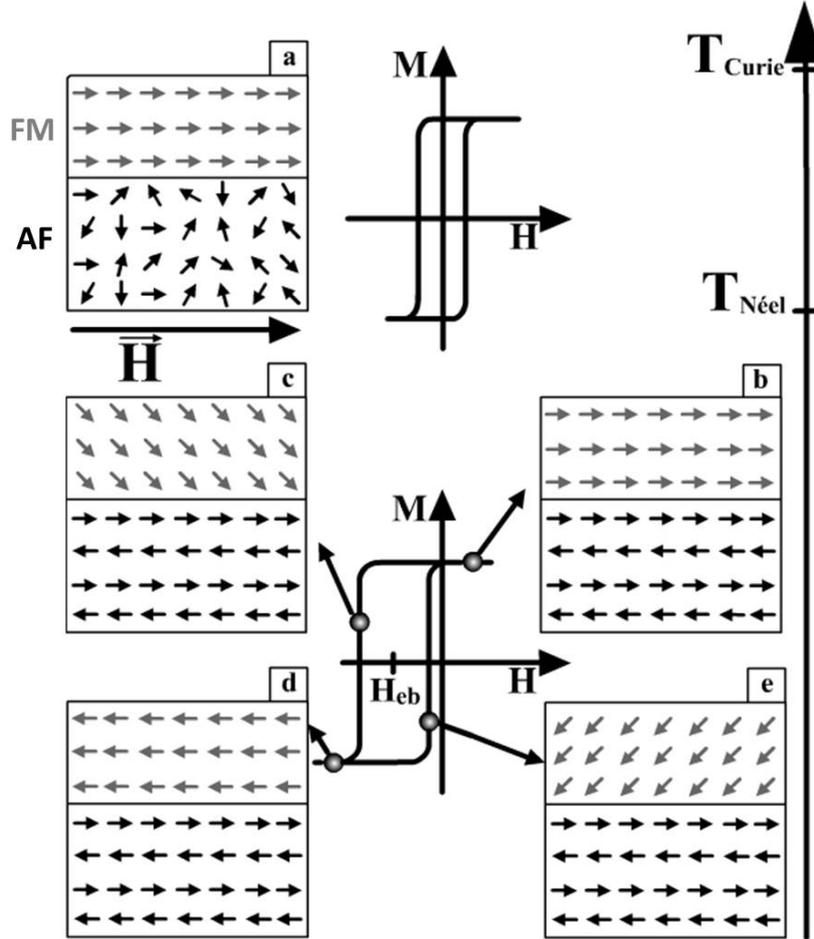


Figura 2.10: Modelo das curvas de histerese para uma bicamada FM/AF, (a) acima e (b),(c),(d) e (e) abaixo da temperatura de Néel explicando o deslocamento da histerese devido ao fenômeno de *exchange bias* [7].

Meiklejohn e Bean foram os primeiros a verificar o fenômeno e propor um modelo teórico. Foi proposto que o material ferromagnético é composto por um monodomínio em que a magnetização gira de forma uniforme durante o ciclo de histerese. A energia de *exchange bias* é dada por [44, 45]

$$E_{eb} = -J_{ex} \cos(\phi - \phi_{ex}) \quad (2.32)$$

onde J_{ex} é a constante de anisotropia de *exchange bias* e $\phi - \phi_{ex}$ é o ângulo entre a direção

da magnetização e a direção da anisotropia de *exchange bias* que também podemos chamar de anisotropia unidirecional. A energia é mínima quando a magnetização é paralela ao campo de anisotropia, e máxima quando eles são opostos, no caso de J_{ex} positivo. Definimos $H_{eb} = \frac{J_{ex}}{tM_{FM}}$ como campo de *exchange bias*.

2.7.2 Energia de Parede de Domínio

O modelo de *exchange bias* não explica por completo a interação entre os filmes FM/AF. Para complementar a teoria, Néel propôs um modelo em que ele abandona a rigidez da fase antiferromagnética, podendo esta fase apresentar uma parede de domínio na interface FM/AF [40, 46]. A formação da parede de domínio pode diminuir de forma considerável a energia magnética e o valor teórico do campo de *exchange bias*. O modelo utilizado nesse trabalho foi proposto por Mauri *et al.* [47], que incorpora a energia da parede de domínio no tratamento fenomenológico dos filmes FM/AF (ver Figura 2.11).

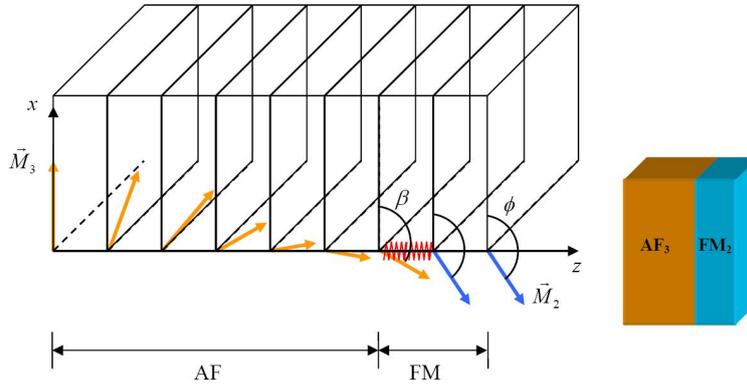


Figura 2.11: Parede de Domínio na interface de uma bicamada FM/AF [52].

A Figura 2.11 apresenta um diagrama que representa a formação de parede de domínio no filme AF. É importante destacar que este modelo, fornece valores teóricos mais próximos dos verificados experimentalmente, pois parte da energia fornecida ao sistema é consumida na formação da parede de domínio.

Esta parede de domínio poderia ser gerada tanto no material FM quanto no AF. Porém, para gerar uma parede estável em um material FM, este precisaria ter espessura da ordem de 100 nm [48]. Como neste trabalho as espessuras são da ordem de 10 nm, será considerado que a parede de domínio é formada no material AF. Esta anisotropia é dada pela equação

$$E_W = \sigma_W(1 - \cos\beta) \quad (2.33)$$

onde $\sigma_W = 2\sqrt{AK_{AF}}$ é a energia magnética do filme AF e lembrando que β é o ângulo entre a magnetização da camada ferromagnética com o eixo unidirecional do filme anti-ferromagnético. As constantes A e K_{AF} são as constantes de *exchange bias* e anisotropia cristalina no AF, respectivamente.

2.7.3 Anisotropia Rotatória

Stiles e McMichiel [49, 50] proporam um modelo que leva em consideração os tamanhos e as direções dos grãos de qual os filmes são feitos. Este modelo é tratado para filmes policristalinos. A anisotropia rotatória se comporta como um campo magnético interno que gira junto com o filme e é sempre paralelo ao campo externo, justificando seu nome. O termo de anisotropia rotatória deve ser acrescentado em medidas dinâmicas, como por exemplo, a ressonância ferromagnética [51].

A anisotropia rotatória pode ser expressa pelo produto escalar do campo rotatório com o vetor de magnetização dado por

$$E_{rot} = -\vec{M}_{FM} \cdot \vec{H}_{rot} \quad (2.34)$$

onde \vec{H}_{rot} define o campo de anisotropia rotatória e \vec{M}_{FM} a magnetização da camada FM.

As Figuras 2.12a e 2.12b apresentam as dependências angulares de FMR simuladas numericamente para um filme simples FM (em verde) e para uma bicamada FM/AF (em vermelho), e por fim, os valores médios do campo de ressonância (em preto). Esta anisotropia é responsável por deslocar de forma isotrópica, toda a dependência angular do campo de ressonância de forma vertical e para baixo. Note que, para H_{RA} igual a zero (Figura 2.12a), o campo de ressonância médio para o filme simples e para a bicamada são iguais. Para H_{RA} diferente de zero, o campo de ressonância médio para o filme simples e para a bicamada são diferentes, e essa diferença, é associada ao campo efetivo que surge devido aos grãos AF instáveis que se alinham de forma irreversível a magnetização do FM.

A informação importante para se observar é o comportamento da dependência angular da bicamada FM/AF considerando a anisotropia rotatória igual a (a) zero e (b) diferente de zero. Pode-se observar que esta anisotropia desloca a dependência angular de forma isotrópica. Será apresentado mais adiante a equação para esta simulação.

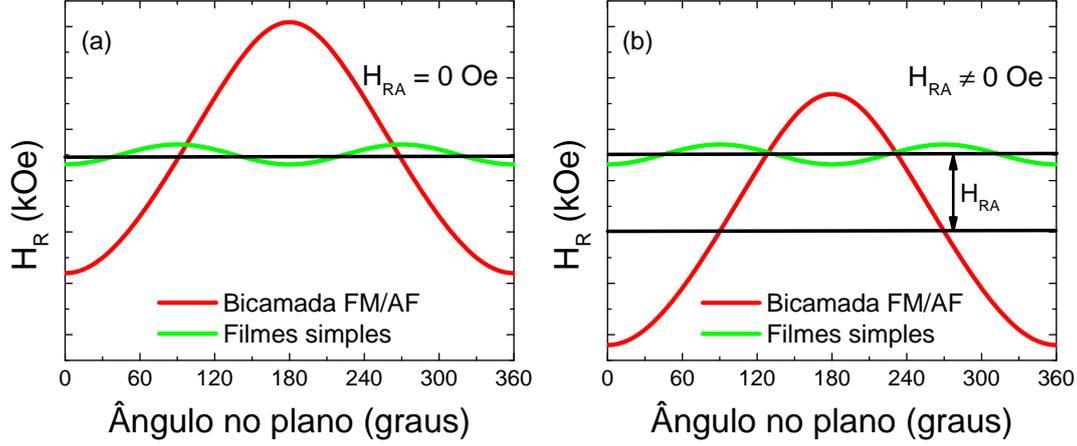


Figura 2.12: Dependências angulares de FMR simuladas numericamente de um filme simples FM (em verde), uma bicamada FM/AF (em vermelho) e os valores médios do campo ressonante (em preto). A informação importante para se observar é o comportamento da dependência angular da bicamada FM/AF considerando a anisotropia rotatória igual a (a) zero e (b) diferente de zero [7].

2.7.4 Energia Livre Magnética para uma Bicamada FM/AF

Para a bicamada FM/AF a energia total é a soma da energia da camada FM mais as interações entre as camadas.

$$E = E_{FM} + E_{eb} + E_W + E_{rot} \quad (2.35)$$

que pode ser reescrito a partir das Equações 2.31, 2.32, 2.33, e 2.34, da seguinte forma:

$$E = - \left[\vec{M}_1 \cdot \vec{H} + \left(2\pi M_1^2 - \frac{2K_S}{t_1} - K_{U1} + K_{C1} \right) \left(\frac{\vec{M}_1 \cdot \hat{n}}{M_1} \right)^2 \right] t_1 \quad (2.36)$$

$$- J_{EX} \frac{\vec{M}_1 \cdot \vec{M}_2}{M_1 M_2} - \sigma_W \left(\frac{\vec{M}_2 \cdot \hat{u}}{M_2} \right) - H_{rot} \cdot \vec{M}_1 t_1$$

o índice 1 da equação acima refere-se a camada FM e o índice 2 a camada AF, e \hat{u} define a direção da anisotropia uniaxial do filme AF assumindo que ela coincide com a do filme FM.

Capítulo 3

Técnicas Experimentais

Nesta seção serão apresentadas as técnicas experimentais utilizadas para fabricar e caracterizar os filmes finos magnéticos. Na seção 3.1, será abordada a técnica de evaporação catódica ou *sputtering* empregada para a fabricação das amostras. Duas técnicas de magnetometria foram utilizadas neste trabalho: magnetometria de amostra vibrante (VSM) e magnetometria Kerr (MOKE), que serão discutidas nas seções 3.2.1 e 3.2.2, respectivamente. Finalmente, a principal técnica experimental de caracterização utilizada neste trabalho, a Ressonância Ferromagnética (FMR) será exposta na seção 3.3.

3.1 Evaporação Catódica (*Sputtering*)

A técnica utilizada neste trabalho para a deposição dos filmes foi a evaporação catódica também conhecida como *sputtering*. Este método de deposição é muito utilizado na indústria para a fabricação de filmes finos, como por exemplo as válvulas de spin utilizadas nas cabeças de leituras dos discos rígidos. As primeiras deposições utilizando esse método foram feitas nos anos 50 [53]. Esta técnica consiste na aceleração dos íons de um plasma, geralmente Argônio, contra o alvo de interesse. Na transferência de momento dessa colisão são arrancados átomos do alvo e posteriormente depositados sobre o substrato (ver Figura 3.1). O procedimento experimental para deposição se divide nas seguintes etapas:

- Evacuação: Com o substrato devidamente preparado (limpo através de ciclos de ultrassom com acetona e álcool isopropílico) e posicionado dentro da câmara, esta é evacuada por bombas de vácuo a pressões de ordem de 10^{-8} Torr (pressão de base) com o objetivo de retirar o máximo de gases residuais que possam contaminar as amostras.

- Injeção de Gás: É injetado na câmara um gás de argônio de alta pureza (99,99%) até a pressão da ordem de 10^{-3} Torr (pressão de trabalho).
- Plasma: Uma diferença de potencial é aplicado entre as placas do ânodo e cátodo, criando um gás ionizado (plasma). Os íons de Argônio são acelerados contra o alvo e nesta colisão são ejetados os átomos a serem depositados sobre o substrato.
- Pré-sputtering: Geralmente os alvos são expostos a pressão atmosférica durante o posicionamento da amostra e mesmo dentro da câmara com vácuo, uma certa quantidade de gás residual pode ser adsorvida na sua superfície. Para evitar que as amostras produzidas tenham algum tipo de contaminação, é feito uma deposição sobre uma tampa móvel de forma pneumática, localizada logo acima dos magnetrons. Este acessório tem a função de receber deposições irrelevantes, protegendo os demais alvos de contaminação quando outro esteja sendo utilizado, e também, evitar deposições indesejáveis dentro da câmara e na superfície do substrato, e é chamado de *shutter*. A finalidade deste procedimento é remover algumas camadas atômicas contaminadas/oxidadas do alvo, e conseqüentemente, garantir sua pureza.
- Sputtering: o *shutter* é aberto, permitindo a deposição sobre o substrato. A espessura do filme depositado pode ser controlada através de uma balança de Quartzo. Com isto os parâmetros de deposição são padronizados, como a pressão de Argônio, a tensão de aceleração, a corrente de íons e a potência, obtendo assim uma função da espessura do filme em relação ao tempo de deposição (taxa de deposição).

Durante o processo de deposição pode-se observar a produção de uma descarga luminosa. Isso acontece porque durante o processo de ionização do gás, estes átomos ficam excitados e logo depois decaem emitindo fótons.

As deposições por *sputtering* podem ser classificadas nos seguintes modos: DC, RF, magnetron e reativo. A seguir será apresentado sucintamente cada uma destes:

- Na técnica DC (*Direct-current sputtering*) os eletrodos são organizados de forma similar às placas de um capacitor plano. O plasma é mantido a partir de uma corrente contínua e é usada em alvos metálicos, pois os alvos isolantes acumulam cargas limitando o processo. A voltagem típica de trabalho está na ordem de 500 – 5000 V que é responsável por manter o plasma constante [54].
- Na técnica RF (*Radio-frequency sputtering*) o plasma é produzido por um sinal AC entre os eletrodos, da ordem de 10 MHz. Neste regime de trabalho somente os elétrons podem acompanhar as flutuações temporais do campo AC reduzindo com

isto a necessidade de criar elétrons secundários para auto-sustentar a descarga. Este método é usado para alvos isolantes [34].

- Na técnica de *magnetron sputtering*, sobre o cátodo são fixados ímãs permanentes com o objetivo de confinar o plasma próximo a superfície do alvo. Os elétrons produzidos sofrem ação da força de Lorentz, aumentando o seu tempo de permanência dentro do plasma, logo a densidade de colisões é maior.
- E finalmente, na técnica de *sputtering reativo* filmes finos depositados a partir de alvos metálicos na presença da atmosfera inerte de Argônio juntamente com gases reativos, como os gases O_2 , N_2 , C_2H_2 , dentre outros. A presença destes gases modifica as reações no plasma e a cinética do crescimento, produzindo assim modificações na estrutura do filme crescido [34].

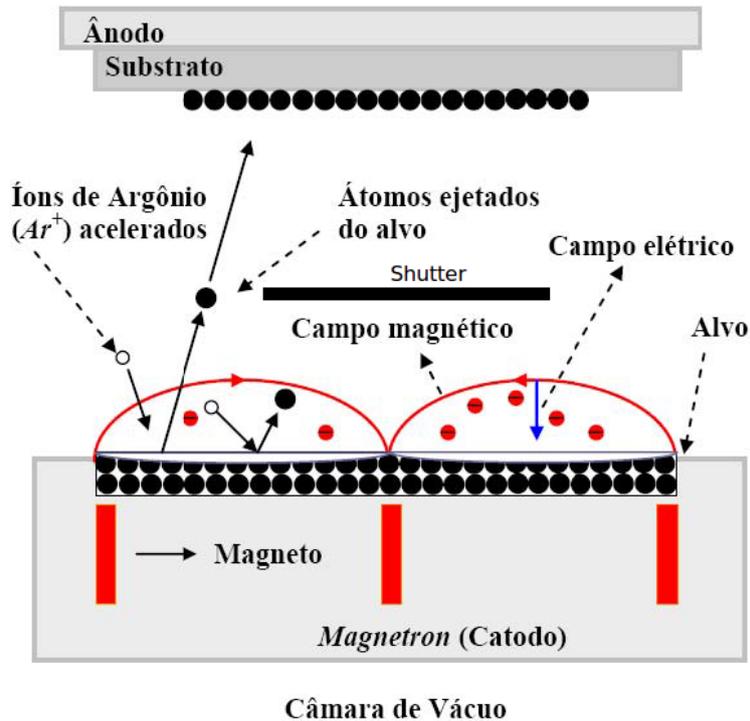


Figura 3.1: Processo simplificado de deposição por *Sputtering* [10][Modificado].

As amostras que foram produzidas e investigadas para essa dissertação, foram fabricadas a partir da técnica de *magnetron sputtering*. Este método tem a vantagem de produzir filmes menos rugosos, uma vez que se utiliza baixa pressão do Argônio e alta taxa de deposição, pois os ímãs posicionados sobre o alvo aumentam a taxa de colisão sobre o mesmo [55].

3.1.1 Deposição Oblíqua e Efeito de Sombra (*Self-Shadowing*)

A técnica de *sputtering* produz filmes policristalinos, porém é possível induzir e controlar a morfologia de sua superfície de forma a produzir grãos alongados que por sua vez, geram uma anisotropia magnética. Se existir alguma inclinação entre o alvo e o substrato, pode acontecer durante a deposição que os átomos depositados no substrato façam uma espécie de sombra entre si gerando uma região sem deposição e conseqüentemente uma direção preferencial de deposição. Este fenômeno é conhecido como efeito de sombra (*self-shadowing*) [56].

A Figura 3.2 apresenta um modelo do efeito *self-shadowing*. No início da deposição, Figura 3.2a, o vapor de partículas cria nucleações aleatórias sobre o substrato. Esses grãos, fazem sombras uns sobre os outros, fazendo com que o seu crescimento seja na forma de colunas, que são na direção de incidência do vapor de partículas. Além disso, cada coluna terá uma taxa de crescimento diferente, como mostrado na Figura 3.2b, formando uma textura na morfologia.

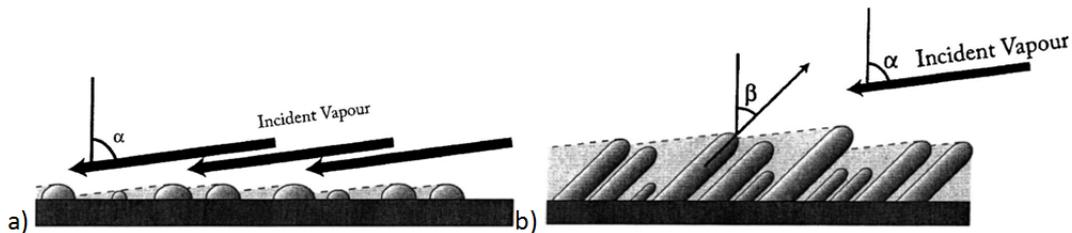


Figura 3.2: a) Nucleação das partículas depositadas aleatoriamente. b) A deposição cresce na forma de colunas inclinadas para a direção de incidência do vapor de partículas e além disso cada coluna terá uma taxa de crescimento diferente criando uma textura na morfologia [57].

Na Figura 3.3a é apresentado uma imagem de Microscopia Eletrônica de Transmissão (MET) de uma multicamada onde o filme de Tântalo (7 nm) foi crescido por *sputtering* oblíquo gerando uma textura devido o efeito *self-shadowing*. Além da textura surge uma anisotropia de forma devido ao alongamento dos grãos na direção perpendicular à projeção da deposição, como indicado na Figura 3.3b. Neste trabalho, realizado foi por Y.P. Fang *et. al.* [60], foi verificado através de microscopia de tunelamento (STM), que ao depositar Fe sobre silício de forma oblíqua, é induzida uma morfologia de grãos alongamentos perpendiculares a direção de deposição (Ver Figura 3.3b). Na Figura 3.3c é apresentado o mesmo filme produzido por uma deposição com incidência normal ao substrato, gerando um filme sem o efeito *self-shadowing*, onde os grãos são representados pelos pontos esféricos.

Na Figura 3.4 é apresentada uma imagem de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV) de um filme de Cobalto com 3,0 μm de espessura, onde é possível ver de forma

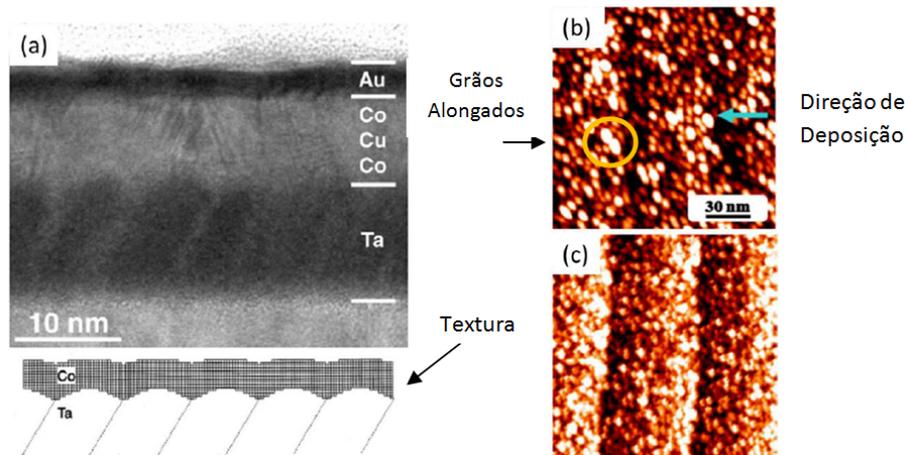


Figura 3.3: a) Imagem de Microscopia Eletrônica de Transmissão (MET) para uma multicamada onde o Tântalo (7 nm) foi fabricado por *sputtering* oblíquo com inclinação de 60° [49]. As imagens b) e c) foram feitas por Microscopia de Tunelamento (STM) para filmes de ferro crescidos por MBE sobre Si(111) com inclinação de 60° e 90° , respectivamente [60].

mais acentuada, o efeito de *self-shadowing* sobre a morfologia da superfície do filme. Esta anisotropia dos grãos, também induz uma anisotropia magnética, pois é verificado que o eixo fácil é paralelo ao alongamento dos grãos e o eixo duro perpendicular a esta direção. Amostras produzidas dessa forma apresentam uma anisotropia uniaxial induzida devido a anisotropia de forma, localizada no plano do filme [10].

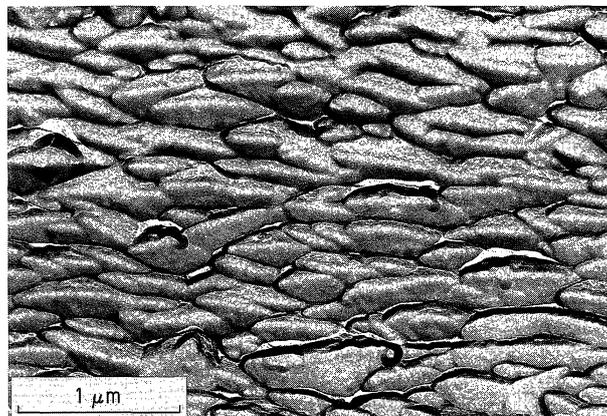


Figura 3.4: Um imagem de microscopia eletrônica de varredura de um filme fino de Cobalto $3,0 \mu\text{m}$ apresentando anisotropia de forma [39]. Esta figura foi apresentada anteriormente na seção 2.3.2, porém, ela foi novamente adicionada ao texto, visando melhorar a didática e facilitar a compreensão do assunto.

3.1.2 Fabricação das Amostras

O *magnetron sputtering* usado neste trabalho foi o equipamento ATC Orion Sputtering System, da Universidade Federal do Espírito Santo, sob coordenação do Professor Edson Passamani e de seus alunos (ver Figura 3.5).

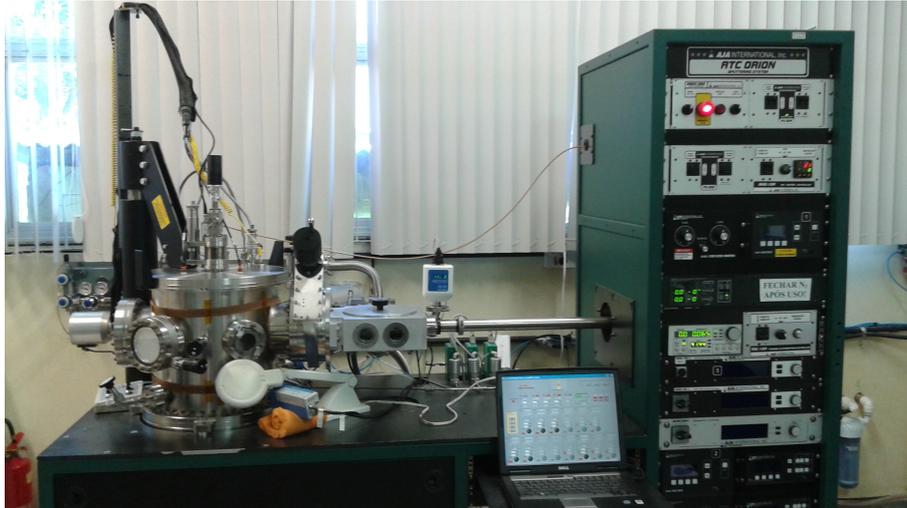


Figura 3.5: Fotografia da Máquina de Sputtering da DF/UFES.

Este equipamento tem a capacidade de depositar até sete materiais diferentes, pois dispõe de sete magnetrons independentes, permitindo inclusive deposições simultâneas. Os alvos de interesse para este trabalho são o Tântalo (metal não magnético (NM) usado como filme protetor (*buffer layer* e/ou *capping layer*)), os metais ferromagnéticos (FM) Cobalto e Permalloy (Py - Ferro 19% e Níquel 81%), e a liga antiferromagnética (AF) IrMn (Iridio 20% e Manganês 80 %), sendo depositados sob o Silício monocristalino na direção [100].

As amostras foram crescidas no porta-amostras da Figura 3.6b. Entre o porta-amostras e os alvos metálicos existe uma inclinação de aproximadamente 32° (ver Figura 3.6a). Essa inclinação é responsável pelas deposições serem oblíquas, logo, as amostras fabricadas dessa forma, possuem um eixo fácil bem definido, localizado de forma perpendicular a direção de deposição no plano do filme.

As amostras fabricadas foram as seguintes:

a) Filmes Simples Ferromagnéticos (FM):

- Si/Ta(10 nm)/Py(3 nm)/Ta(5 nm);
- Si/Ta(10 nm)/Py(10 nm)/Ta(5 nm);
- Si/Co(3 nm)/Ta(5 nm);
- Si/Co(1 nm)/Ta(5 nm).

b) Bicamada Ferromagnética/Antiferromagnética (FM/AF)

- Si/Ta(10 nm)/Py(10 nm)/IrMn(12 nm)/Ta(5 nm);

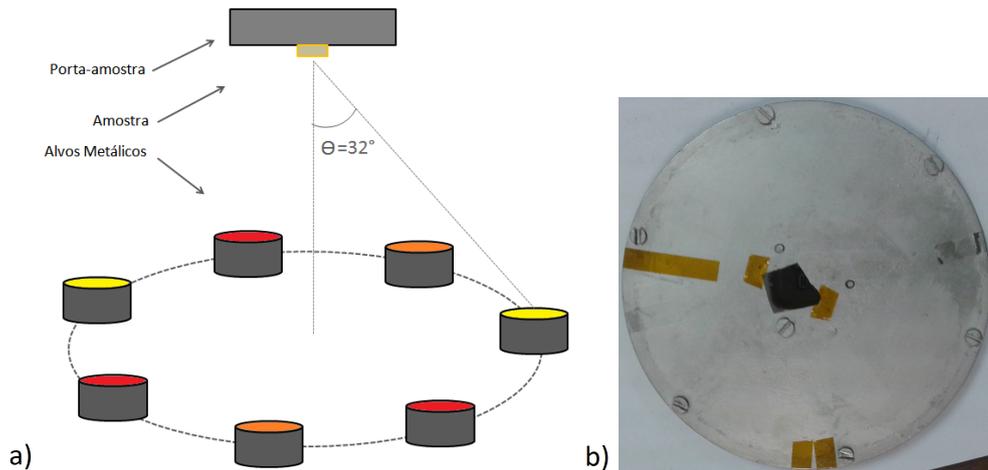


Figura 3.6: Em (a) o desenho esquemático da deposição oblíqua, e em (b) fixação do substrato de silício no porta-amostras do Sputtering da DF/UFES.

Durante a deposição dos filmes de Tântalo, o porta-amostras gira em uma velocidade de 30 rpm para se fazer um filme mais isotrópico possível, enquanto na deposição dos filmes magnéticos foi feita com o porta-amostras parado para induzir anisotropia segundo o efeito *self-shadowing*.

3.2 Técnicas de Magnetometria

Dentre as diversas técnicas de magnetometria as duas disponíveis para este trabalho foram: magnetômetro de amostra vibrante, ou VSM (VSM - *Vibrating Sample Magnetometer*), e o MOKE (*Magneto-Optical Kerr Effect*).

3.2.1 Magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM)

A técnica de VSM foi desenvolvida por Foner em 1955 [58] e é baseada na lei de indução de Faraday na qual a variação de fluxo magnético induz uma força eletromotriz em um condutor próximo. Seu princípio de funcionamento é fazer vibrar uma amostra magnetizada próximo a bobinas detectoras. Essa vibração é responsável pela variação de fluxo magnético, que produz uma tensão alternada proporcional a magnetização [14, 63].

Na Figura 3.7 pode ser visto o desenho esquemático de um VSM. As suas principais partes são (a) transdutor eletromecânico responsável pela vibração da amostra, (b) a haste onde se fixa a amostra que evidentemente não pode ser feita de material magnético, (c) o eletroímã que induz a magnetização na amostra, e finalmente (d) as bobinas detectoras responsáveis pela detecção do fluxo.

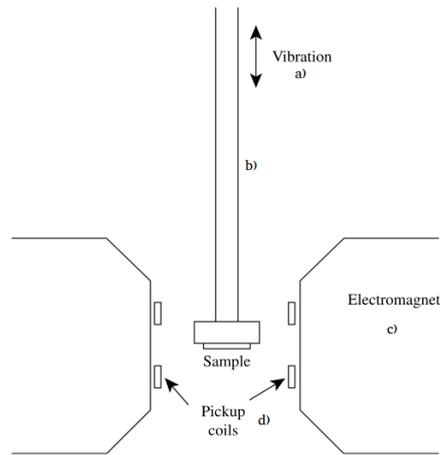


Figura 3.7: Desenho esquemático de um VSM indicando em a) transdutor eletromecânico responsável pela vibração da amostra, b) a haste onde se fixa a amostra, c) o eletroímã que induz a magnetização na amostra, e d) as bobinas detectoras responsáveis pela detecção do fluxo magnético [14] (Modificado).

Os principais fatores que influenciam na boa qualidade das medidas são: (i) frequência constante, (ii) estabilidade na amplitude de vibração, e (iii) fase do sinal de referência estável, quando a instrumentação utiliza um detector sensível de fase (*lock-in*).

As medidas de VSM foram feitas no Departamento de Física da Universidade Federal do Espírito Santo, em colaboração com o professor Edson Passamani Caetano e fazendo uso da infraestrutura do Laboratório de Espectroscopia Mössbauer e Magnetometria (Lemag). O equipamento utilizado para esta medida foi o PPMS (Physical Properties Measurement System - Figura 3.8). Este sistema permite a realização de medidas de calor específico, resistividade elétrica AC, curvas de magnetização em função do campo magnético no intervalo de $-70 \text{ Oe} < H < 70 \text{ kOe}$ e/ou em função da temperatura no intervalo de $1,8 \text{ K} < T < 1000 \text{ K}$ [55].



Figura 3.8: Sistema PPMS instalado no Lemag do DF/UFES.

3.2.2 Efeito Kerr Magneto-ótico (MOKE)

Os efeitos magneto-óticos foram inicialmente estudados por Michael Faraday e John Kerr, sendo que o primeiro observou a mudança de polarização de um feixe de luz linearmente polarizado ao ser transmitido por um material que esteja submetido a um campo magnético (efeito Faraday), e o segundo observou a mudança do estado de polarização na reflexão de uma superfície magnetizada (efeito Kerr) [61, 62]. O efeito Kerr magneto-ótico (MOKE) é utilizado no estudo de propriedades magnéticas de superfície, onde a profundidade de penetração da luz é cerca de 20 nm.

O efeito Kerr magneto-ótico se caracteriza pela mudança do estado de polarização da luz após sua reflexão em uma superfície magnetizada. De forma geral, após uma luz linearmente polarizada ser refletida por uma superfície a direção da polarização e a elipticidade serão alteradas em função da magnetização da amostra.

Existem três configurações experimentais na magnetometria MOKE: (i) polar, (ii) longitudinal e (iii) transversal. Essas configurações fazem referência ao vetor magnetização do filme em relação ao plano de incidência e reflexão. Na montagem (i) polar, a magnetização do filmes está perpendicular ao plano do filme. Na montagem (ii) longitudinal a magnetização está no plano do filme paralela ao plano de incidência da luz. Na montagem (iii) transversal, a magnetização está no plano do filme, mas perpendicular ao plano de incidência da luz.

A montagem experimental utilizada no estudo de anisotropias magnéticas no plano do filme foi a longitudinal. A Figura 3.9 mostra o desenho esquemático da montagem experimental do magnetômetro Kerr, constituído de um laser monocromático, um polarizador, um modulador fotoelástico, um eletroímã, um analisador e um fotodetector acoplado a um amplificador *lock-in* controlado por computador.

Inicialmente o filme é colocado entre os polos do eletroímã desligado. O laser é direcionado para o filme passando por um polarizador antes da incidência com o objetivo de definir uma direção de polarização do feixe de luz. Após incidir sobre o filme o feixe de luz passa por um modulador fotoelástico (PEM) acoplado a um *lock-in* amplificador com o objetivo de melhorar a razão sinal/ruído, depois passando por um polarizador analisador e finalmente a intensidade de luz é detectado por um fotodetector. A medida que o eletroímã produz o campo magnético externo, o filme se magnetiza. A variação da intensidade da luz detectada pelo fotodetector é proporcional à variação da magnetização do filme. Então a medida é feita através da detecção da intensidade luminosa em função do campo magnético externo, obtendo assim o ciclo de histerese. Uma boa referência sobre MOKE pode ser encontrado nas referências [64, 65]. Esta técnica foi utilizada no

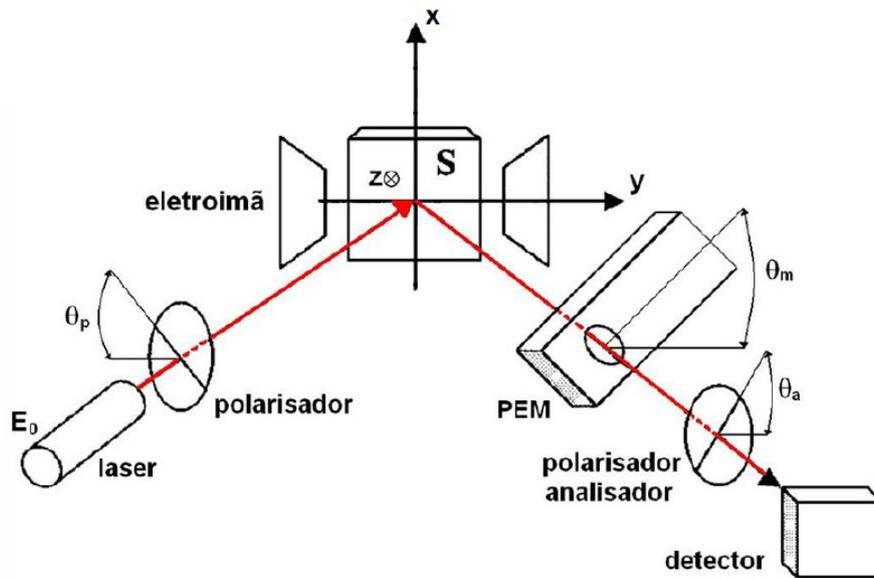


Figura 3.9: Desenho Esquemático de um MOKE [65] modificado.

Laboratório de Espectroscopia Hiperfina e Física de Superfície sob coordenação do Prof. Dr. Roberto Paniago (ver Figura 3.10).



Figura 3.10: MOKE implementado no DF da Universidade Federal de Minas Gerais.

3.3 Ressonância Ferromagnética

A Ressonância Ferromagnética (FMR) é uma técnica de espectroscopia voltada para o estudo de materiais ferromagnéticos. Ao aplicar um campo magnético H_0 externo, o sis-

tema de spins e seus momentos magnéticos executam um movimento coletivo de precessão ao redor da direção do campo. Aplicando um campo magnético oscilante H_1 perpendicular ao campo externo H_0 , o sistema de spins entra em ressonância, quando a frequência da precessão se iguala a frequência do campo oscilante. Para campos magnéticos comuns em laboratório (\approx kOe) a ressonância ferromagnética de materiais ferromagnéticos ocorre na faixa de microondas (\approx GHz). O campo magnético na qual a ressonância é observado é chamado de campo ressonante H_r e nesta situação as microondas são absorvidas. A partir da determinação do campo ressonante H_r e da largura de linha da ressonância ΔH em um material ferromagnético é possível fazer o estudo das anisotropias magnéticas e dos mecanismos de relaxação.

Apesar da instrumentação da FMR ser semelhante a da técnica de Ressonância Paramagnética Eletrônica (EPR - *Electron Paramagnetic Resonance*), o fenômeno físico por trás das medidas é diferente. A técnica de EPR é uma espectroscopia voltada para o estudo dos momentos magnéticos de poucos elétrons desemparelhados não interagentes. Ao contrário, a FMR é aplicada ao estudo dos momentos magnéticos de muitos elétrons interagentes que através da interação de troca dão origem as propriedades ferromagnéticas das amostras.

A FMR é uma técnica experimental versátil pois ela fornece diversos parâmetros que caracterizam as propriedades magnéticas tais como a energia magnética livre, a magnetização efetiva, as anisotropias magnéticas, a temperatura de Curie, o fator g de Landé, e os mecanismos de relaxação da magnetização. Muitos desses parâmetros não são acessíveis através de outras técnicas usados em magnetometria como medidas de curvas de histerese magnética.

A FMR foi observada pela primeira vez em 1912 por Arkadyev [66] quando mediu a absorção de microondas em materiais ferromagnéticos. A primeira explicação teórica do fenômeno foi apresentada por Loyarte [67] e Dorfmann [68]. Em 1946, Zavoiskii [69] e Griffiths [70] verificaram independentemente as linhas de ressonância em Ni, Fe e Co. Kittel [72, 73], e Landau e Lifshitz [71] generalizavam a teoria da ressonância ferromagnética.

3.3.1 Frequência de Larmor

Resultados de Ressonância Ferromagnética em materiais ferromagnéticos em geral são tratados fenomenologicamente, já que a grande quantidade de spins interagentes torna o tratamento quântico impraticável.

Para entender melhor a evolução temporal da magnetização macroscópica em medidas de FMR vamos considerar primeiramente um único spin eletrônico em um campo mag-

nético. Como sabemos da física quântica o spin é o momento angular intrínseco de uma partícula subatômica, como por exemplo o elétron, que é relacionado com um momento magnético através da seguinte relação

$$\vec{\mu} = g\mu_B\vec{S} \quad (3.1)$$

sendo g é o fator de Landé, \vec{S} é o momento magnético do spin e μ_B é o magneton de Bohr dado por

$$\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e} = 9,274 \times 10^{-24} J/T \quad (3.2)$$

Como consequência da quantização do momento angular o momento magnético também é quantizado. A energia potencial do elétron em um campo magnético tem origem na interação Zeeman e é dado por

$$E = -\vec{\mu} \cdot \vec{H} = -g\mu_B\vec{S} \cdot \vec{H} \quad (3.3)$$

Observamos que a energia é mínima quando o momento magnético $\vec{\mu}$ e campo magnético \vec{H} estão alinhados paralelamente. O campo magnético \vec{H} produz um torque no momento angular de spin \vec{S} (também no momento magnético $\vec{\mu}$).

$$\vec{\tau} = \vec{\mu} \times \vec{H} \quad (3.4)$$

que é igual a variação temporal do momento angular do spin

$$\vec{\tau} = \frac{dS}{dt} = \frac{g\mu_B}{\hbar}(\vec{S} \times \vec{H}) \quad (3.5)$$

A equação acima descreve o movimento do vetor momento angular de spin em um campo magnético (ver Figura 3.11).

Vamos considerar um spin eletrônico dentro de um campo magnético, dentro da vi-

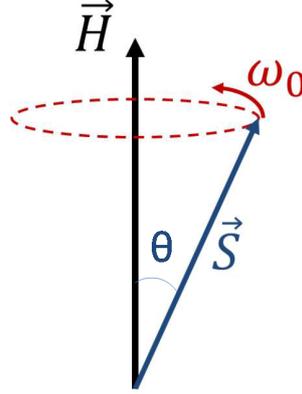


Figura 3.11: Movimento de precessão do spin.

são semiclássica, ele terá um movimento de precessão em torno do campo magnético e representa um movimento de precessão do vetor \vec{S} em torno do campo magnético com frequência angular ω_0 , que é a solução da equação diferencial 3.5, conhecida como frequência de Larmor

$$\omega_0 = \gamma H \quad (3.6)$$

sendo γ chamado de razão giromagnética que para o elétrons é igual a $\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar}$. Para que o sistema entre em ressonância com um campo magnético oscilante, o último deve ser aplicado perpendicularmente ao campo magnético externo. A ressonância acontece quando a frequência do campo oscilante se iguala a frequência de Larmor.

Para termos a condição de ressonância, os campos magnéticos de alguns kOe, será necessário uma fonte de microondas de ordem de GHz. Logo

$$\begin{cases} \omega = 2\pi f = \gamma H \\ f = \frac{\gamma H}{2\pi} \\ H \approx kOe \\ f \approx GHz \end{cases} \quad (3.7)$$

3.3.2 Ondas de Spins e Susceptibilidade Magnética

Na seção anterior discutimos o fenômeno de ressonância para um spin isolado, mas nos sistemas ferromagnéticos temos uma quantidade superior a 10^{23} spins, e eles são interagentes entre si através da interação de troca (*exchange*). Então um campo magnético, em

um sistema ferromagnético, cria uma precessão coletiva desses spins em torno do campo aplicado e ela é denominada Ondas de Spin. A Figura 3.12 apresenta um modelo de uma onda de spin onde todos os spins estão precessando em fase com o campo magnético externo, esta configuração de precessão em fase é chamada de modo uniforme da onda de spin, sendo esta, a configuração de menor energia do sistema de precessão.

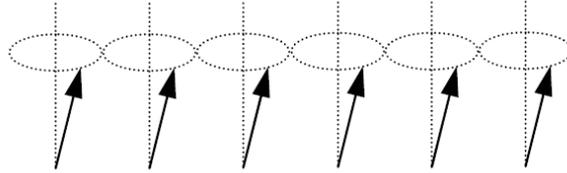


Figura 3.12: Ondas de Spin no modo uniforme.

As ondas de spin são caracterizadas pelo seu comprimento de onda λ que representa a defasagem entre spins vizinhos. O estado de menor energia é o modo uniforme ($\lambda = \infty$). As ondas de spins podem ser excitadas, por exemplo termicamente obedecendo a estatística de Bose-Einstein, criando assim uma defasagem entre os spins ($\lambda < \infty$) como mostrado na Figura 3.13.

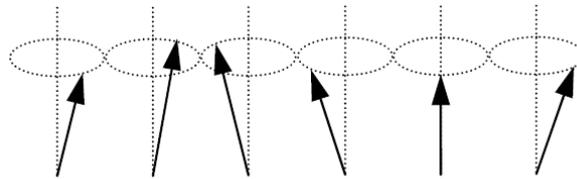


Figura 3.13: Ondas de Spin para k não nulo.

As ondas de spins são quantizadas e seu quantum é chamado de mágnon, caracterizado pelo vetor de onda k . A relação entre o vetor de onda k e o comprimento de onda de spin λ no sistema CGS é dado por

$$k = \frac{1}{\lambda} \quad (3.8)$$

ou seja, para o modo uniforme o $k = 0$ e para modos excitados do sistema o k é não-nulo.

Na abordagem semiclássica a ressonância ferromagnética é baseada no movimento da magnetização macroscópica e é definida por

$$\vec{M} = \sum_i \frac{\vec{\mu}_i}{V} = \frac{g\mu_B}{V} \sum_i \vec{S}_i \quad (3.9)$$

Substituindo a Equação 3.9 na Equação 3.5

$$\frac{d\vec{S}}{dt} = \gamma \vec{S} \times \vec{H}_{ef} \quad (3.10)$$

será obtido

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{M} \times \vec{H}_{ef} \quad (3.11)$$

sendo \vec{H}_{ef} o campo efetivo que atua sobre os spins. Ele é composto pelo campo externo aplicado e por campos internos. As contribuições para o campo efetivo como a interação de troca e anisotropias magnéticas foram tratadas no Capítulo 2

A precessão dos spins em torno do campo \vec{H} produz uma projeção do momento magnético no plano perpendicular ao campo. Para o sistema entrar em ressonância é necessário que um campo magnético oscilante, na direção do plano, seja aplicado com frequência de oscilação $\omega \approx \omega_0$. Esse campo oscilante é o $h(t)$ fornecida pela microonda.

Por razões técnicas é mais fácil variar o campo magnético, através da variação da corrente de um eletroímã, do que variar a frequência de microondas. Então, a partir da frequência de Larmor (Equação 3.6) para $H_0 = H_r$, condição de ressonância, o sistema absorve parte da energia da radiação. A Figura 3.14 apresenta um diagrama da geometria do filme dentro da cavidade ressonante e da condição necessária para a ressonância.

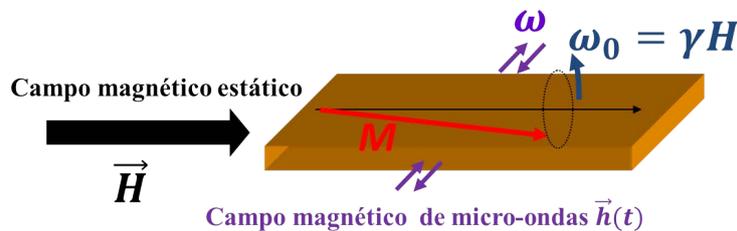


Figura 3.14: Ressonância Ferromagnética em filmes finos ferromagnéticos dentro da cavidade ressonante [7].

A grandeza física associada a resposta magnética do sistema é o tensor susceptibilidade

magnética $\bar{\chi}$ dado por

$$\vec{m} = \bar{\chi} \cdot \vec{h} \quad (3.12)$$

O campo magnético aplicado na amostra é dado por

$$\vec{H}(t) = (h_x \hat{x} + h_y \hat{y}) e^{-i\omega t} + H \hat{z} \quad (3.13)$$

sendo os dois primeiros termos do campo magnético oscilante da microonda ($h(t) = h_x \hat{x} + h_y \hat{y}) e^{-i\omega t}$) e H é o campo magnético estático é dada pelo campo do eletroímã. É importante citar que as componentes do campo de microondas são muito menores (frações de Oersted) que o campo do eletroímã (centenas de Oersted), ou seja, h_x e $h_y \ll H$.

Em analogia, a magnetização do sistema pode ser dada pela seguinte equação

$$\vec{M}(t) = (m_x \hat{x} + m_y \hat{y}) e^{-i\omega t} + M \hat{z} \quad (3.14)$$

e neste caso também pode-se considerar que m_x e $m_y \ll M$. Substituindo a Equação 3.14 e 3.13 na Equação 3.11, é obtido a seguinte relação

$$\begin{cases} -i\omega m_x = \omega_0 m_y - \gamma M h_y \\ -i\omega m_y = M \gamma h_x - \omega_0 m_x \end{cases} \quad (3.15)$$

Em representação matricial a equação anterior pode ser escrita da seguinte forma:

$$\begin{pmatrix} m_x \\ m_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} h_x \\ h_y \end{pmatrix} \quad (3.16)$$

Então as componentes do tensor susceptibilidade magnética $\bar{\chi}$ representa o comportamento da magnetização em um dado campo.

Resolvendo a Equação 3.16 e substituindo o resultado na Equação 3.15 serão obtidos as componentes do tensor susceptibilidade

$$\begin{cases} \chi_{xx} = \chi_{yy} = \frac{\omega_0 \omega_M}{\omega_0^2 - \omega^2} \\ \chi_{xy} = -\chi_{yx} = i \frac{\omega \omega_M}{\omega_0^2 - \omega^2} \end{cases} \quad (3.17)$$

sendo $\omega_M = \gamma M$ e $\omega_0 = \gamma H$, a frequência de Lamor. Como pode ser observado, a partir da equação, na condição de ressonância $\omega_0 \approx \omega$ existe uma singularidade. Isso não é observado experimentalmente, então a equação está incompleta.

Na condição de ressonância ($\omega \approx \omega_0$) a amplitude de precessão de M aumenta em torno de H e a relaxação não pode ser ignorada. Quando M precessiona em torno de H a interação spin-orbita nos átomos faz com que parte da energia magnética seja transferida para a rede cristalina. Isso resulta em relaxação ou amortecimento do movimento de M . Esse efeito é representado fenomenologicamente pela substituição do ω_0 por $\omega - i\Gamma$ resultando em

$$\begin{cases} \chi_{xx} = \chi_{yy} = \frac{\omega_0 \omega_M}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma} \\ i\chi_{xy} = -i\chi_{yx} = i \frac{\omega \omega_M}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma} \end{cases} \quad (3.18)$$

onde Γ é a taxa de relaxação e tem a dimensão de s^{-1} assumindo $\Gamma \ll \omega_0$.

3.3.3 Absorção de Microondas

Na prática o que se mede é a potência média $\langle P \rangle$ de absorção que é definida pela média da derivada temporal da energia magnética livre total (por unidade de volume) do sistema, dado por

$$E = -\vec{M} \cdot (\vec{H}_{ef} + \vec{h}(t)) \quad (3.19)$$

então

$$\langle P \rangle = \left\langle \frac{dE}{dt} \right\rangle = \left\langle \frac{d}{dt} \left[-\vec{M} \cdot (\vec{H}_{ef} + \vec{h}(t)) \right] \right\rangle \quad (3.20)$$

Supondo que o campo de microondas possui apenas a componente h_x obtém-se então

a potência média absorvida, dada por

$$\langle P \rangle = \omega \chi_{xy} h^2 = \gamma H_0 \chi_{xy} h^2 \quad (3.21)$$

Então a potencia média absorvida é proporcional do termo imaginário χ_{xy} da susceptibilidade magnética, e do quadrado do campo magnético da radiação da microonda. Esta função tem a forma de uma Lorentziana, curva típica dos espectros de ressonância ferromagnética.

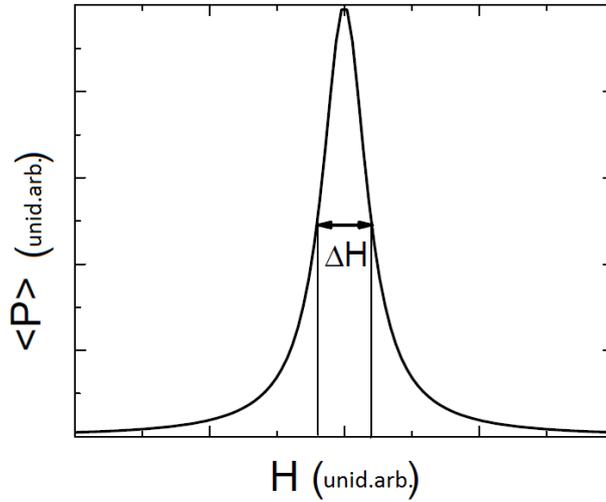


Figura 3.15: Espectro de FMR em função do H , na forma de uma Lorentziana com largura de linha ΔH .

Em filmes finos a potência absorvida pela amostra é muito pequena, então é necessária a utilização de técnicas especiais de detecção que fazem uso de detecção *lock-in* e circuitos amplificadores sintonizados (amplificação seletiva). Esta técnica consiste de aplicar um pequeno campo magnético de modulação ($h_m(t)$) na mesma direção do campo magnético externo, onde o sinal de absorção é amplificado e somente a potência absorvida de microondas proporcional a frequência de modulação (ω_m) é detectada.

O campo de modulação é muito menor que o campo externo ($h_m \ll H$) e a frequência de microondas é muito maior que a frequência de modulação ($\omega_m \ll \omega$) então é possível escrever o valor da potência média absorvida como uma expansão em série de Taylor para o campo externo H em torno de H_0

$$\langle P \rangle = P_0 + \left. \frac{d\langle P \rangle}{dH} \right|_{H_0} (H - H_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2\langle P \rangle}{dH^2} \right|_{H_0} (H - H_0)^2 + \dots \quad (3.22)$$

com

$$H - H_0 = h_m(t) = h_m \cos(\omega_m t) \quad (3.23)$$

então

$$\langle P \rangle = P_0 + \left. \frac{d\langle P \rangle}{dH} \right|_{H_0} h_m \cos(\omega_m t) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2 \langle P \rangle}{dH^2} \right|_{H_0} (h_m \cos(\omega_m t))^2 + \dots \quad (3.24)$$

Durante a medida o *Lock-in* é sintonizado de maneira a mediar apenas o segundo termo da expansão de Taylor dada pela equação anterior. Portanto o sinal medido tem um forma de linha semelhante a derivada da Lorentziana (ver Figura 3.16).

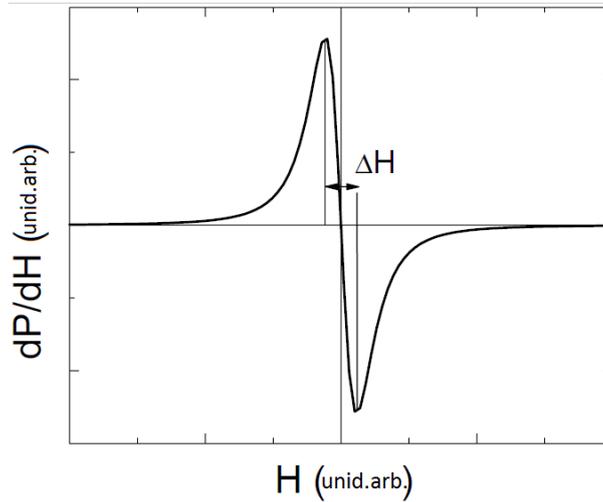


Figura 3.16: Espectro da derivada da absorção de microondas em função do H.

3.3.4 Relação de Dispersão para Ressonância Ferromagnética

Até agora foram obtidos duas importantes relações, a primeira da frequência natural de sistema (frequência de Larmor dada por $\omega_0 = \gamma H_{ef}$) e a segunda do campo magnético efetivo (dado por $\vec{H}_{ef} = \vec{\nabla}_M E$).

Na FMR o sistema é perturbado quando a condição de ressonância é satisfeita. No sistema em que se mantém a frequência fixa, o campo que perturba o sistema é chamado de campo ressonante H_r . Para se encontrar o campo de ressonância é necessário encontrar a relação de dispersão do sistema.

Para isso deve-se considerar a equação de movimento da magnetização macroscópica, dada pela Equação 3.9. O campo efetivo H_{ef} e a magnetização \vec{M} em coordenadas esféricas são dados por

$$\begin{cases} \vec{H}_{ef} = - \left(\frac{\partial E}{\partial r} \hat{r} + \frac{1}{M} \frac{\partial E}{\partial \theta} \hat{\theta} + \frac{1}{M \text{sen}\theta} \frac{\partial E}{\partial \phi} \hat{\phi} \right) \\ \vec{M} = M_r \hat{r} + m_\theta \hat{\theta} + m_\phi \hat{\phi} \end{cases} \quad (3.25)$$

Substituindo a Equação 3.25 na Equação 3.9 obtemos

$$\gamma \vec{M} \times \vec{H}_{ef} = \begin{bmatrix} \hat{r} & \hat{\theta} & \hat{\phi} \\ M_r & m_\theta & m_\phi \\ \frac{\partial E}{\partial r} & \frac{1}{M} \frac{\partial E}{\partial \theta} & \frac{1}{M \text{sen}\theta} \frac{\partial E}{\partial \phi} \end{bmatrix} \quad (3.26)$$

Pode-se considerar

$$m_\theta \approx m_\phi \ll M_r \quad (3.27)$$

isso simplifica o resultado do produto vetorial para

$$\gamma \left(\frac{dm_\theta}{dt} \hat{\theta} + \frac{dm_\phi}{dt} \hat{\phi} \right) = \frac{E_\phi}{\text{sen}\theta} \hat{\theta} + E_\theta \hat{\phi} \quad (3.28)$$

Fazendo a seguinte aproximação

$$\begin{cases} m_\theta = M_s \text{sen}\theta \approx M_s \Delta\theta \\ m_\phi = M_s \text{sen}\theta \text{sen}\phi \approx M_s \text{sen}\theta \Delta\phi \end{cases} \quad (3.29)$$

onde M_s é a magnetização de saturação, e também separando as duas equações, obtemos

$$\begin{cases} \frac{1}{\gamma} \frac{d\Delta\theta}{dt} = \left(-\frac{1}{M \text{sen}\theta} \right) E_\phi \\ \frac{1}{\gamma} \frac{d\Delta\phi}{dt} = \left(\frac{1}{M \text{sen}\theta} \right) E_\theta \end{cases} \quad (3.30)$$

O movimento de precessão nos ângulos polar e azimutal se comporta segundo a relação

$$\begin{cases} \Delta\theta = \Delta\theta_0 e^{i\omega_0 t} \\ \Delta\phi = \Delta\phi_0 e^{i\omega_0 t} \end{cases} \quad (3.31)$$

Então

$$\begin{cases} E_\phi = \frac{-i\omega \operatorname{sen}\theta M}{\gamma} \Delta\theta \\ E_\theta = \frac{i\omega \operatorname{sen}\theta M}{\gamma} \Delta\phi \end{cases} \quad (3.32)$$

A energia magnética livre pode ser expandida em série de Taylor em torno da posição de equilíbrio ($\frac{\partial E}{\partial \theta} = \frac{\partial E}{\partial \phi} = 0$), até o termo de segunda ordem.

$$E = E_0 + \frac{1}{2} (E_{\theta\theta} \Delta\theta^2 + E_{\phi\phi} \Delta\phi^2 + 2E_{\theta\phi} \Delta\theta \Delta\phi) \quad (3.33)$$

onde $E_{\theta\theta} = \frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2}$, $E_{\phi\phi} = \frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2}$ e $E_{\theta\phi} = \frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \phi}$. Sendo assim, derivamos a equação da energia magnética livre total, equação anterior, em relação a θ e ϕ .

$$\begin{cases} E_\theta = E_{\theta\theta} \Delta\theta + E_{\theta\phi} \Delta\phi \\ E_\phi = E_{\theta\phi} \Delta\theta + E_{\phi\phi} \Delta\phi \end{cases} \quad (3.34)$$

Igualando as Equações 3.32 e 3.34 podemos reagrupa-las de forma matricial

$$\begin{pmatrix} E_{\theta\theta} & E_{\theta\phi} \frac{-i\omega \operatorname{sen}\theta M}{\gamma} \\ E_{\theta\phi} + \frac{-i\omega \operatorname{sen}\theta M}{\gamma} & E_{\phi\phi} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Delta\theta \\ \Delta\phi \end{pmatrix} = 0 \quad (3.35)$$

Esse conjunto de equações tem solução não trivial, somente se o determinante da matriz acima for zero. Assim

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left(\frac{1}{M \operatorname{sen}\theta}\right)^2 [E_{\theta\theta} E_{\phi\phi} - E_{\theta\phi}^2] \quad (3.36)$$

foi obtida a condição geral de ressonância, que será usada no tratamento dos dados experimentais.

3.3.5 Ajuste Numérico

Toda física aqui produzida vem da medida do espectro da ressonância ferromagnética, da posição do campo de ressonância e da largura de linha. A forma de linha se assemelha a derivada da Lorentziana (ver Figura 3.17) e as medidas do são feitas em função da coordenada azimutal do plano do filme.

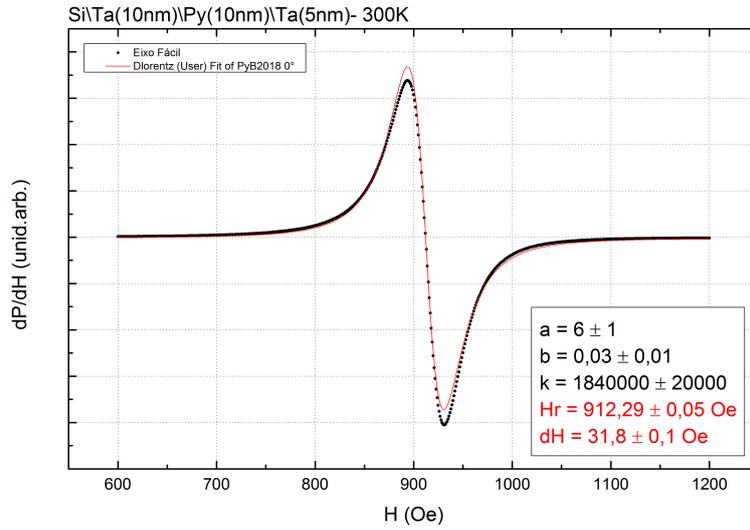


Figura 3.17: Espectro de FMR produzido pelo espectrômetro de ressonância ferromagnética do DF/UFG. Exemplo de espectro de filme fino de Py(10 nm) a temperatura ambiente e na orientação do eixo fácil, com frequência de 9,220 GHz, atenuação de 30 dB, com o respectivo ajuste numérico.

A medida da derivada da Lorentziana e seu ajuste é dada pela seguinte equação:

$$\frac{dP}{dH} = f(H) = a + b * H + \frac{k * (H - H_r)}{((H - H_r)^2 + (\Delta H/2)^2)^2} \quad (3.37)$$

onde a , b e k são constantes, H é o campo magnético externo, H_r é o campo ressonante e ΔH é a largura de linha. As constantes a e b ajustam a linha base do espectro, a constante k é uma constante de proporcionalidade, que neste trabalho não será explorada sua física. Então os valores importantes, para este trabalho, são o H_r e o ΔH . A partir destes valores serão plotadas as dependências angulares de $H_r \times \phi$ e $\Delta H \times \phi$.

O ajuste do campo de ressonância H_r , do filme simples FM, em função da dependência angular será tomado como base a Equação 2.31 do Capítulo 2, e substituindo na relação

de dispersão da ressonância ferromagnética dada pela equação 3.36. Para os filmes deste trabalho podemos considerar a magnetização presa no plano do filme, isso significa que, $\theta = \theta_H = \frac{\pi}{2}$ e anisotropia existente é a anisotropia uniaxial, então a relação de dispersão será dado por

$$\begin{aligned} \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 &= [H \cos(\phi - \phi_H) + H_U \cos 2(\phi - \phi_U)] \\ &\times [H \cos(\phi - \phi_H) + 4\pi M_{ef} + H_U \cos(\phi - \phi_U)^2] \end{aligned} \quad (3.38)$$

Resolvendo esta equação como um polinômio de segundo grau, considerando apenas a parte positiva é obtido a equação do campo de ressonância para o filme simples

$$\begin{aligned} H_{rFS} &= \frac{1}{2} (4\pi M_{ef} - H_U (\cos^2 \phi_H + \cos 2\phi_H)) \\ &+ \sqrt{(4\pi M_{ef} + H_U (\cos^2 \phi_H + \cos 2\phi_H))^2 - 4 \left(- \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 + H_U (4\pi M_{ef} + H_U \cos^2 \phi_H) \cos 2\phi_H \right)} \end{aligned} \quad (3.39)$$

A Equação 3.39 é a relação explícita do campo de ressonância do filme simples. A Figura 3.18 mostra a dependência do campo de ressonância com a magnetização efetiva considerando $M_{ef} \gg H_U$, e mostrando que uma grandeza é inversamente proporcional a outra. Essa representação é muito importante para este trabalho porque a temperatura modifica a magnitude da magnetização efetiva e isso será observado pelo deslocamento do campo de ressonância. Diminuindo a temperatura da amostra então a magnitude da magnetização efetiva aumenta isso significa que o campo de ressonância deve diminuir.

Para o estudo do campo de ressonância H_r da bicamada FM/AF será tomado a seguinte equação

$$\begin{aligned} \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 &= [H \cos(\phi - \phi_H) + H_U \cos 2(\phi - \phi_U) + H_{ra} + H_2^{ef}] \\ &\times [H \cos(\phi - \phi_H) + 4\pi M_{ef} + H_U \cos^2(\phi - \phi_U) + H_{ra} + H_1^{ef}] \end{aligned} \quad (3.40)$$

onde

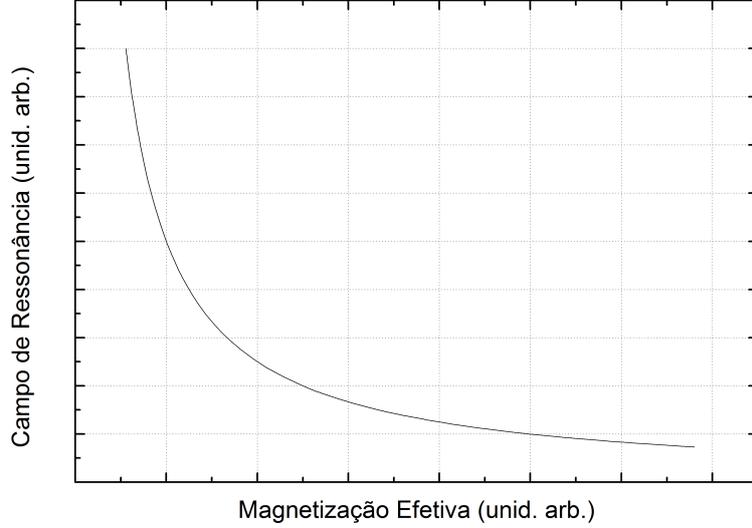


Figura 3.18: Simulação numérica da dependência do campo de ressonância com a magnetização considerando que $M \gg H_U$, e mostrando que uma grandeza é inversamente proporcional a outra.

$$H_1^{ef} = \frac{H_W \cos\phi_{EB} \cos(\phi - \phi_{EB}) - H_E \sin^2(\phi - \phi_{EB})}{\frac{H_W}{H_E} \cos\phi_{EB} + \cos(\phi - \phi_{EB})}$$

$$H_2^{ef} = \frac{H_W \cos\phi_{EB} \cos(\phi - \phi_{EB})}{\frac{H_W}{H_E} \cos\phi_{EB} + \cos(\phi - \phi_{EB})}$$

Resolvendo esta equação como um polinômio de segundo grau, da mesma forma que o filme simples, só será considerado a parte positiva então a equação do campo ressonante para a bicamada será dada por

$$H_{rBC} = \frac{1}{2} \left(-B + \sqrt{B^2 - 4C} \right) \quad (3.41)$$

sendo

$$B = \left(2H_{ra} - M - H_U \cos^2\phi_H - \frac{H_W \cos\phi_H}{\frac{H_W}{H_E} + \cos\phi_H} - H_U \cos 2\phi_H \right) \quad (3.42)$$

$$- \left(\frac{H_W \cos\phi_H - H_E \sin^2\phi_H}{\frac{H_W}{H_E} + \cos\phi_U} \right)$$

e,

$$C = \frac{\omega^2}{\gamma^2} + \left(H_{ra} + H_U \cos 2\phi_H \frac{H_W \cos \phi_H}{\frac{H_W}{H_E} + \cos \phi_H} \right) \quad (3.43)$$

$$\cdot \left(H_{ra} + M + H_U \cos^2 \phi_H + \frac{H_W \cos \phi_H - H_E \sin^2 \phi_H}{\frac{H_W}{H_E} + \cos \phi_H} \right)$$

3.3.6 Largura de Linha

A largura de linha do espectro de FMR contém informações sobre os mecanismos de relaxação magnética que podem ter contribuições intrínsecas e extrínsecas. A parte intrínseca da relaxação magnética tem origem no amortecimento de Gilbert que descreve fenomenologicamente a evolução da magnetização após uma perturbação (por exemplo em condição de ressonância) para o estado de equilíbrio. Este amortecimento produz um torque na magnetização e a direção do torque é dado pelo produto vetorial da magnetização e da sua derivada temporal. Gilbert introduziu em 1955 um termo adicional na equação do movimento da magnetização de Landau-Lifshitz [71] hoje conhecido como equação de Landau-Lifshitz-Gilbert dado por

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma(\vec{M} \times H_{ef} - \alpha \vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt}) \quad (3.44)$$

onde α é a constante de amortecimento de Gilbert que depende do material e tem origem na interação spin-orbita [74]. Este amortecimento representa a largura de linha natural do espectro de ressonância ferromagnética e é dado por

$$\Delta H_G = \frac{2\alpha}{\sqrt{3}} \frac{\omega}{\gamma \cos(\phi - \phi_H)} \quad (3.45)$$

sendo $(\phi - \phi_H)$ o ângulo entre a magnetização e o campo externo. Como em medidas de ressonância ferromagnéticas feitas no plano do filme o ângulo entre a magnetização e o campo aplicado é nulo, pois a magnetização sempre está saturada, e a frequência angular ω é constante então a largura de linha fica constante durante uma dependência angular como mostra a Figura 3.19. Como vimos o valor de α é um parâmetro intrínseco do material que depende da interação spin-orbita.

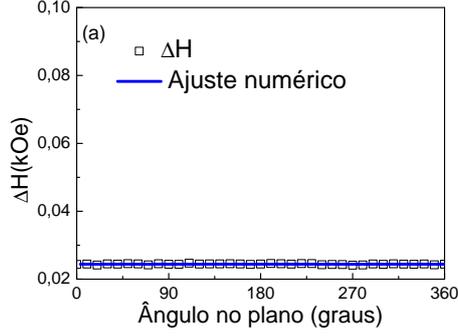


Figura 3.19: Exemplo de dependência angular de FMR para filmes de Permalloy com 12 nm de espessura com apenas o amortecimento de Gilbert [10].

Outros termos que podem contribuir para a largura de linha do espectro de FMR tem origem extrínseca devido a defeitos e impurezas. O termo adicional que será considerado aqui é o espalhamento de dois mágnons. A largura de linha total em ressonância ferromagnética pode ser descrita como

$$\Delta H = \Delta H_G + \Delta H_{2M} \quad (3.46)$$

O segundo termo está relacionado ao mecanismo de relaxação de dois mágnons que pode ser descrito pela superposição de duas contribuições. Essas contribuições podem ser observadas na largura de linha da dependência angular da FMR ($\Delta H \times \phi$) através de sua anisotropia. A primeira contribuição possui uma simetria C2, e a segunda contribuição possui uma simetria C4 [15]. Desta forma a largura de linha pode ser escrita como:

$$\Delta H_{2M} = (\Gamma_4 + \Gamma_2)/\gamma \quad (3.47)$$

onde primeiro termo da Equação 3.47 é relativo aos defeitos existentes na textura da superfície do filme e é dada, segundo a referência [15], por

$$\Gamma_4 = \frac{g_z(g_x W_y + g_y W_x)\phi_c}{\pi D(W_x + W_y)^2} \quad (3.48)$$

onde

$$\left\{ \begin{array}{l} W_x = H_{ext} \cos(\phi - \phi_B) + H_U \cos[2(\phi_U - \phi)] \\ W_y = B_{ext} \cos(\phi - \phi_B) + H_U \cos^2(\phi_U - \phi) + 4\pi M_{ef} \\ g_x = (a^{-1} - c^{-1}) \cos[2(\eta - \phi)] \\ g_y = (a^{-1} - c^{-1}) \cos^2(\eta - \phi) - a_{-1} \\ g_z = \frac{8\gamma b^2 B_{def}^2 pac}{\pi D} \\ \phi_c = \arcsin \sqrt{\frac{W_x}{W_y}} \end{array} \right. \quad (3.49)$$

onde H_{ext} , H_U , ϕ_U , M_{ef} e B_{def} representam o campo externo, o campo uniaxial, a fase do campo uniaxial, a magnetização efetiva e o campo de anisotropia de interface do defeito respectivamente. A constante p é a fração da superfície com defeitos, a , b e c são as dimensões dos defeitos e η a direção do defeito em relação ao eixo de simetria. D é a constante de rigidez de *exchange* da ressonância da onda de spin em altas frequências.

O segundo termo da Equação 3.47 diz respeito sobre a interação pelo campo dipolar criado entre os defeitos, e pode ser descrita segundo a referência [15].

$$\Gamma_2 = \Gamma_2^{max} \sin^4(\phi - \phi_2) \quad (3.50)$$

onde Γ_2^{max} e ϕ_2 são a amplitude máxima e a fase da contribuição do Γ_2^{max} respectivamente.

A figura 3.20 apresenta um exemplo da superposição dessas duas contribuições para a largura de linha para duas amostras de $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{MgO}$ sobre Si sobre dois ângulos de deposição diferentes feita por Barsukov *et. al.* [15].

Uma boa revisão sobre os mecanismos de relaxação magnética pode ser encontrada na referencia [10].

3.3.7 Espectrômetro de FMR

O espectrômetro de Ressonância Ferromagnética pode ser visto esquematicamente na Figura 3.21 e ele é constituído de:

- Gerador de Micro-ondas: Klystron da marca Varian com potencia de 500mW e frequência de saída entre 8,8 e 10 GHz;
- Atenuador de Micro-ondas (0 - 60 dB): localizado entre o gerador de micro-ondas e o circulador de micro-ondas;

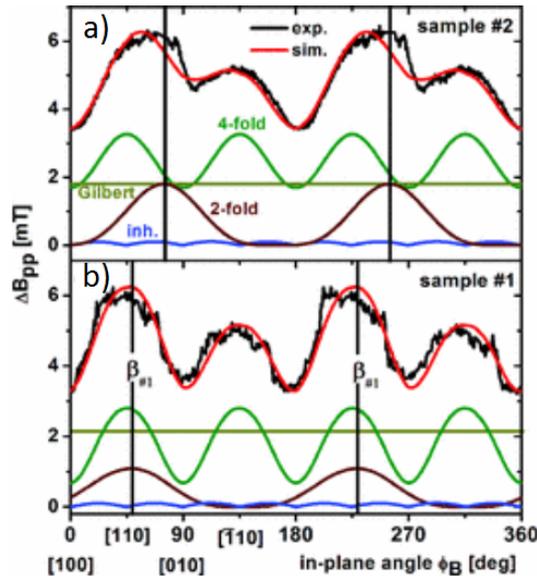


Figura 3.20: Superposição do espalhamento de dois mágnons para duas amostras de $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{MgO}$ sobre Si sobre dois angulos deposição diferentes feita por Barsukov *et. al.* [15] modificado.

- Cavity retangular: da marca Varian modo TE_{102} com fator de qualidade da ordem de 10.000
- Detector de Micro-ondas: constituído de dois diodos operando na região linear. Detectam e retificam o sinal refletido, provocado pela quebra do acoplamento amostra-cavidade-microonda, o sinal é proporcional a potência absorvida;
- Eletroímã: da marca Varian produz o campo externo com fonte de corrente da marca Heinzinger produzindo um campo de até 8 kOe;
- Guias de Onda: guias retangulares metálicos oco, na qual a micro-onda se propaga;
- Bobinas de Modulação: gera uma modulação com frequência de 100 kHz ao longo do campo estático;
- Lock-In: é sintonizado para detectar sinais de tensão na fase e frequência de modulação;
- CAF (Controle Automático de Frequência): é uma unidade de controle do espectrômetro com o objetivo de evitar variações na frequência da radiação produzida.
- Circulador de Micro-ondas: dispositivo que possui uma dupla função, a primeira é a de segurança não permitindo que a radiação retorne para fonte junto com sua eletrônica de controle, e também do monitoramento da radiação por um sistema de detecção (Diodo e Lock-In) com o objetivo de manter a alimentação do Klystron fixa durante todo o experimento.

- Gaussímetro: Medidor de campo magnético.
- Goniômetro: gira a amostra em relação ao campo magnético.

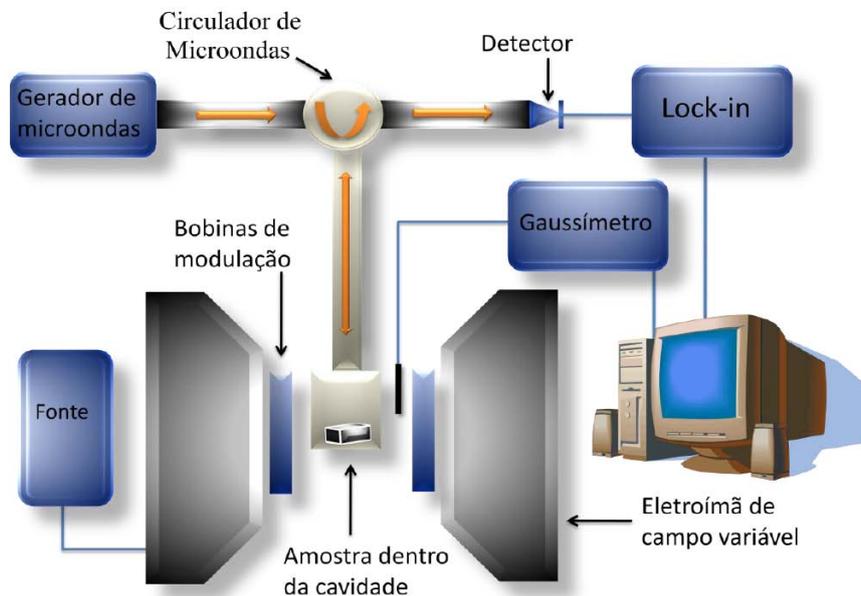


Figura 3.21: Detalhamento Simplificado do Equipamento de Ressonância Ferromagnética [10].

Neste espectrômetro existe a possibilidade de se fazer medidas a baixa temperatura (10 K - 300 K), e os detalhes serão apresentados a seguir:

Sistema Criogênico

O espectrômetro de FMR do DF-UFMG é equipado com um sistema criogênico ESR910 da Oxford que é mostrado esquematicamente na Figura 3.22a e mais detalhadamente na Figura 3.22b.

Foi observado em medidas preliminares que dependendo do fluxo de Hélio pode existir um gradiente de temperatura consideravelmente grande. O criossistema faz uso de um fluxo de Hélio líquido. A temperatura do fluxo de Hélio é medido por um termopar na saída do fluxo por um capilar do criossistema. A temperatura do fluxo é controlada por um fio aquecedor que é enrolada no capilar na saída do criossistema. Para o melhor controle da temperatura na amostra optou-se por colocar um segundo termopar passando pela haste do porta-amostras em contato direto com a amostra.

O uso da cavidade retangular é muito importante, porque nela a componente do campo elétrico da microondas não existe em seu eixo central. Isso significa que o acoplamento da cavidade não é prejudicado pelos fios metálicos do termopar.

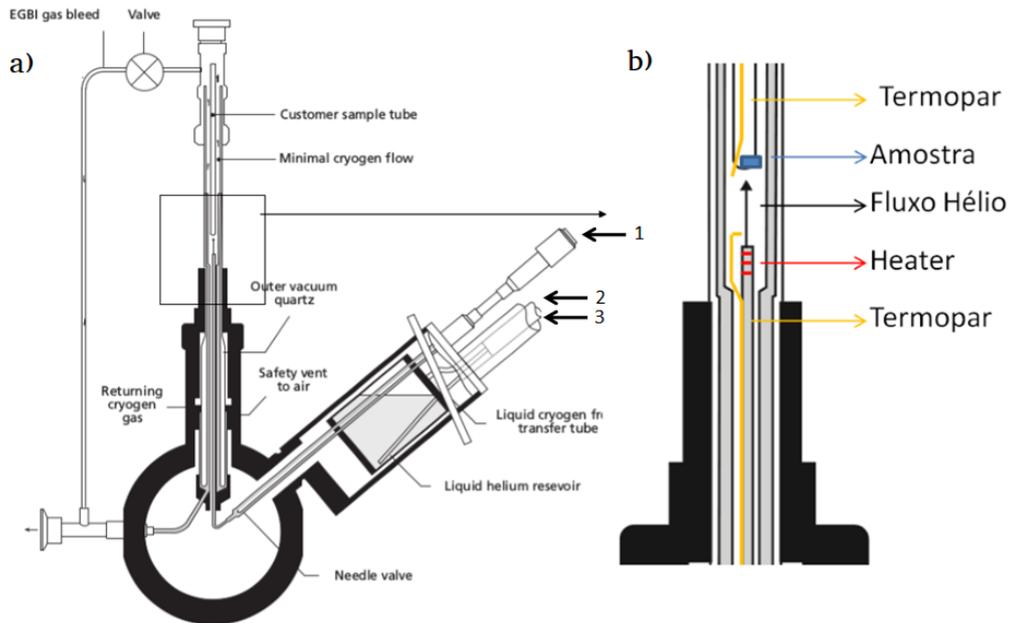


Figura 3.22: Imagem do a) sistema criogênico ESR910 e b) um zoom na região onde a amostra é fixada e também mostrando os dois termopares, um junto a amostra e o outro na saída do fluxo de Hélio, e o aquecedor (*heater*) que é responsável pelo aquecimento do fluxo de Hélio. A imagem original foi modificada retirada do manual.

O termopar utilizado para medir a temperatura da amostra dentro da cavidade, é o mesmo utilizado pela instrumentação do aquecedor da Oxford. É composto por um fio de uma liga chamada Cromel (90% Níquel e 10% Cromo) fazendo junção com um fio de Ouro. Este termopar é muito usado em sistemas de baixa temperatura, por apresentar considerável linearidade da tensão em baixa temperatura. Para converter a tensão em medida em mV para temperatura em K, foram utilizados os dados experimentais encontrados no manual do fabricante da Oxford. Foi realizado um ajuste numérico utilizando uma equação do segundo grau (ver Equação 3.23), foram obtidos os parâmetros utilizados para determinar a temperatura.

$$T(mV) = T_0 + A * mV = B * mV^2 \quad (3.51)$$

Depois de inúmeras medidas a baixa temperatura se verificou para que este sistema estabilizar corretamente a temperatura são necessários controlar três variáveis: (i) a primeira delas é a válvula agulha em (1) através de sua abertura, que é responsável pela quantidade de fluxo de gás que será levado até a amostra; (ii) a pressão do reservatório em (2) através da pressão do cilindro de Hélio que é responsável pela densidade de gás que chega na amostra; e (iii) através do fluxômetro na saída do tubo de transferência(no

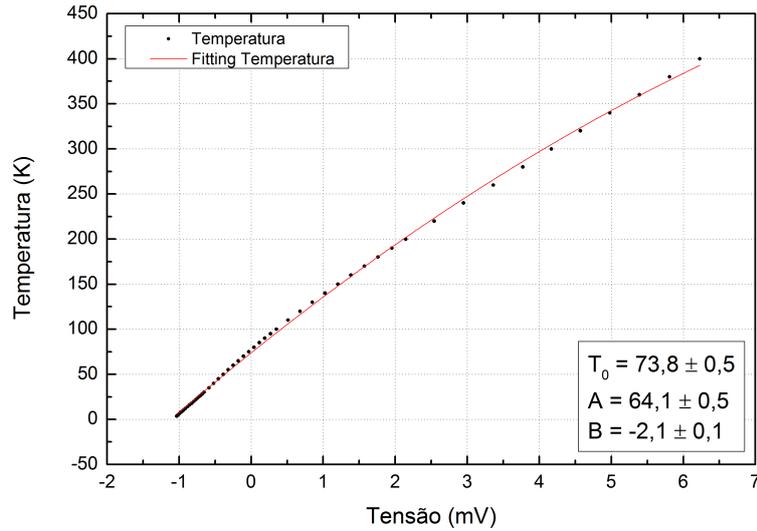


Figura 3.23: Comportamento da tensão do Termopar de Cromel/Ouro em função da temperatura, de acordo com o manual Oxford ESR910.

retorno do Hélio) em (3), que é responsável por encher e esvaziar (aumentar e diminuir o fluxo, respectivamente) o reservatório de Hélio em (2).

Pode ser observado na Figura 3.24 que as medidas de um filme fino de Py tiveram bom sinal/ruído, tanto a temperatura ambiente quanto a baixas temperaturas. As medidas da Figura 3.24 foram plotadas de 0° até 90° girando a amostra do eixo fácil até o eixo duro respectivamente, já que a simetria deste filme de *permalloy* é $C2$.

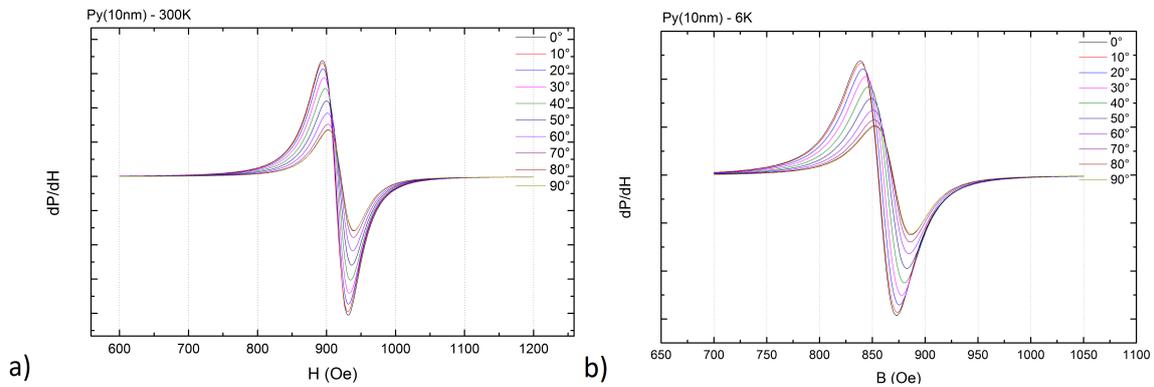


Figura 3.24: Dependência angular de 0° , eixo fácil, a 90° , eixo duro, das medidas de FMR de um filme simples de Py(10 nm) a) 300 K e b) 6 K respectivamente, com frequência de 9,220 GHz.

Capítulo 4

Resultados Experimentais e Discussões

Neste capítulo são apresentados os resultados obtidos para filmes simples FM e bicamadas FM/AF fabricados por *sputtering* oblíquo. As amostras foram caracterizadas magneticamente por magnetometria de amostra vibrante (VSM), Magnetometria Kerr (MOKE) e Ressonância Ferromagnética (FMR). Com o auxílio dessas técnicas de magnetometria foram obtidos de forma qualitativa os valores para o campo magnético de saturação, campo coercivo, magnetização de saturação e o campo de *exchange bias*.

A partir da dependência angular do campo de ressonância ($H_r \times \phi_H$), obtemos de forma quantitativa a magnetização efetiva e os campos efetivos devido às anisotropias magnéticas, como por exemplo, o campo efetivo uniaxial, o campo efetivo de *exchange bias* e o campo efetivo devido a anisotropia rotatória. A partir desses valores, é possível investigar a dependência angular da largura de linha ($\Delta H \times \phi_H$). Desta análise é possível identificar e quantificar os mecanismos de relaxação magnética mais relevantes.

4.1 Medidas de Magnetometria

4.1.1 Medidas de Magnetometria de Amostra Vibrante (VSM)

Estas medidas foram realizadas durante um breve estágio no Laboratório de Espectroscopia Mössbauer e Magnetometria (Lemag) do Departamento de Física da UFES. O objetivo desta colaboração era somente preparar amostras por *sputtering* e as investigar por FMR. Porém, ao me deparar com o PPMS (Physical Properties Measurement System - Figura 3.8), solicitei a oportunidade de utilizar/operar este equipamento. Foram feitas

medidas de histerese magnética a temperatura ambiente para um filme simples de Py(10 nm) e para uma bicamadas FM/AF de Py(10 nm)/IrMn(12 nm), que podem ser vistas na Figura 4.1a e na Figura 4.1b, respectivamente.

Os experimentos foram realizados aplicando o campo magnético de forma paralela aos eixos magnéticos fácil e duro. Estas direções são bem conhecidas e são determinadas devido ao processo de fabricação destas amostras ser a deposição oblíqua. Amostras fabricadas por deposição oblíqua apresentam a direção de eixo duro paralelo a projeção da direção de deposição no plano do filme, e o eixo fácil perpendicular a projeção da direção de deposição no plano do filme. Isto ocorre devido ao efeito de *self-shadowing* (ver a Seção 3.1.1). Todos os filmes fabricados por *sputtering* neste trabalho foram depositados a temperatura ambiente e com o ângulo de deposição de aproximadamente 32° entre a direção de deposição e a normal do filme. Esses filmes são policristalinos e possuem grãos com alongamentos paralelos que geram uma anisotropia magnética de forma oriunda de campos desmagnetizantes. Esta anisotropia magnética se comporta como uma anisotropia uniaxial no plano do filme, ou seja, possui um eixo fácil bem definido (paralelo a direção de maior alongamento do grão) e uma direção de eixo duro (perpendicular a direção de maior alongamento do grão). Devido esse comportamento semelhante a uma anisotropia magnetocristalina uniaxial, dizemos que essas amostras possuem uma anisotropia uniaxial induzida pela deposição oblíqua, ou simplesmente anisotropia uniaxial. Este comportamento pode ser bem visualizado nas curvas de histerese magnéticas nas figuras 4.1a e 4.1b.

As curvas de histerese magnética dos filmes simples de Py(10 nm) (figura 4.1a) são estreitas, apresentando baixo campo coercivo, o que é esperado para um material ferromagnético mole em consistência com os resultados da literatura [10]. A rápida saturação do Py é evidente, pois este saturou-se com campo de aproximadamente 35 Oe (ver figura 4.1a). O campo de saturação para o eixo fácil e duro são aproximadamente os mesmos. Através dessa medida não é possível perceber uma forte diferença de simetria para o ciclo de histerese obtido no eixo fácil e duro. Mas, para a bicamada Py(10 nm)/IrMn(12 nm) que possui uma anisotropia da ordem de 120 Oe, as curvas de histerese paralelas ao eixo fácil e ao eixo duro apresentam as simetrias esperadas (ver 4.1b): na direção perpendicular a projeção da deposição, eixo fácil, percebe-se um deslocamento em campo magnético do ciclo de histerese e um aumento do campo coercivo. Estas características são a assinatura do *exchange bias*. Na direção paralela a projeção da deposição, eixo duro, a amostra apresenta um ciclo de histerese com baixa remanência, pois para campo nulo a magnetização tende a se alinhar com a direção fácil de magnetização do eixo de anisotropia unidirecional.

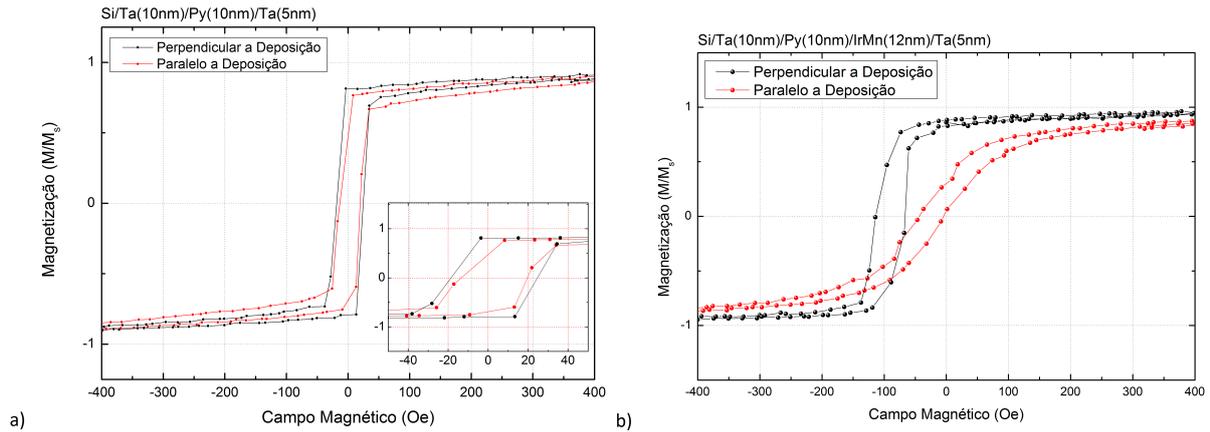


Figura 4.1: Curvas de histerese obtidas por magnetometria de amostra vibrante (a) do filme FM de Py(10 nm), e a (b) da bicamada FM/AF de Py(10 nm)/IrMn(12 nm).

4.1.2 Medidas de Magnetometria Kerr (MOKE)

Na seção 3.2.2 foi introduzida a técnica de magnetometria Kerr. Esta técnica foi implementada no Laboratório de Espectroscopia Mossbauer e Física Superfícies sob coordenação do Prof. Dr. Roberto Paniago. O equipamento pode ser visto na figura 3.10.

As curvas de histerese para o filme simples Py(10 nm) e para a bicamada Py(10 nm)/IrMn(12 nm) podem ser vistas nas figuras 4.2a e 4.2b, respectivamente.

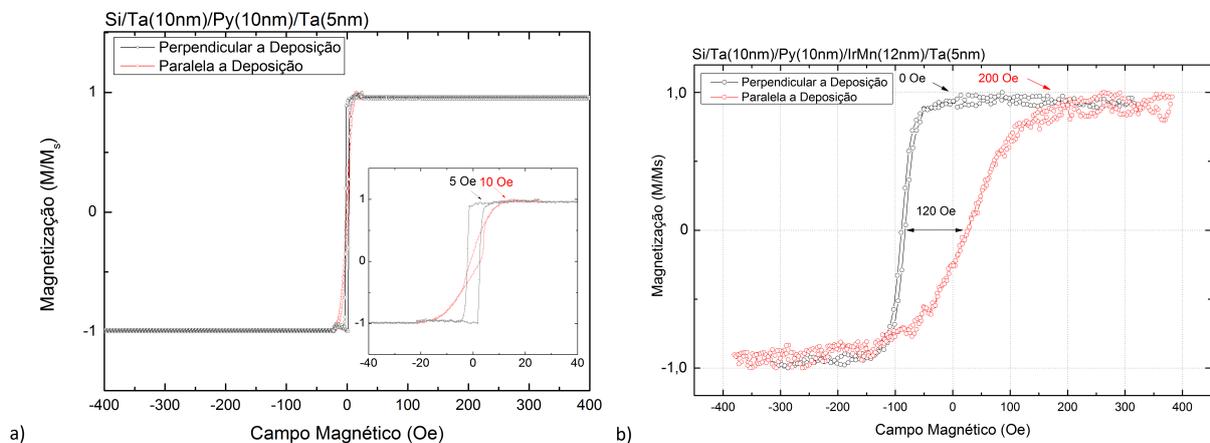


Figura 4.2: Medidas de magnetometria obtidas pela técnica MOKE para (a) um filme simples de Py(10 nm) e (b) para uma bicamada FM/AF composta por Py(10 nm)/IrMn(12 nm).

Analisando primeiramente o filme simples ferromagnético (Figura 4.2a), é possível observar a diferença do campo magnético necessário para saturar a magnetização em relação aos eixos fácil e duro da amostra. Os pontos em pretos foram obtidos mediante de uma medida no plano do filme na direção perpendicular a direção de deposição. A saturação magnética nesta direção ocorreu em torno de aproximadamente 5 Oe de campo magnético externo. Ao girar a amostra de 90° e realizar um novo experimento (pontos vermelhos) foi

encontrado um campo de saturação da ordem de 10 Oe. Este comportamento anisotrópico foi induzido pela deposição oblíqua, é bem conhecido na literatura que o *permalloy* depositado com incidência normal apresenta comportamento isotrópico [77]. Este comportamento anisotrópico está associado ao efeito de *self-shadowing* induzido pela deposição oblíqua, como já foi discutido na seção anterior.

O eixo que apresenta menor campo de saturação é definido como eixo de fácil magnetização, ou simplesmente de eixo fácil e se refere a direção do alongamento dos grãos, enquanto o eixo de maior campo de saturação é definido como eixo duro de magnetização, ou simplesmente de eixo duro e se refere a direção perpendicular ao alongamento do grão.

Na figura 4.2b é possível verificar o efeito de *exchange bias* que é caracterizado por um deslocamento isotrópico da curva de histerese além do aumento de coercividade [44, 45]. Utilizando a relação matemática $H_{eb} = \frac{H_{C1} + H_{C2}}{2}$, onde H_{eb} , H_{C1} e H_{C2} são o campo de *exchange bias*, e os dois campos coercivos, respectivamente, foi encontrado um valor de aproximadamente 120 Oe para o campo de *exchange bias*. O campo coercivo para este filme foi obtido utilizando a equação $|\frac{H_{C1} - H_{C2}}{2}|$ e resultou em 7,5 Oe. Este valor teve um aumento de 50% se comparado com o filme simples de Py. Observando a figura 4.2a e 4.2b é possível perceber a grande influência nas propriedades magnéticas dos filmes devido a interface FM/AF. O efeito de *exchange bias* apresentada pela figura 4.2b comporta-se como se existisse um campo magnético interno de aproximadamente 120 Oe com direção bem definida dentro do filme e paralela a direção uniaxial. Esta anisotropia favorece apenas uma direção (neste caso o sentido negativo do campo magnético externo), devido a isto, esta anisotropia também é conhecida como anisotropia unidirecional.

Através dessas curvas de histerese (Figura 4.2a e 4.2b) é possível concluir que estes filmes são materiais ferromagnéticos moles, pois é possível saturar a magnetização com baixos valores de campos magnético. Os espectros da ressonância ferromagnética destes filmes possuem campo de ressonância, como será visto adiante, acima de 400 Oe o que mostra que as amostras estão saturadas durante a ressonância. Esta informação é muito útil e facilita a análise quantitativa dos resultados experimentais de FMR. Durante os cálculos a direção de magnetização é muito bem conhecida, pois esta coincide com a direção do campo magnético (amostra saturada). Logo, será tomada que o ângulo polar para a magnetização θ_H será $\frac{\pi}{2}$ e que o ângulo azimutal da magnetização ϕ_M será igual a ϕ_H . Estas considerações simplificam os cálculos, pois a energia magnética livre dos filmes é escrita em termo de senos e cossenos, e durante os cálculos são tomadas as derivadas de segunda ordem em relação a ϕ_M e θ_M nas condições de equilíbrio que são bem conhecidas (condições de saturação).

4.2 Medidas de Ressonância Ferromagnética (FMR)

A principal técnica experimental utilizada foi a ressonância ferromagnética (FMR). Esta técnica fornece os campos efetivos relativos as anisotropias magnéticas e os mecanismos de relaxação da magnetização. Foram investigados filmes simples de Cobalto e *Permalloy*, e bicamadas FM/AF (Py/IrMn). As amostras foram caracterizadas através da análise da dependência angular no plano do filme para o campo de ressonância ($H_r \times \phi_H$) e largura de linha ($\Delta H \times \phi_H$). Detalhes sobre a técnica de FMR, como por exemplo: funcionamento do espectrômetro de FMR, teoria e contribuições para a implementação/otimização das medidas são fornecidas na Seção 3.3. Serão agora apresentados os resultados de FMR obtidos para filmes finos de Cobalto fabricados por *sputtering* oblíquo.

4.2.1 Filmes finos de Cobalto (Co)

Foram fabricadas duas amostras com espessuras de 1 e 3 nanômetros de Co. Estas espessuras muito finas foram escolhidas com o objetivo de testar a sensibilidade do espectrômetro de FMR, uma vez que, o sinal medido de absorção de micro-ondas para filmes com espessuras da ordem de 10 nm, praticamente não apresentam ruído [7].

As amostras investigadas foram cortadas, através de uma serra de fio de diamante nas dimensões 1,5 mm \times 1,5 mm. Não foi possível observar a ressonância para o filme com espessura de 1 nm, porém, o filme com espessura de 3 nm apresentou absorção de micro-ondas com ótima relação sinal/ruído (ver Figura 4.3). Filmes ferromagnéticos com espessura muito fina, da ordem de 1 nm, podem apresentar o eixo fácil magnético fora do plano [42]. Estes filmes, geralmente, saturam sobre influência de baixos campos magnéticos (campo de ressonância da ordem de 50 Oe para frequência de micro-ondas de aproximadamente 9,3 GHz). Para investigar essa amostra seria necessário utilizar um espectrômetro de banda Q com frequência de radiação da ordem de 35 GHz, pois aumentando a frequência o valor do campo de ressonância também aumentará. Observando a Figura 4.4, verifica-se que, a medida é realizada a partir do eixo fácil de magnetização ($\phi_H = 0^\circ$), e varia em passos de 10° até ϕ_H alcançar 90° (eixo duro de magnetização). Note que, a absorção de micro-ondas sofre um deslocamento em campo a medida que a amostra é girada, sendo esta variação proporcional a anisotropia uniaxial. O campo de ressonância assume valores aproximados de 440 Oe e 800 Oe para $\phi_H = 0^\circ$ (eixo fácil) e 90° (eixo duro), respectivamente. Nota-se que, a ressonância ocorre com a amostra saturada, logo, a direção de menor campo magnético de saturação possuirá menor campo de ressonância.

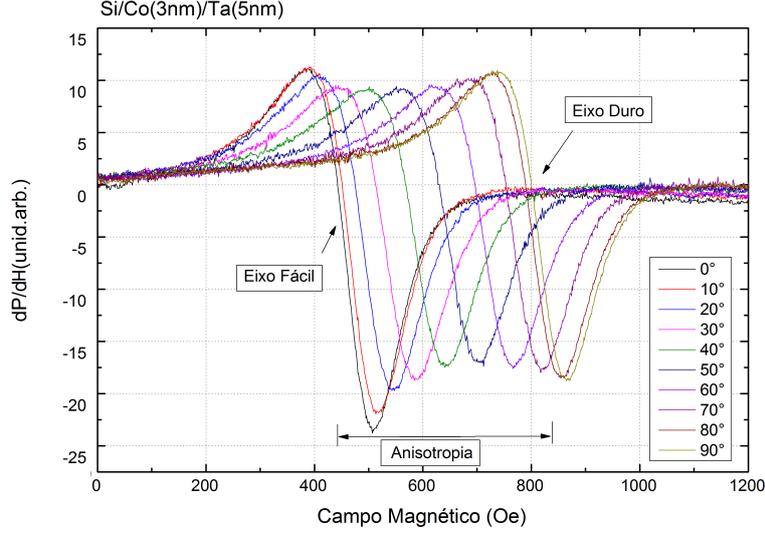


Figura 4.3: Espectros de FMR medidos no plano do filme de Co(3 nm) com frequência de radiação de 9,22 GHz a temperatura ambiente.

Após realizar 36 medidas de absorção de micro-ondas girando a amostra de 10° em 10° no plano do filme para cada espectro, é feito o tratamento destes dados utilizando a Equação 3.37. Este tratamento consiste em realizar o ajuste numérico dos dados experimentais, a fim de se obter o campo de ressonância (H_r) e a largura de linha (ΔH) em função do ângulo no plano de aplicação do campo magnético. Através desse procedimento é obtida a dependência angular do campo de ressonância ($H_r \times \phi_H$) mostrada na Figura 4.4. O campo de ressonância possui valor mínimo para ϕ_H igual a 0° e 180° , e valor máximo para ϕ_H igual a 90° e 270° , ou seja, existe um eixo fácil e um eixo duro de magnetização com direção bem definida e perpendiculares entre si. Esta simetria apresentada pela curva dos pontos experimentais é conhecida como C2, e é assinatura da presença da anisotropia uniaxial. Utilizando a Equação 3.40 é feito o ajuste numérico (linha vermelha). Através deste ajuste numérico foi obtido 17,2 kG e 179 Oe para a magnetização efetiva ($4\pi M_{ef}$) e para o campo uniaxial (H_U), respectivamente. Note que a amplitude de variação do campo de ressonância é aproximadamente o dobro do campo uniaxial.

A análise da largura de linha obtida por FMR ($\Delta H \times \phi_H$) fornece os mecanismos de relaxação da magnetização da amostra. Para realizar uma análise quantitativa de $\Delta H \times \phi_H$, será considerado a sobreposição de dois mecanismos de relaxação onde o primeiro termo corresponde ao mecanismo de relaxação intrínseco da magnetização, chamado de amortecimento de Gilbert (ΔH_G - ver Equação 3.45), e o segundo termo corresponde ao amortecimento extrínseco da magnetização, chamado de amortecimento de dois mágnons (ΔH_{2M} - ver Equação 3.47). O amortecimento de Gilbert tem uma contribuição isotrópica, pois este depende somente da frequência de ressonância, sendo esta constante devido ao

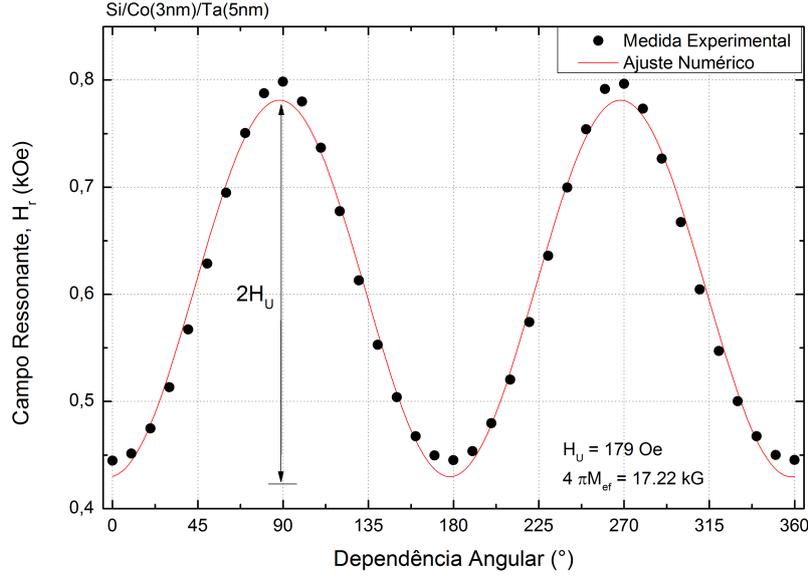


Figura 4.4: Dependência angular do campo de ressonância para o filme de Co (3nm) medido com frequência de ressonância de 9,22 GHz. Os círculos pretos correspondem aos dados experimentais e a linha contínua ao ajuste numérico através da Equação 3.40.

experimento ser realizado com $\frac{\omega}{2\pi}$ igual 9,22 GHz. A contribuição do mecanismo de dois mágnons está relacionada ao comportamento anisotrópico angular de ΔH no plano do filme. O modelo utilizado para ΔH_{2M} está descrito no trabalho de I. Barkusovet *et al.* [15] como $\Delta H_{2M} = (\Gamma_4 + \Gamma_2)/\gamma$, onde Γ_4 e Γ_2 (ver Equações 3.47, 3.50 e 3.48) representam dois canais de relaxação devido ao espalhamento de dois mágnons presentes em amostras fabricadas por deposição oblíqua. O termo Γ_4 está relacionado a defeitos cristalinos retangulares na superfície do filme com orientação η em relação à η_U . Este mecanismo possui simetria C4 (quatro picos). Por fim, o termo Γ_2 está relacionado à linhas (*stripes*) periódicos induzidos no plano do filme, que possuem flutuações na magnetização de saturação, e que geram campos dipolares atuando como defeitos capazes de realizar espalhamento de dois mágnons. Este último mecanismo de relaxação magnética, apresenta uma simetria conhecida como C2 (dois picos). Para o filme de Co(3 nm) a contribuição para ΔH devido ao mecanismo intrínseco de Gilbert foi de 97,6 Oe. Os valores obtidos para o amortecimento relacionado ao mecanismo de dois mágnons foram 4,6 Oe e 15,0 Oe, respectivamente. A presença do mecanismo de amortecimento nessa amostra, mostra que, durante a deposição oblíqua são induzidos defeitos com textura semelhante a linhas paralelas (*stripes*).

A ótima relação sinal/ruído apresentada pelas medidas de FMR para o filme simples de Co com espessura de 3nm, a baixa quantidade de trabalhos publicados envolvendo FMR em função da temperatura, foram motivações para investigar a influência da temperatura no experimento de FMR, e conseqüentemente, nas anisotropias magnéticas. Para realizar

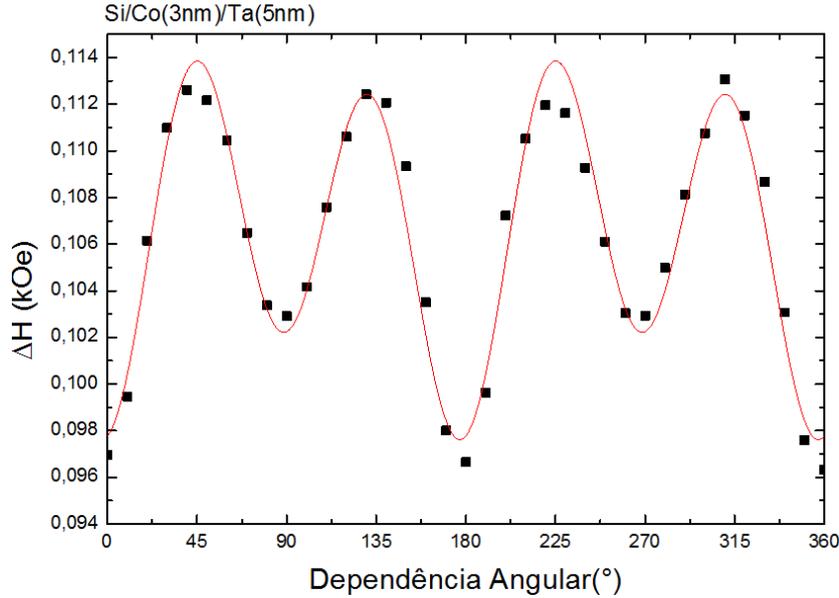


Figura 4.5: Dependência angular da largura de linha para o filme de Co(3 nm) medido com frequência de ressonância de 9,22 GHz. Os círculos pretos correspondem aos dados experimentais e a linha contínua ao ajuste numérico através da Equação 3.47.

as medidas em baixas temperaturas, a cavidade foi montada sobre um criostato de fluxo de He (Oxford), de forma que a temperatura da amostra pode ser controlada entre 10 K e 300 K. Ao variar a temperatura de um filme este pode sofrer transformações alotrópicas cristalinas, tensões térmicas devido a diferentes coeficientes de dilatação nas interfaces, que podem resultar numa mudança na intensidade e direção das anisotropias magnéticas. Para não deixar nenhuma variação passar despercebida, foi adotado um procedimento experimental para realizar medidas em baixas temperaturas. (i) Evitar esfriar e aquecer as amostras diversas vezes, pois foi verificado que isso diminui sua vida útil (reprodutibilidade de medida); (ii) Todas as medidas são feitas a partir das menores temperaturas e o sistema é aquecido até a temperatura ambiente; (iii) É feita uma medida da dependência angular de FMR da amostra a temperatura ambiente antes de resfriar, com o objetivo de localizar a direção do eixo fácil de magnetização no plano do filme; (iv) Toda vez que a amostra é aquecida ou resfriada a direção do eixo uniaxial deve estar paralela ao campo magnético e o eletroímã produzir apenas o seu campo remanente (a fonte de corrente era desligada). Este cuidado é essencial, pois caso os filmes possuam alguma oxidação, alguns destes óxidos de Co, Ni e Fe apresentam temperatura de Néel menor que temperatura ambiente. Portanto, ao resfriar esses filmes esses óxidos tornam-se antiferromagnéticos, e se forem resfriados na presença de campo magnético essa anisotropia pode se ordenar em certa direção, fazendo que surja o efeito de *exchange bias* [44], conseqüentemente a amostra não irá apresentar o comportamento de um filme simples, se comportando como uma bicamada FM/AF.

Enquanto o sistema era resfriado foram realizadas medidas de absorção de micro-ondas para $\phi_H = 0^\circ$ (paralelo ao eixo fácil). Os espectros de absorção de micro-ondas em diferentes temperaturas podem ser vistos na Figura 4.6a. Através dessas medidas foi obtido o campo de ressonância e a largura de linha em função da temperatura, mostrados na Figura 4.6b.

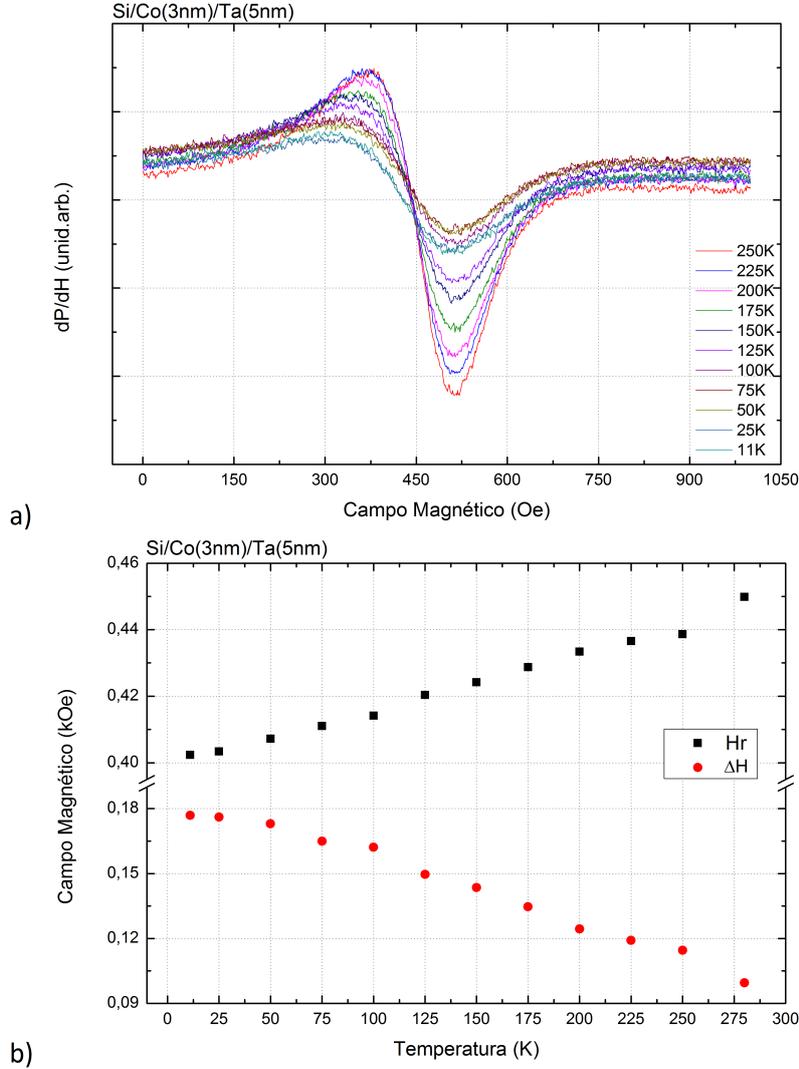


Figura 4.6: (a) Espectros de absorção de micro-ondas para o filme de Co com 3nm de espessura em diferentes temperaturas. (b) Valores de $H_r \times T$ e $\Delta H \times T$ obtidos através do ajuste numérico utilizando a Equação 3.37.

A Figura 4.6b é muito interessante, pois ela mostra que o campo de ressonância cresce com o aumento da temperatura, enquanto a largura de linha decresce. Estes comportamentos apresentados para H_r e ΔH devem estar relacionados à anisotropia e à magnetização efetiva ($4\pi M_{ef}$). É bem conhecido que, o comportamento da magnetização para um material ferromagnético é descrito pela equação de Bloch[40]:

$$M(T) = M_o \left(1 - \left(\frac{T}{T_C} \right)^{3/2} \right) \quad (4.1)$$

onde M_o , T_C e T são a magnetização na temperatura zero, temperatura de Curie e temperatura, respectivamente. Para se obter a magnetização é preciso, por exemplo, realizar uma medida de magnetometria de amostra vibrante (VSM), e relacionar este resultado com o volume do filme, além de ter o cuidado de subtrair os efeitos paramagnéticos e diamagnéticos do substrato, fita adesiva (*capton*) e suporte de amostras (acrílico ou quartzo). Em medidas de FMR, a grandeza que está diretamente relacionada à magnetização de saturação, é chamada de magnetização efetiva:

$$4\pi M_{ef} = 4\pi M - \frac{2K_S}{tM} \quad (4.2)$$

onde M é a magnetização de saturação, K_S é a constante de anisotropia de superfície e t é a espessura. O segundo termo da Equação 4.2 torna-se relevante para filmes com espessura máxima da ordem de 1 nm [42]. Este termo é utilizado para explicar a anisotropia magnética perpendicular à superfície induzida em filmes de baixa espessura. A anisotropia de superfície (K_S) não é relevante na magnetização efetiva para um filme de Co com 3 nm de espessura, pois, foi verificado que esta amostra possui anisotropia uniaxial no plano (ver Figura 4.4). Devido a essa argumentação, será proposto que o primeiro termo da Equação 4.2 é dominante, portanto, o comportamento da magnetização efetiva deve ser semelhante ao apresentado pela magnetização em função da temperatura. Seguindo essa linha de raciocínio é possível compreender $H_r \times T$ e $\Delta H \times T$ (figura 4.6b). A magnetização efetiva influencia o campo de ressonância da seguinte forma: o aumento da magnetização efetiva gera um deslocamento isotrópico para baixos campos de ressonância, ou seja, a dependência angular de H_r sofre um deslocamento vertical para baixo. A magnetização do filme aumenta em baixas temperaturas (equação de Bloch), e conseqüentemente a magnetização efetiva. Logo, durante o resfriamento $4\pi M_{ef}$ aumenta, o que implica na diminuição dos valores de H_r . A largura de linha está relacionada ao amortecimento da magnetização.

As dependências angulares de FMR em baixa temperatura foram realizadas variando ϕ_H de 180°, e não 360°. Esta mudança foi tomada buscando diminuir o longo tempo de medida, e conseqüentemente, resultando em uma economia de Hélio líquido. Esta otimização, não prejudica em nada o experimento, observe as Figuras 4.4 e 4.5 para

$H_r \times \phi_H$ e $\Delta H \times \phi_H$, respectivamente, note que, a dependência angular completa ($\Delta\phi_H = 360^\circ$), corresponde a medida de meia dependência angular ($\Delta\phi_H = 180^\circ$) espelhada em 180° . Logo, não existe perda de informação nesta simplificação experimental. As figuras 4.7a e 4.7b, apresentam os resultados obtidos para as dependências angulares de FMR variando ϕ_H entre 0° e 180° no plano do filme, para o campo de ressonância e largura de linha diversas temperaturas.

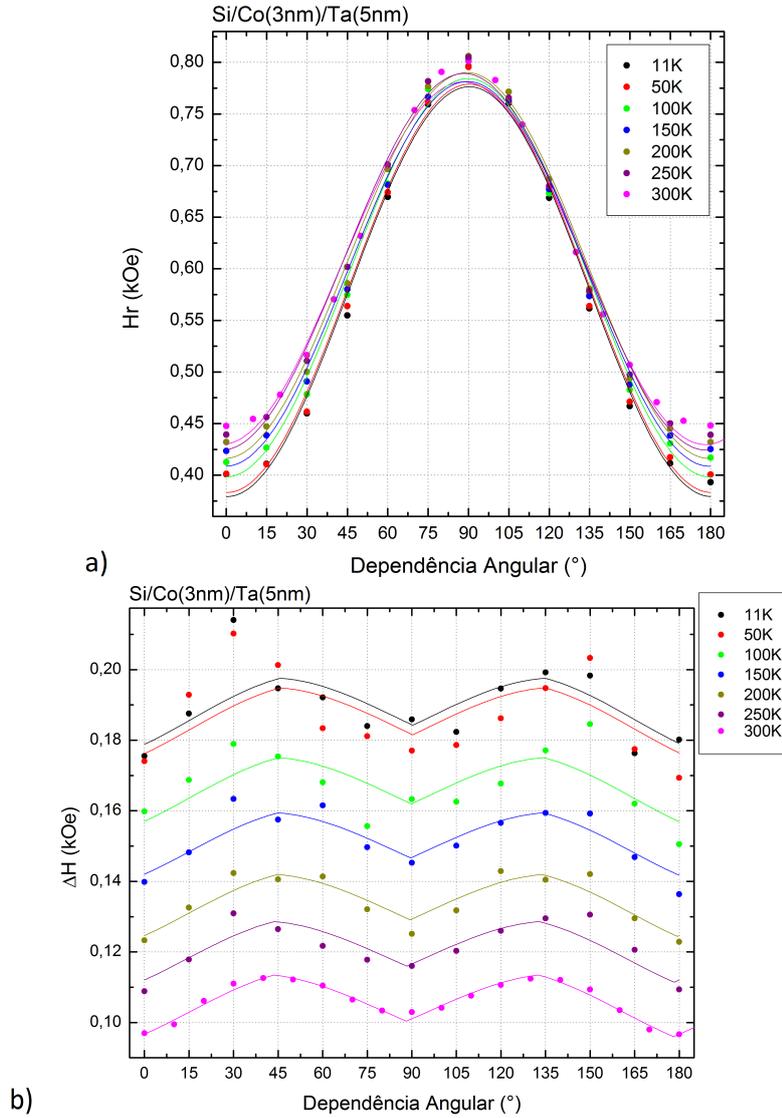


Figura 4.7: Dependência angular, (a) do campo de ressonância e (b) da largura de linha, no plano de um filme de cobalto 3 nm em função da temperatura. Os pontos representam as medidas experimentais e as linhas representam os ajustes numéricos. A frequência foi de 9,22 GHz, com atenuação de 30 dB.

As linhas contínuas apresentadas nas Figuras 4.7a e 4.7b foram obtidas através do ajuste numérico das dependências angulares do campo de ressonância, utilizando as equações 3.40 e 3.46, respectivamente, para cada temperatura. As grandezas obtidas através deste ajuste numérico são apresentadas na Tabela 4.1. Para realizar o estudo de $\Delta H \times T$,

foi proposto que, somente $\Delta H_{Gilbert}$ varia em função da temperatura, o que de fato foi observado. Ao resfriar a amostra, os defeitos superficiais responsáveis pelo espalhamento de dois mágnons permanecem inalterados, portanto somente o mecanismo intrínseco de relaxação magnética é influenciado pela temperatura.

Tabela 4.1: Parâmetros de ajuste das dependências angulares de FMR das amostras de Co (3 nm) para a magnetização efetiva, anisotropia uniaxial e largura de linha de Gilbert

Temperatura (K)	$4\pi M_{ef}$ (kG)	H_U (Oe)	ΔH_G (Oe)
11	18,1	201	181
50	18,0	200	179
100	17,6	196	159
150	17,5	189	143
200	17,2	190	126
250	17,2	181	113
300	17,2	178	97

Os valores apresentados na Tabela 4.1, referente ao comportamento da magnetização efetiva, campo uniaxial e amortecimento intrínseco de Gilbert, plotados em função da temperatura, podem ser visualizados na Figura 4.8. Na figura 4.8a, é apresentado o comportamento para a magnetização efetiva em função da temperatura. Note que $4\pi M_{ef}$ varia muito pouco com a temperatura nos experimentos realizados entre 200 K e 300 K, já para temperaturas menores que 200 K, o comportamento aparenta ser linear e decrescente com a temperatura. Nas figuras 4.8b e 4.8c são apresentados os comportamentos para o campo efetivo uniaxial e a largura de linha de Gilbert em função da temperatura, no intervalo medido entre 15 K e 300 K, essas duas grandezas apresentam comportamento linear e decrescente com a temperatura. O aumento da largura de linha obtido experimentalmente ao resfriar a amostra, deve estar relacionado com o aumento da magnetização efetiva, pois quanto maior a magnetização, mais energia é dissipada para a rede cristalina.

Buscando compreender esse comportamento dessas grandezas em função da temperatura, iremos primeiramente delimitar toda a região magnética do filme que vai de 0 K até a temperatura de Curie, T_C . Acrescentamos as medidas feitas um ponto não experimental referente a temperatura de Curie que no caso do Cobalto é em torno de 1340 K [9]. A Figura 4.9a e a 4.9b apresenta o comportamento da magnetização efetiva e a anisotropia uniaxial com o ponto não experimental da temperatura de Curie delimitado toda a região magnética, e com os seus respectivos ajustes numérico segundo a Lei de Bloch e a equação de Callen, que será apresentada a seguir, respectivamente.

Analisamos primeiramente a magnetização efetiva. Foi proposto anteriormente nessa seção, que a magnetização efetiva para o filme de Co com espessura de 3 nm deve se comportar de forma similar a magnetização em função da temperatura, dada pela Lei

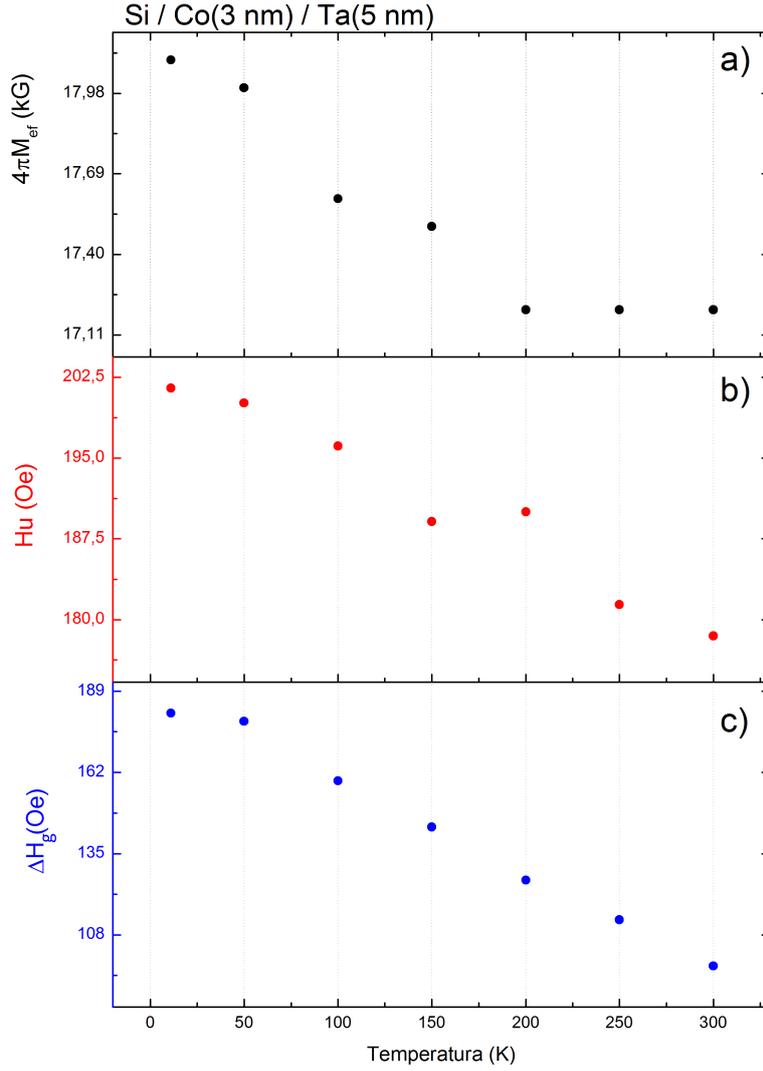


Figura 4.8: Ajuste das dependências angulares de FMR das amostras de Co (3 nm) para a magnetização efetiva, anisotropia uniaxial e largura de linha de Gilbert.

de Bloch. Para temperaturas superiores a T_{Curie} , o níquel, o ferro e o cobalto, sofrem uma transição magnética, deixando de apresentar o comportamento ferromagnético. A figura 4.9a é obtida através de uma extrapolação dos resultados experimentais, onde foi considerado que a magnetização efetiva deixa de existir na T_{Curie} do Cobalto, e que esta anisotropia se comporta respeitando a Lei de Bloch ($4\pi M_{ef} = 4\pi M_0(1 - (T/T_C)^{3/2})$). Como as medidas foram realizadas numa faixa de temperatura entre 15 e 300 K, o comportamento da magnetização efetiva se encontra dentro do esperado, foi possível estipular que magnetização efetiva, para um filme de Co com espessura de 3 nm a temperatura de 0 K, seria de aproximadamente 18,3 kG ($4\pi M_0$).

O campo efetivo de anisotropia uniaxial é obtido através da constante de anisotropia uniaxial e da magnetização de saturação seguindo a relação

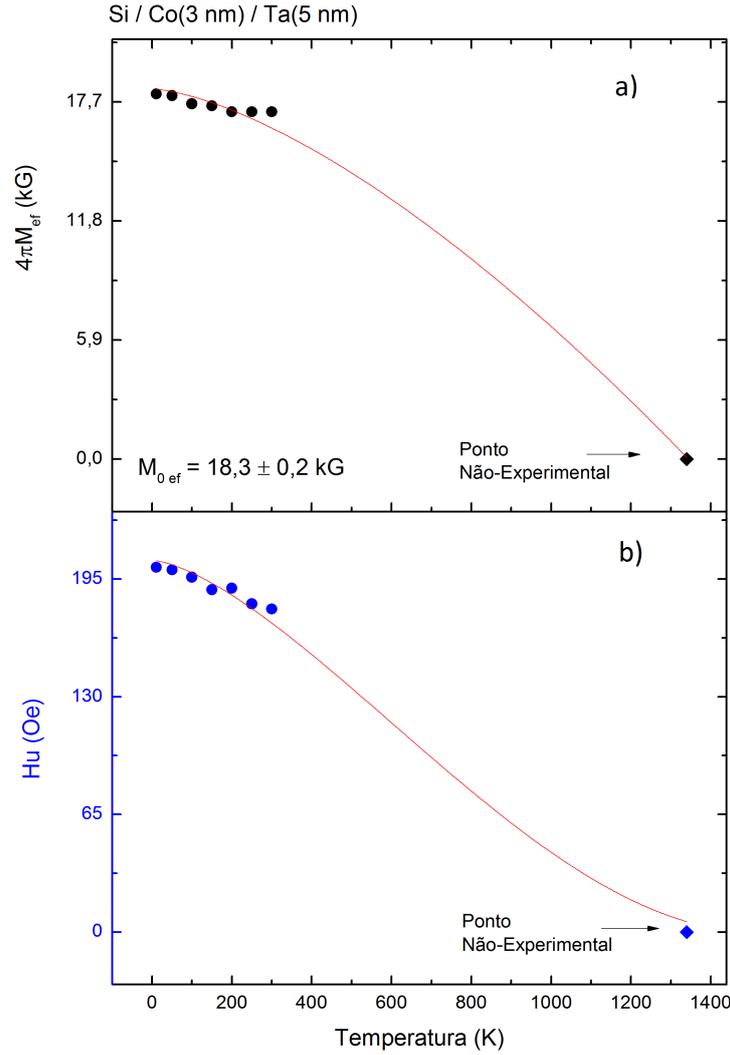


Figura 4.9: Pontos experimentais da magnetização efetiva e da anisotropia uniaxial acrescentando um ponto não experimental da temperatura de *Curie* de 1340 K do Filme Fino FM de Co(3 nm) em função da temperatura, como o ajuste numérico segundo a Lei de Bloch e a Equação de Callen, respectivamente.

$$H_U = \frac{2K_U}{M} \quad (4.3)$$

Ao alterar a temperatura da amostra, é esperado que H_U varia, pois M também varia. Se propormos que as contrações e tensões térmicas não são suficientes para alterar o formato dos grãos, responsáveis por essa anisotropia uniaxial induzida pela morfologia dos grãos devido ao efeito de *self-shadowing*, $4\pi M_{ef}$ devem se comportar de forma semelhante a magnetização em função da temperatura. Faremos também uma extrapolação de como seria o comportamento de $H_U \times T$ até a temperatura de Curie do Cobalto, fazendo uso de um ponto não experimental, que delimitaria toda região magnética.

Para o ajuste da anisotropia uniaxial usaremos o tratamento feito por Callen [78, 79]. Ele relaciona a constante de anisotropia uniaxial com a magnetização de saturação da seguinte forma

$$\frac{K_U(T)}{K_{U,0}} = \left(\frac{M(T)}{M_0} \right)^{\frac{l(l+1)}{2}} \quad (4.4)$$

onde l depende da simetria do cristal. Para a anisotropia uniaxial temos $l = 2$. Mais detalhes podem ser vistos na referência [78]. Então

$$\frac{K_U(T)}{K_{U,0}} = \left(\frac{M(T)}{M_0} \right)^3 \quad (4.5)$$

Substituindo a equação de *Bloch* na equação 4.5 temos que a relação da constante de anisotropia uniaxial em função da temperatura será dada por

$$K_U(T) = K_{U,0} \left(1 - \left(\frac{T}{T_C} \right)^{3/2} \right)^3 \quad (4.6)$$

Com base na equação 4.6, será esperado que o comportamento da anisotropia uniaxial será dado por

$$H_U(T) = 2 \frac{K_{U,0} \left(1 - \left(\frac{T}{T_C} \right)^{3/2} \right)^2}{M_{eff}} \quad (4.7)$$

Foi proposto que temperatura não afeta a geometria dos grãos responsáveis pela anisotropia de forma, que se comporta como uma anisotropia uniaxial induzida no plano do filme. Também foi considerado que a magnetização de saturação M é proporcional a magnetização efetiva da FMR dada por $4\pi M_{eff}$. Na figura 4.9b está apresentado o comportamento para o campo efetivo uniaxial de 0 K até a temperatura de Curie. O maior valor de H_U obtido para esse filme, extrapolando a curva até 0 K, foi de aproximadamente 210 Oe, um aumento perto de 20% em relação a H_U obtido a temperatura ambiente.

A figura 4.10 apresenta um diagrama que relaciona o formato e orientação do grão

(representado pela elipse preenchida) em relação as curvas de densidades de energia anisotrópica superficial (representada pelas curvas tracejadas sem preenchimento). Com relação a morfologia é possível observar que o eixo fácil está na direção do alongamento do grão e o eixo duro está na direção mais estreita do grão. As curvas de densidades de energia anisotrópicas são apresentadas em três situações: i) na temperatura igual a zero, $T=0$; ii) na temperatura acima de zero, $0 < T < T_c$; e iii) na temperatura de *Curie* T_c , onde o material sofre uma transição de fase e deixa de ser ferromagnético. Nas medidas realizadas são observadas as diferenças entre os eixos, então isso nos mostra que em $T = 0$ K a anisotropia é máxima deixando a curva elíptica. A medida que se aumenta a temperatura a curva de densidade de energia vai perdendo sua elipticidade, ou seja, a anisotropia vai diminuindo até atingir a temperatura crítica. Nesta situação a curva deixa de ser elíptica e passa a ser uma circunferência, isso significa que não existe anisotropia entre os eixos. Na figura 4.10 é representado também que a magnetização \vec{M} precessiona em torno do campo em torno do campo externo \vec{H}_0 formando um cone de magnetização, e esse cone gira em relação ao grão durante as medidas de dependência angular na ressonância ferromagnética porque o campo externo também gira em relação ao grão.

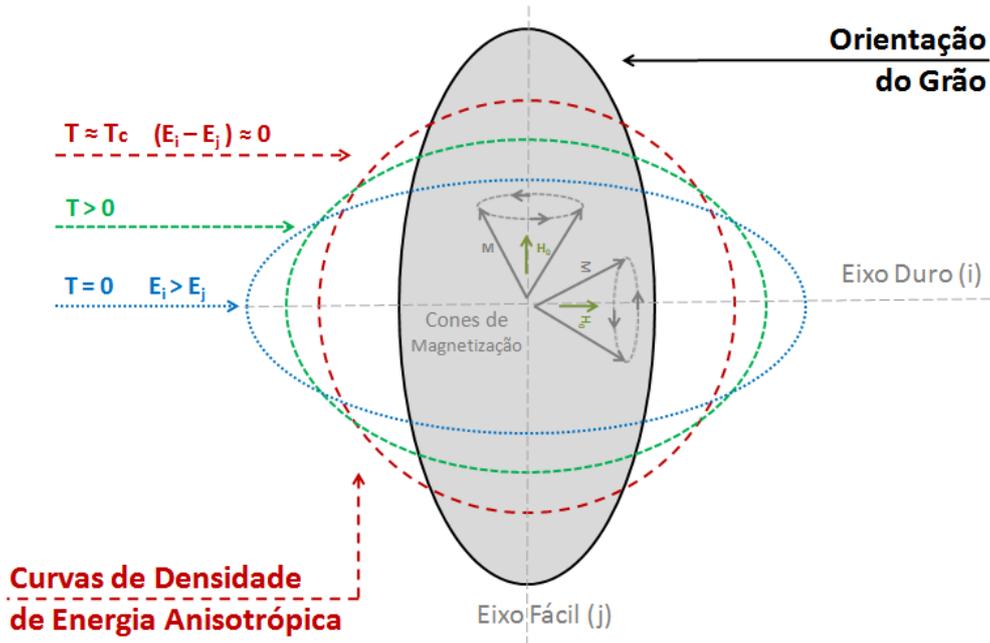


Figura 4.10: Diagrama que relaciona o formato e orientação do grão (representado pela elipse preenchida) em relação as curvas de densidades de energia anisotrópica superficial (representada pelas curvas tracejadas sem preenchimento). O eixo fácil está na direção do alongamento do grão e o eixo duro está na direção mais estreita do grão. As curvas de densidades de energia anisotrópicas são apresentadas em três situações: i) na temperatura igual a zero, $T=0$; ii) na temperatura acima de zero, $T > 0$; e iii) na temperatura de *Curie*. É representado também que a magnetização \vec{M} precessiona em torno do campo em torno do campo externo \vec{H}_0 formando um cone de magnetização, e esse cone gira em relação ao grão durante as medidas de dependência angular na FMR.

4.2.2 Filmes finos de *Permalloy* (Py)

A liga metálica conhecida como *Permalloy* (Py) é composta por $\text{Fe}_X\text{Ni}_{1-X}$ para $0,18 < X < 0,25$, possui anisotropia magnetocristalina praticamente nula, alta permeabilidade magnética e baixíssimo valor de campo coercivo. Estas propriedades fazem do Py um dos ímãs moles mais importantes, e, conseqüentemente, com diversas aplicações desde núcleos de transformadores até camadas livres nos sensores baseados em válvulas de spin. Nesta seção serão apresentados os estudos feitos em dois filmes simples de Py, com espessuras de 3 nm e 10 nm, com estequiometria dada por $\text{Fe}_{19}\text{Ni}_{81}$, através da técnica de ressonância ferromagnética (FMR). Para o filme com 10 nm de espessura foram feitas medidas de FMR para temperaturas entre 6 K e 300 K.

Os espectros de absorção de micro-ondas medidos no plano do filme, entre 0° e 90° a temperatura ambiente, para os filmes de Py(3 nm) e Py(10 nm) são mostrados nas figuras 4.11a e na figura 4.11b, respectivamente. Ambas as amostras foram cortadas com dimensões de $2 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ para remover os efeitos de borda (ver Apêndice A.2). A variação de H_r e ΔH é praticamente imperceptível visualmente através dos espectros de FMR para a amostra de Py (3 nm). O filme mais espesso, deve possuir uma anisotropia magnética maior, pois é possível perceber um deslocamento horizontal para os espectros a medida que a amostra é girada. Fazendo uma análise quantitativa dos espectros de FMR são obtidos os valores do campo de ressonância e largura de linha para cada ângulo de medida no plano do filme. Nas figuras 4.11c e 4.11d são apresentados os pontos experimentais para a dependência angular de H_r (pontos pretos para Py (3nm) e pontos vermelhos para Py(10 nm) e ΔH (pontos pretos para Py (3nm) e pontos vermelhos para Py(10 nm)). As figuras 4.11c e 4.11d apresentam $H_r \times \phi_H$ e $\Delta H \times \phi_H$ com mesma escala. As linhas contínuas representam os ajustes numéricos para H_r . A simetria de ambas as dependências angulares de H_r são semelhantes, possuindo dois picos nos eixos duros e dois vales nas direções paralelas ao eixo fácil. Esta simetria de curva é chamada de C2 e é uma assinatura da anisotropia uniaxial. Como essa amostra foi fabricada por deposição oblíqua (com 32° de inclinação), e o Py possui anisotropia magnetocristalina cúbica desprezível, é esperado que essa amostra possua apenas anisotropia uniaxial induzida devido ao efeito de *self-shadowing*. Note que $H_r \times \phi_H$ para Py (10 nm) possui uma amplitude de variação maior e um campo de ressonância médio menor se comparado com o filme de Py(3 nm). Isto significa que H_U e $4\pi M_{ef}$ são maiores para a amostra de espessura maior. O ajuste numérico mostra que o campo de anisotropia uniaxial para a amostra de 10 nm ($H_U = 5,7 \text{ Oe}$) é praticamente o dobro se comparado ao filme de 3 nm ($H_U = 2,3 \text{ Oe}$). A magnetização efetiva apresenta um aumento de aproximadamente 20% com espessura, ou de seja, de 9,0 kG (Py 3 nm) para 11,0 kG (Py 10 nm).

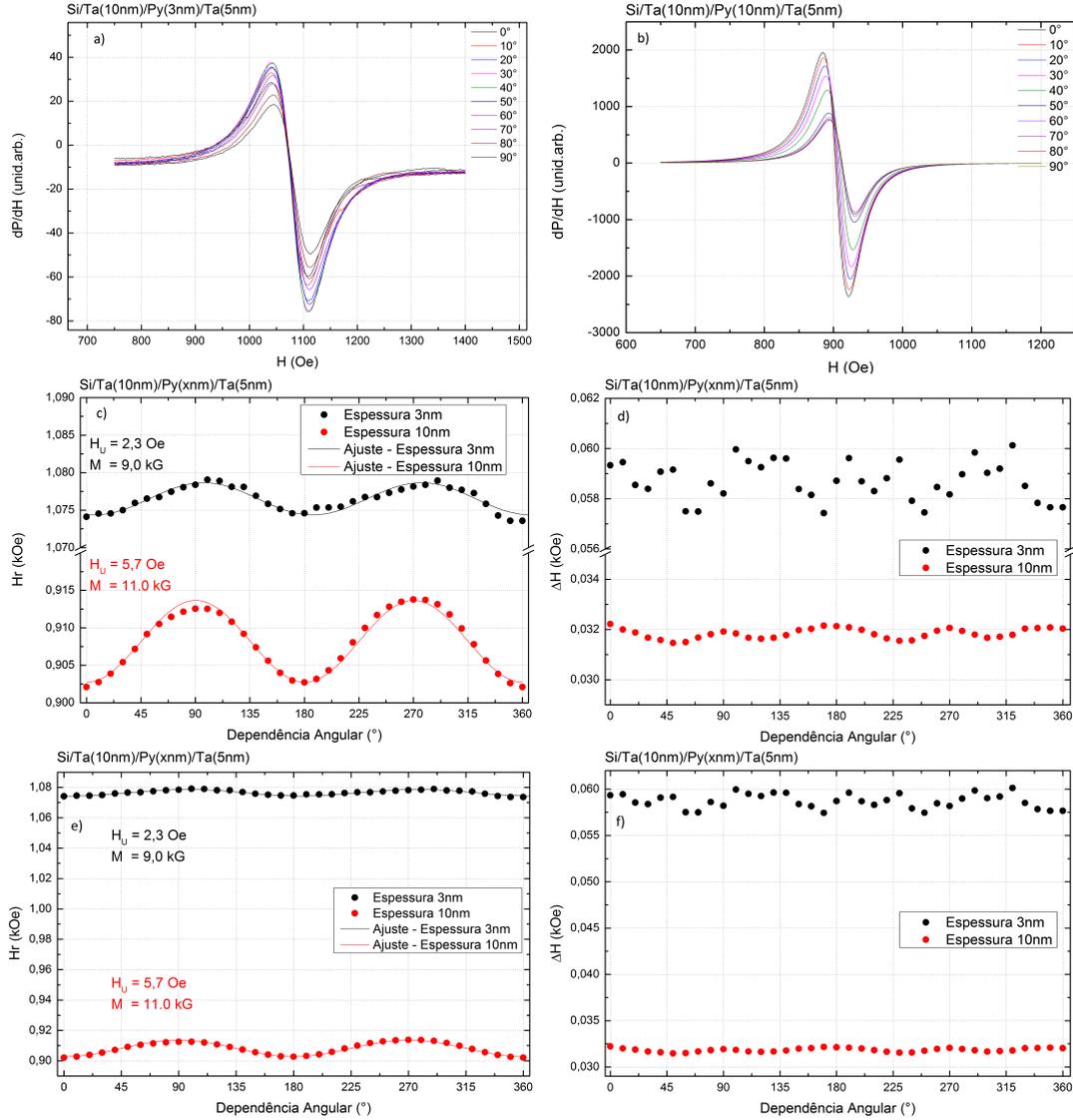


Figura 4.11: Espectros de FMR do Filme Simples FM de *permalloy* de (a) 3nm e (b) 10 nm em função da temperatura. Em (c) a dependência angular do campo ressonante em função da espessura com zoom. Em (d) fazer largura de linha Com zoom. Em (e) a dependência angular do campo ressonante em função da espessura com zoom. Em (f) fazer largura de linha Com zoom. Medidas usando uma frequência de micro-ondas de 9,22 GHz, com atenuação de 30 dB e a temperatura ambiente.

A amplitude máxima de variação da largura de linha é muito menor que a apresentada pelo campo de ressonância durante uma dependência angular. Logo, investigar $H_r \times \phi_H$ é mais comum e simples do que $\Delta H \times \phi_H$. Para compreender os mecanismos de relaxação é preciso primeiro investigar as anisotropias magnéticas, pois estas são utilizadas como dados de entrada na análise de ΔH e posteriormente ajustar $\Delta H \times \phi_H$ através da sobreposição dos mecanismos de relaxação. A qualidade da amostra e do sinal/ruído nas medidas de FMR são essenciais para permitir a análise de ΔH . A largura de linha máxima apresentada para Py(3 nm) é aproximadamente o dobro da exibida para o Py (10 nm). Este comportamento é esperado, pois é conhecido na literatura que ΔH é inversamente pro-

porcional a espessura do filme ferromagnético. Oliveira *et al.* [80] verificaram que defeitos e imperfeições na superfície e interfaces são mais evidentes em filmes finos, resultando em maiores relaxações magnéticas devido ao espalhamento de dois mágnons. Eles verificaram que a largura de linha do Py é inversamente proporcional a espessura ($\Delta H \propto 1/t$) para o Py depositado sobre Paládio (Pd). Também verificaram que ($\Delta H \propto 1/t^2$) para Py depositado sobre Si e Cr. Devido à baixa espessura do filme de Py (3 nm) e a grande largura de linha apresentada por essa amostra, a simetria apresentada pela dependência angular da largura de linha para essa amostra é de difícil interpretação, pois esta apresenta picos de não homogeneidade e grande relevância do mecanismo de dois mágnons.

Tabela 4.2: Valores para a Magnetização efetiva ($4\pi M_{ef}$), Campo uniaxial (H_U), e largura de linha ΔH , para filmes de Py com espessura de 3 e 10 nm.

Filme de Py	$4\pi M_{ef}$ (kG)	H_U Oe	ΔH (Oe)
3nm	9,0	2,3	57
10nm	11,0	5,7	32

Após realizar as medidas de FMR a temperatura ambiente a amostra Py(10 nm) foi resfriado seguindo o protocolo explicado na seção anterior. Assim como realizado para o Co, as dependências angulares do campo de ressonância em baixa temperatura foram obtidas girando a amostra em relação ao campo externo e ao campo de micro-ondas de 180° ($\Delta\phi_H = 180^\circ$). Na figura 4.12a são apresentadas as dependências angulares para o Py(10 nm) entre as temperaturas 6 e 300 K. Podemos claramente observar que a anisotropia uniaxial se mantém em baixas temperaturas, pois a simetria da curva com mínimos de campo para ϕ_H igual a 0° e 180° , e eixo duro perpendicular a essa direção ($\phi_H = 90^\circ$).

É possível notar uma variação mais acentuada tanto da anisotropia uniaxial quanto da magnetização efetiva comparando com o filme simples de Cobalto. Na figura 4.12b são apresentados os dados da largura de linha em função da temperatura, mostrando que a simetria é mantida e que apenas o amortecimento de Gilbert varia. De forma diferente ao comportamento apresentado pela relaxação de Gilbert em função da temperatura, verificada para o filme simples de Co, a relaxação de Gilbert (ΔH_G) aumenta com a temperatura para o filme de Py.

As linhas contínuas apresentadas nas Figuras 4.12a e 4.12b representam o ajuste numérico para $H_r \times \phi_H$ e $\Delta H \times \phi_H$ utilizando as equações 3.40 e 3.46, respectivamente. As grandezas obtidas como a magnetização efetiva, o campo de anisotropia uniaxial e a contribuição para a largura de linha devido ao mecanismo de intrínseco Gilbert (ΔH_G), estão plotadas em diversas temperaturas na Figura 4.13. Assumindo a temperatura de Curie de 843 K para o Py [76], e utilizando a lei de Bloch, substituindo a magnetização pela magnetização efetiva, foi feito uma extrapolação do comportamento de $4\pi M_{ef}$ em

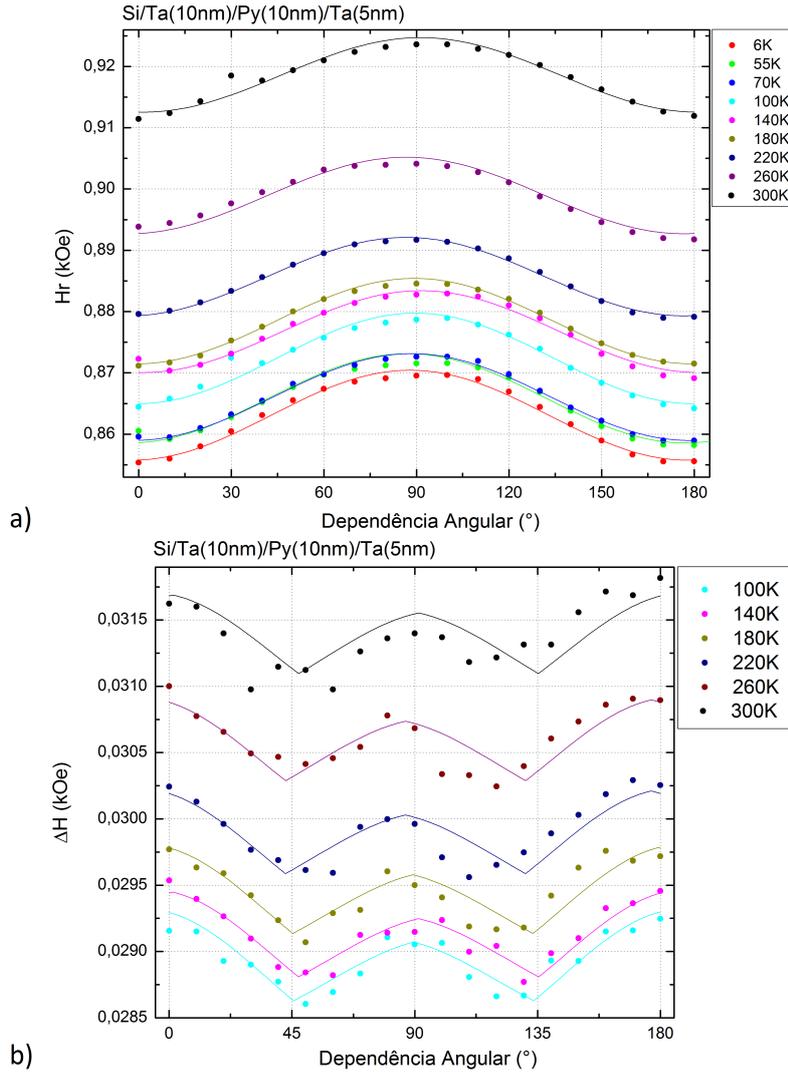


Figura 4.12: Dependência angular do (a) campo de ressonância e da (b) largura de linha do filme simples de Py (10 nm) em função da temperatura.

função da temperatura (ver Figura 4.13). Mesmo assumindo esta temperatura como sendo a temperatura de *Curie* para o ajuste da *Lei de Bloch* a curva do ajuste ainda não fica satisfatório sugerindo que esta temperatura pode ser ainda maior.

Na figura 4.12b pode ser visto o comportamento da largura de linha ΔH em função da temperatura. Podemos notar que a simetria foi mantida indicando que os defeitos extrínsecos permanecem inalterados porém o parâmetro de relaxação de Gilbert apresenta uma parte isotrópica da relaxação que aumenta com a temperatura.

Durante a execução deste trabalho foi verificado que as amostras de Py(10 nm) eram sensíveis a ciclos de resfriamento. Após cada resfriamento foi observado uma variação na largura de linha e após o terceiro processo de resfriamento foi observado uma mudança tanto no campo de ressonância quanto na largura de linha. Devido a esse problema não

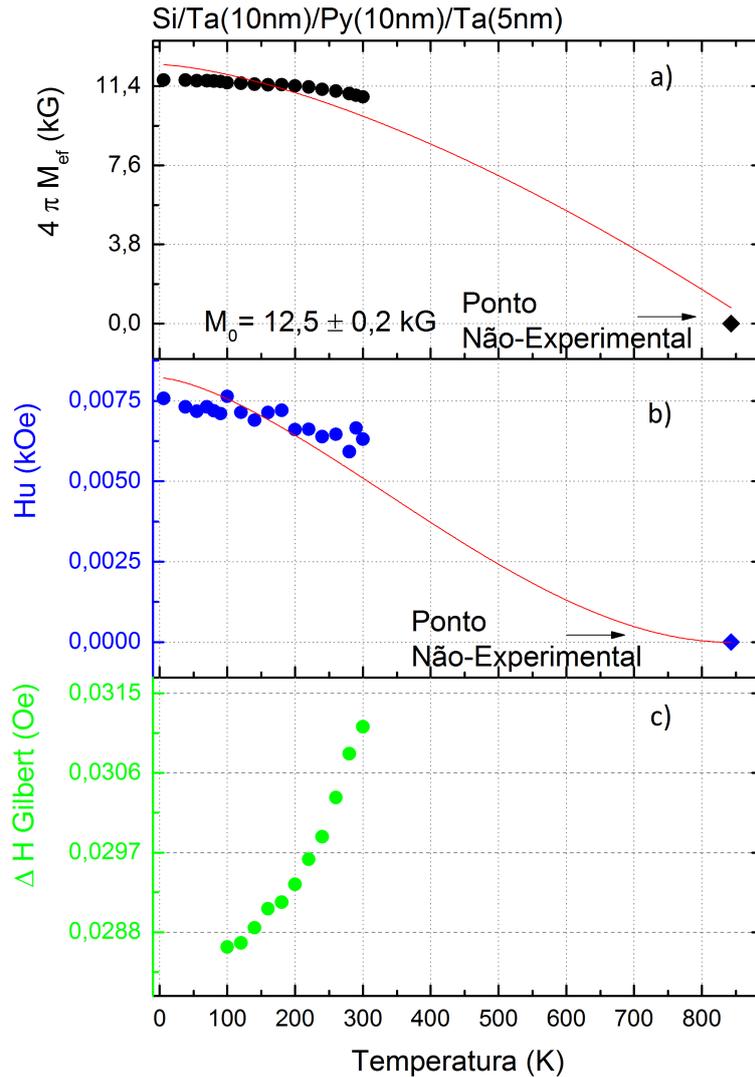


Figura 4.13: Pontos experimentais da a) magnetização efetiva e da b) anisotropia uniaxial acrescentando um ponto não experimental da temperatura de Curie de 843 K do filme simples FM de Py(10 nm) em função da temperatura, com o ajuste numérico segundo a Lei de Bloch e a Equação de Callen, respectivamente. E em c) a contribuição da largura de linha de Gilbert em função da temperatura.

foi possível completar os valores para a largura de linha apresentados na Figura 4.13, já que as medidas de 6 K a 90 K foram medidas durante o primeiro resfriamento e de 100 K - 300 K do segundo resfriamento. Como sugestão de trabalhos está a criação de protocolos de tratamentos térmicos para mais estabilidade dos filmes.

Com o objetivo de se entender essa instabilidade e na tentativa de se estabilizar as amostras foi desenvolvido um protocolo de tratamento térmico acima da temperatura ambiente para os filmes.

Foi escolhido para este fim o filme simples de Py(10 nm). O tratamento térmico consistiu em colocá-lo no forno tubular com fluxo de gás inerte, no caso o nitrogênio

gasoso, e aquecê-lo a temperaturas de 150°C , 300°C , 450°C e 600°C deixando-o durante vinte minutos nestas temperaturas. Após cada tratamento foram feitas medidas de FMR em função do ângulo no plano do filme a temperatura ambiente. Na figura 4.14 são mostrados o campo ressonante e a largura de linha das medidas de FMR entre 0° a 180° .

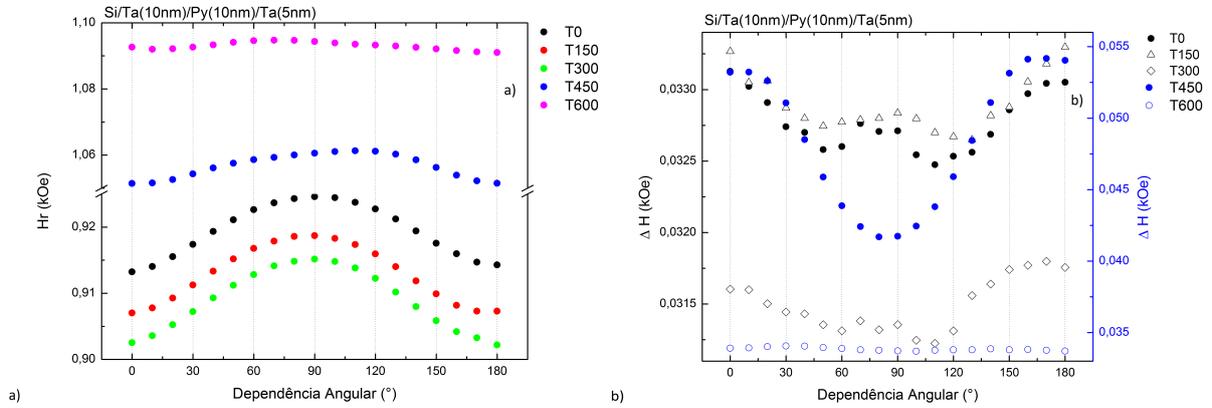


Figura 4.14: (a) Campo de ressonância e (b) Largura de linha um filme simples de Py(10nm) em função do tratamento térmico. T0 é sem tratamento térmico, T150, T300, T450, T600 são tratamentos térmicos de 150° , 300° , 450° , 600° durante vinte minutos, respectivamente.

Foi observado a partir da figura 4.14a que para tratamentos térmicos até 300°C a magnetização efetiva e a anisotropia uniaxial sofrem um aumento de até 1% e 16%, respectivamente. Para temperaturas acima de 300°C o comportamento dessas grandezas se inverte em função da temperatura, ou seja, passam a diminuir. É muito perceptível a queda do pico do campo de ressonância localizado a 90° e o deslocamento isotrópico vertical para cima de todas as dependências angulares, para os filmes com tratamento térmico superior a 300°C .

Tabela 4.3: Parâmetros de ajuste das dependências angulares de FMR das amostras de Py(10 nm) para a magnetização efetiva e anisotropia uniaxial para tratamentos térmicos de 150° , 300° , 450° , 600° .

Tratamento Térmico ($^{\circ}\text{C}$)	$4\pi M_{ef}$ (kG)	H_U (Oe)
Sem Tratamento	10,9	5,6
150	11,0	6,1
300	11,0	6,5
450	9,2	5,0
600	8,8	1,6

O comportamento apresentado pela dependência angular do campo de ressonância após os tratamentos térmicos, serve de indicativo para interpretar as possíveis mudanças estruturais induzidas pela temperatura. O aumento da anisotropia uniaxial e da magnetização efetiva verificado para temperaturas até 300°C , pode estar associado a uma possível difusão entre os grãos do Py, ou seja, o filme de Py, passaria a ter grãos maiores. Para tratamentos térmicos acima de 300°C , os resultados experimentais indicam a existência

de difusão entre os grãos do Py, e também difusão entre o Py e as camadas vizinhas de Tântalo. Em altas temperaturas, a morfologia induzida pela deposição oblíqua é destruída pela difusão, deixando os grãos mais simétricos, resultando em uma amostra com textura granular isotrópica (campo de anisotropia baixo). O fato da magnetização efetiva diminuir para tratamentos térmicos nas temperaturas de 450° C e 600° C, é um reflexo da diminuição da espessura do filme, resultante da difusão do Py para as camadas vizinhas de Ta. Para melhores conclusões sobre o assunto são necessárias imagens de microscopia eletrônica de varredura e transmissão (MEV/MET) e/ou de microscopia de força atômica (AFM).

O comportamento da largura de linha após os tratamentos térmicos é mais complexo de entender. Está grandeza tem duas contribuições, e as duas variam com a temperatura: (i) o amortecimento intrínseco de Gilbert, varia com a temperatura pois depende da magnetização; e (ii) os mecanismos de relaxação extrínsecos, dependem de defeitos na superfície dos filmes (mecanismos de espalhamento de dois-mágnons). É possível perceber que a simetria da curva de ΔH varia, e a simetria está relacionada ao espalhamento de dois mágnons. Outro fato interessante, foi que a largura de linha se tornou isotrópica após o tratamento térmico de 600° C, isso é mais um indicativo, de que para essa temperatura existe uma difusão elevada, resultando numa amostra isotrópica e com poucos defeitos superficiais.

4.2.3 Bicamadas FM/AF (Py(10 nm)/IrMn(12 nm))

Em 1956, Meiklejohn e Bean [44, 45] publicaram um artigo com o título *New magnetic anisotropy* (nova anisotropia magnética). Esta anisotropia descoberta a aproximadamente 60 anos, ainda é o principal tema de investigação para diversos pesquisadores em todo mundo. Esta anisotropia resulta da interação entre um material ferromagnético e um material antiferromagnético. O contato atômico entre esses materiais pode resultar em uma interação de troca (*exchange*) na interface, em materiais com baixas dimensões, onde a superfície se torna muito relevante. A interface representa uma quebra de simetria em uma direção bem definida. Este efeito pode ser compreendido como se existisse um campo magnético interno de sentido único, favorecendo uma certa direção e sentido, e desfavorecendo o sentido oposto. Note que, esta interação conhecida como *exchange bias* é diferente da anisotropia uniaxial, onde existe uma direção com dois sentidos de igual energia. O ápice do potencial tecnológico desta descoberta foi a aplicação de bicamadas FM/AF na estrutura que compõe as válvulas de spin. Este dispositivo revolucionou a gravação magnética, aumentando a densidade de armazenamento e conseqüentemente diminuindo

o custo por bit de informação salvo. Um dos objetivos desse trabalho é investigar as propriedades magnéticas de uma bicamada FM/AF formada por Py(10 nm)/IrMn(12 nm) em função da temperatura através da técnica de FMR.

Os experimentos de FMR foram realizados nas temperaturas entre 50 K e 300 K. Para realizar a análise dos dados experimentais serão utilizadas as informações obtidas para o filme simples de Py(10 nm) como um dados de entrada. Desta forma é possível quantificar as anisotropias, tais como: campo de *exchange bias* (H_{EB}); o campo de formação de parede de domínio (H_W) e o campo devido a anisotropia rotatória (H_{RA}).

Foi realizada uma medida da dependência angular de FMR da bicamada em função do campo magnético na temperatura ambiente. A partir desta medida preliminar, é possível posicionar e quantificar as anisotropias presentes na amostra. Ao identificar a direção do eixo fácil, o sistema é então resfriado com o campo magnético paralelo remanente do eletroímã paralelo a essa direção.

Na figura 4.15 é apresentada a dependência angular do campo de ressonância e seu respectivo ajuste numérico. Este ajuste foi obtido através das equações 3.39 e 3.41 obtidos para o filmes simples e a bicamada FM/AF a 300 K. A diferença entre as amostras é apenas a existência do filme antiferromagnético do IrMn no caso da bicamada. Como dito anteriormente, a presença do material antiferromagnético modifica a anisotropia magnética uniaxial do *Permalloy*. Este filme sozinho apresenta mínimo de campo de ressonância para ϕ_H igual a 0° e 180° , ou seja, esta direção possui mesmo valor H_r nos dois sentidos. Porém, na bicamada isso altera para ϕ_H igual a 0° o campo de ressonância é de aproximadamente 780 Oe, enquanto que no sentido oposto ($\phi_H = 180^\circ$), o valor de H_r é próximo 1030 Oe. Este comportamento representa uma mudança de simetria da dependência angular: o filme simples apresenta dois picos e dois mínimos (simetria C2), enquanto a bicamada apresenta somente um pico(simetria C1), onde o máximo do H_r é encontrado em 180° .

Após realizar o experimento de FMR a temperatura ambiente e posicionar a amostra, esta foi resfriada a uma temperatura de 10 K. Para esta temperatura não foi verificado absorção de micro-ondas. Elevando a temperatura percebeu-se que o sinal de FMR aparece a partir de $T > 50$ K. Desta forma medimos as dependências angulares de FMR para várias temperatura entre 50 a 300 K. A figura 4.16a e 4.16b apresentam as dependências angulares do campo de ressonância ferromagnética e da largura de linha, respectivamente, no intervalo de temperaturas de 50 K e 300 K. Os valores da magnetização efetiva e do campo uniaxial em função da temperatura para o filme simples de Py(10 nm), obtidos em várias temperaturas, foram utilizados como dados de entrada para o estudo da bicamada FM/AF. Assumimos que as anisotropias relativas ao material FM tenham o mesmo

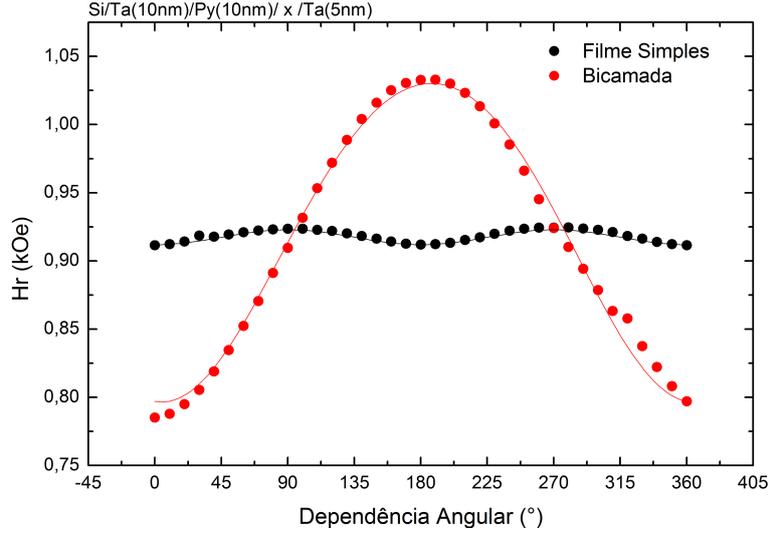


Figura 4.15: Medidas de FMR do filmes simples de Py(10 nm) e da bicamada Py(10 nm)/IrMn(12 nm).

comportamento, independente se ele faz uma interface com Tântalo ou IrMn. Com esse procedimento, é possível descobrir a variação das anisotropias devido a interface FM/AF (anisotropia rotatória e campo de *exchange bias*). Com o objetivo de facilitar a comparação entre o filme simples e a bicamada, os experimentos em baixa temperatura para o Py(10 nm) são novamente apresentados nas figuras 4.16c e 4.16d.

Comparando o comportamento do campo da ressonância em função da temperatura para a bicamada (Figura 4.16a) e para o filme simples (Figura 4.16c), verifica-se que H_r diminui para ambas as amostras, porém, essa queda é muito mais acentuada para a bicamada. O campo de ressonância no eixo fácil para a bicamada a temperatura ambiente é de aproximadamente 800 Oe, e sofre decréscimo de quase 75% quando o experimento é realizado a 50 K, ou seja, H_r nesta temperatura é de aproximadamente 200 Oe. Para o filme simples o campo de ressonância também diminui na mesma faixa de temperatura porém 7% (≈ 912 Oe a 300 K; ≈ 855 Oe a 50 K). O deslocamento vertical da ressonância é diretamente relacionado a magnetização efetiva. Como essa anisotropia depende apenas da magnetização de saturação do material ferromagnético e de sua espessura e como a camada FM é a mesma para as duas amostras, pode-se propor que esta anisotropia também será igual. Através dessas observações, conclui-se que alguma anisotropia relacionada ao material antiferromagnético é fortemente dependente da temperatura. A anisotropia rotatória está diretamente relacionada ao deslocamento vertical isotrópico da dependência angular do campo de ressonância. Logo, estes resultados experimentais indicam que a anisotropia é fortemente influenciada pela temperatura. As linhas contínuas apresentadas na Figura 4.16 são os ajustes numéricos de H_{RA} e H_E , cujos valores para a bicamada estão apresentados na Figura 4.17. A largura de linha não foi ajustada, pois os valores

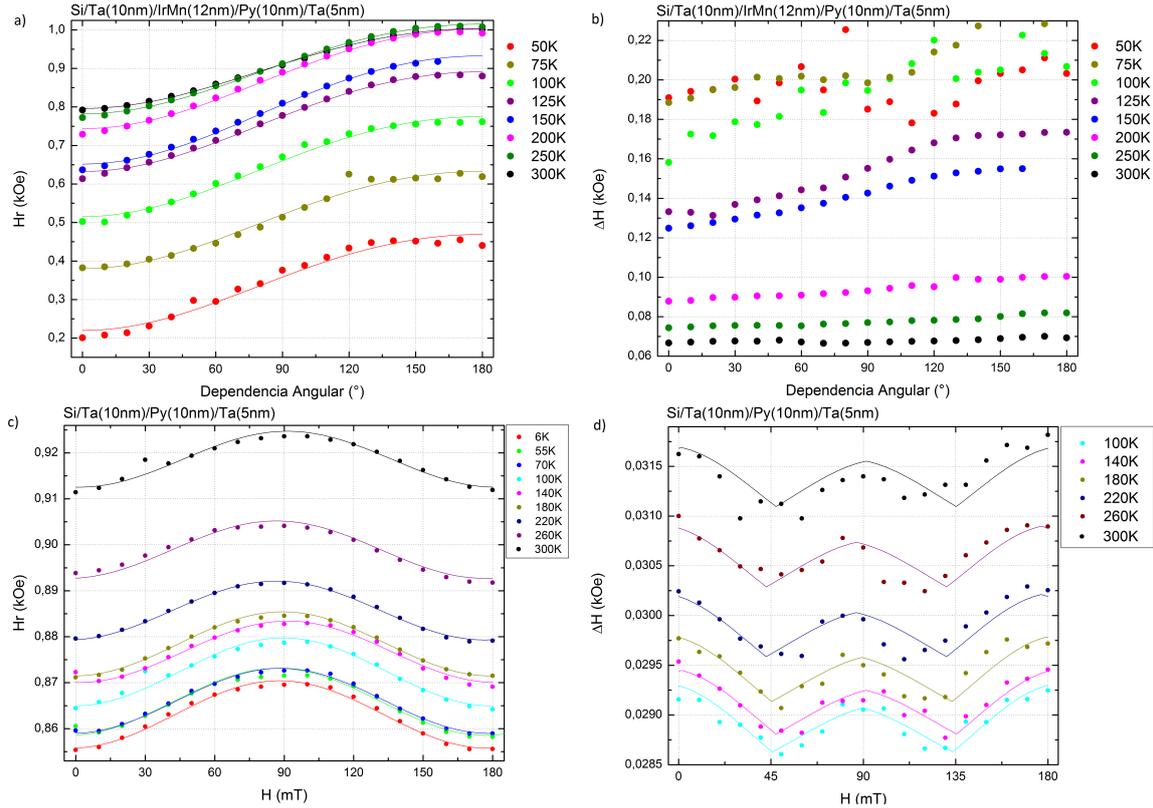


Figura 4.16: Dependência angular do (a) campo de ressonância da (b) largura de linha do filme FM/AFM Py(10nm) / IrMn (12nm), e em c) o campo ressonante e a d) largura de linha do filme simples Py(10 nm) em função da temperatura. Os itens c) e d) foram novamente plotados para destacar a diferença entre o o filme simples FM e da bicamada FM/AF em função da temperatura.

de ΔH para a bicamada são muito maiores que os verificados pelos filmes simples, além de apresentarem um comportamento inverso, ou seja, ΔH é crescente com a temperatura para o filme simples, enquanto seu comportamento é decrescente com a temperatura para a bicamada FM/AF. Amostras com altos valores de largura de linha possuem uma relação sinal/ruído pior, que podem gerar artefatos experimentais que prejudicam a sua análise. Note que, o comportamento de ΔH para a bicamada em baixas temperaturas é muito diferente do verificado próximo da temperatura ambiente. O modelo utilizado para ajustar a largura de linha de FMR em uma bicamada proposta por Barsukov [15] não leva em consideração a influência do *exchange bias* no espalhamento de dois mágnons.

O *exchange bias* apresenta máximo em torno de 150K, ela aumenta entre 50 K até 150 K e decai em uma taxa maior de 150 K até a temperatura ambiente (ver Figura 4.17a). A anisotropia rotatória tem um decaimento exponencial entre 50K a 300 K (ver Figura 4.17b). Estas grandezas foi utilizada a magnetização efetiva do filme simples de Py(10 nm) e propomos que ela depende somente do material FM e de sua espessura, não sofrendo influência dos materiais que compões as camadas adjacentes.

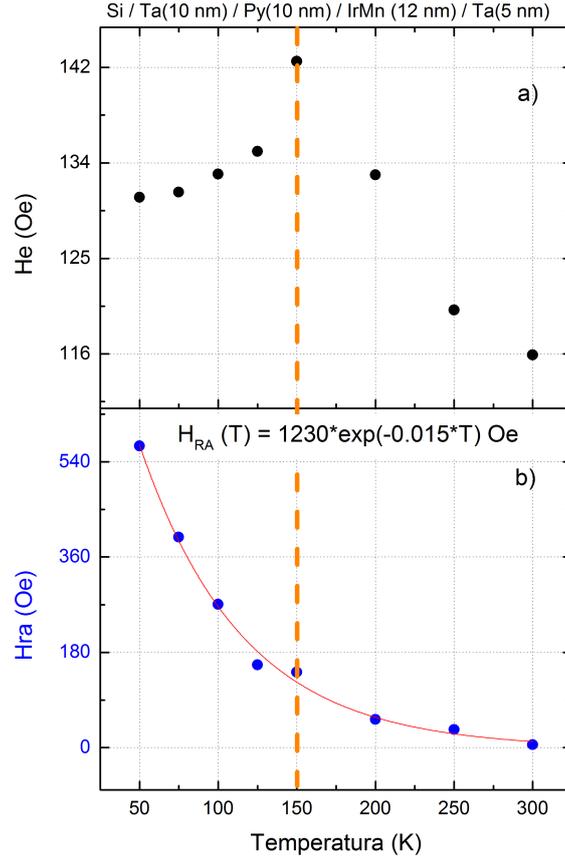


Figura 4.17: Pontos experimentais da anisotropia de *exchange bias* e b) anisotropia rotatória em função da temperatura de uma bicamada Py(10nm)/IrMn(12nm).

Na figura 4.17 pode ser observado que o campo do *exchange bias* H_{EB} da bicamada Py/IrMn apresenta um máximo em torno de 150 K, enquanto a anisotropia rotatória H_{RA} decai exponencialmente em toda a faixa de temperatura, ficando quase zero a temperatura ambiente. Um comportamento similar em função de temperatura já foi observado na literatura para duas bicamadas Py/NiMn e Py/PtPdMn para o *exchange bias* e para o campo coercivo [82]. Os autores simularam numericamente este comportamento usando um modelo granular do filme AF que envolve a espessura t_{AF} do grão AF e constante de acoplamento J deste grão com a camada FM. Segundo os autores existe uma relação chamada de razão r (sendo $r = \frac{J_{net}}{2K_{AF}t_{AF}}$) entre a constante de acoplamento J_{net} da bicamada FM/AF, a K_{AF} constante de anisotropia e t_{AF} a espessura do filme AF. Os grãos que possuem a razão $r < 0,5$ representam os grãos estáveis que contribuem para a anisotropia de *exchange bias*, já os grãos com razão $r > 0,5$ representam os grãos instáveis que contribuem para o aumento do campo coercivo (veja Figura 4.18 [82]).

No mesmo trabalho os autores simularam a dependência com a temperatura tanto do *exchange bias* quanto do campo coercivo para dois tipos de grãos: os do tipo J_{net1} que possuem um $r > 0,5$ indicado na Figura 4.19 pela linha azul, e os do tipo J_{net2} $r < 0,5$

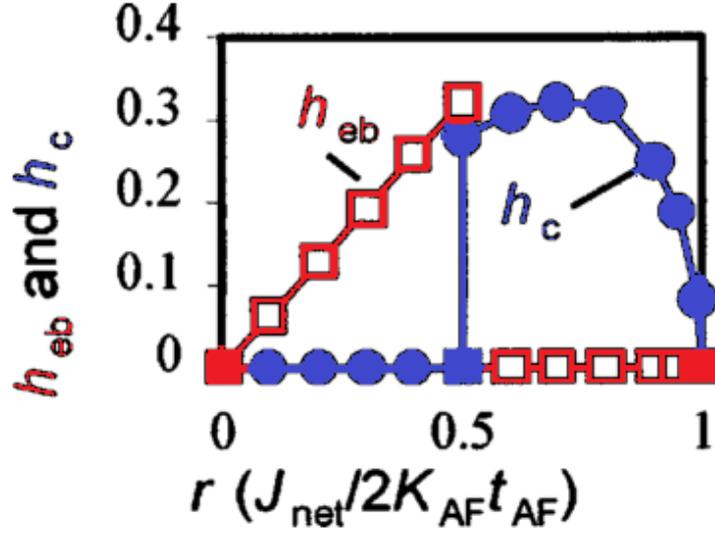


Figura 4.18: Simulação numérica do campo de *exchange bias* H_{EB} e do campo coercivo H_C em função da razão r [82] modificada.

indicado na Figura 4.19 pela linha vermelha. Pode ser notado na figura que abaixo de uma determinada temperatura crítica T_r apenas os grãos que possuem a constante J_{net2} contribuem para o *exchange bias*. Acima desta temperatura crítica T_r os grãos com J_{net1} passa e razão $r < 0,5$, indicado na figura 4.19a pela linha azul, também vão contribuir para o campo de *exchange bias* H_{EB} ($H_{EB} = H_{EB1} + H_{EB2}$) formando um pico em T_r (ver Figura 4.19b). As constantes J_{net1} e J_{net2} tendem a zero na temperatura de Curie T_c , assim como o *exchange bias*.

No fenômeno de *exchange bias* além do deslocamento da histerese há também o aumento do campo coercivo H_C . Esse aumento se dá devido a grãos instáveis na interface do filme FM/AF menores do que um determinado tamanho crítico. A estabilidade do grão é dada pela parede de domínio e é definida pelo material e sua espessura. Isso é conhecido na literatura para um filme AF de IrMn de 12 nm com um tamanho de grão de 100 nm [7]. Abaixo deste tamanho a magnetização desses grãos gira juntamente com o filme FM e, por consequência, resulta no aumento da magnetização efetivo total da bicamada FM/AF e consequentemente na diminuição do campo de ressonância em medidas de FMR sem afetar a anisotropia da dependência angular e o aumento do campo coercivo em medidas de ciclos de histerese. Então há uma relação direta entre campo coercivo e campo de anisotropia rotatória. Desta forma podemos considerar que a anisotropia rotatória obtida por FMR representa uma medida indireta de campo coercivo. Em um publicação recente [83] os autores realizaram um simulação numérica do comportamento do *exchange bias* e do campo coercivo de uma bicamada FM/AF usando o método Monte Carlo para duas condições: a primeira com grãos mono-dispersivos e a segunda com grãos poli-dispersivos.

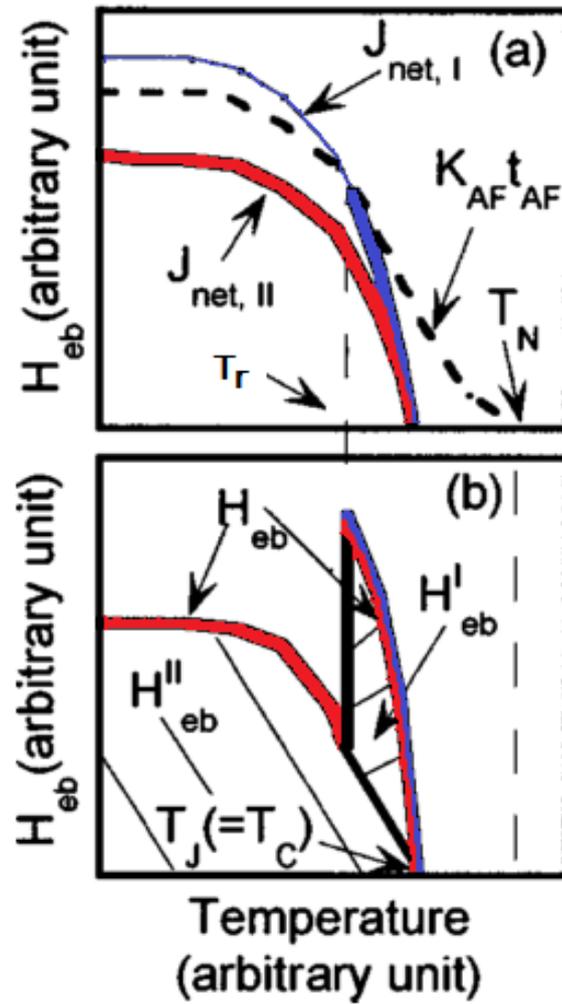


Figura 4.19: Simulação numérica do campo de *exchange bias* em função da temperatura considerando apenas dois tipos de grãos: os grãos J_{net2} que possuem uma razão $r < 0,5$ contribuindo para um campo de *exchange bias* H_{EB2} e os grãos do tipo J_{net1} que possuem uma razão $r < 0,5$ acima da temperatura crítica T_r contribuindo para o campo de *exchange bias* H_{EB1} . A figura é da referência [82] modificada.

Em ambas as situações o campo coercivo decai de forma exponencial com a temperatura (veja Figura 4.20), assim como foi observado na Figura 4.17b da anisotropia rotatória da bicamada estudada por nós.

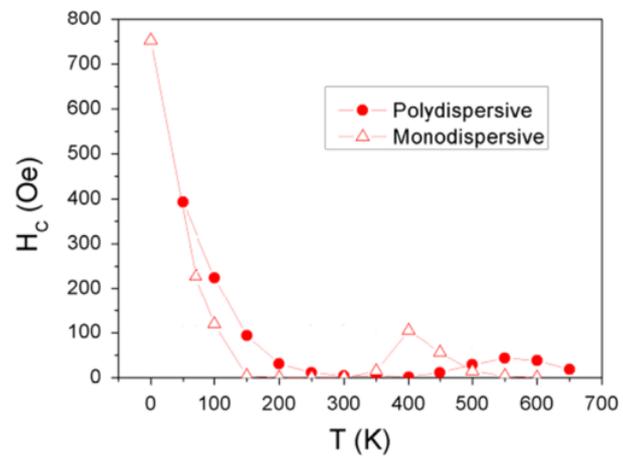


Figura 4.20: Simulação numérica do campo coercivo em função da temperatura para grãos mono-dispersivos e poli-dispersivos [83].

Capítulo 5

Conclusões e perspectivas

Neste trabalho apresentamos resultados do estudo magnético de filmes finos ferromagnéticos e bicamadas ferro/antiferromagnéticas, filmes que compõem uma válvula de spin. Os filmes foram produzidos por evaporação catódica (*sputtering*) em geometria de deposição oblíqua gerando filmes finos policristalinos com grãos alongados na direção perpendicular da deposição.

Foi realizada uma caracterização inicial no filme simples ferromagnético de Permalloy (10 nm) e da bicamada FM/AF composta de Py(10 nm)/IrMn(12 nm) por magnetometria de amostra vibrante (VSM) e por magnetometria Kerr (MOKE). Para o filme simples foi observado que o campo magnético necessário para saturar a magnetização em seus eixos fácil e duro é de 5 Oe e 10 Oe, respectivamente. Para a bicamada FM/AF foi observado um campo de *exchange bias* de 120 Oe, responsável pelo deslocamento da curva de histerese para a esquerda.

A motivação principal deste trabalho foi obter dados experimentais sobre a magnetização efetiva, anisotropias magnéticas e relaxação magnética em filmes FM e bicamadas FM/AF em função da temperatura, dados quase inexistentes na literatura. Para obter estes dados usamos a técnica de ressonância ferromagnética (FMR) e analisamos dependência angulares tanto do campo ressonante H_r quanto da largura de linha ΔH . A partir do campo ressonante é possível extrair informações sobre a magnetização efetiva e as anisotropias magnéticas e a partir da largura de linha é possível extrair informações sobre a relaxação magnética como amortecimento de Gilbert, relaxação intrínseca, e a relaxação de dois magnons, relaxação extrínsecas.

Todos os pontos experimentais das dependências angulares de FMR dos filmes ferromagnéticos simples e da bicamada foram ajustados numericamente, a partir do qual foram obtidos o campo ressonante H_r e a largura de linha ΔH em função da tempera-

tura entre 10 K e 300 K. Desta forma foram obtidas as dependências angulares do campo ressonante e da largura de linha quais foram ajustadas usando a teoria fenomenológica de FMR para obter a magnetização efetiva, a anisotropia uniaxial e a relaxação intrínseca do amortecimento de Gilbert como a relaxação extrínseca causada por efeito de dois mágnons.

Mostramos neste trabalho que a magnetização efetiva e a anisotropia uniaxial de filmes ferromagnéticos simples FM em função da temperatura obedecem a *Lei de Bloch* e a *Equação de Callen*, respectivamente. Também mostramos que somente a relaxação intrínseca é afetada pela temperatura enquanto a relaxação extrínseca baseado no efeito de dois mágnons é independente da temperatura.

Para obter os dados magnéticos da bicamada foram aproveitados os dados dos ajustes do filme simples ferromagnético como a magnetização efetiva e a anisotropia uniaxial, uma vez que o filme ferromagnético na bicamada era idêntico ao do filme simples FM. Desta forma foi reduzido o número de variáveis e conseqüentemente melhorado o ajuste numérico e estudamos apenas as anisotropias rotatória e de *exchange bias*. Para a bicamada estudada existe uma temperatura crítica T_c em torno de 150 K, na qual o *exchange bias* apresenta um máximo. A anisotropia rotatória ao contrário cai exponencialmente no intervalo de temperatura investigado. Estes resultados indicam que existe uma forte correlação entre H_{EB} e H_{RA} para temperaturas abaixo de T_c . Também foi observado que a anisotropia rotatória diminui próximo de zero a temperatura ambiente, enquanto a anisotropia de *exchange bias* continua sendo um importante efeito observado a temperatura ambiente.

Outro importante resultado está relacionado com a estabilidade dos filmes policristalinos ferromagnéticos. Observamos que após vários ciclos de resfriamentos os filmes passaram a apresentar flutuações não reprodutíveis, o que nos levou a questionar a estabilidade dos filmes. Foi desenvolvido um protocolo de tratamentos térmicos com o objetivo de melhorar as propriedades magnéticas e a estabilidade desses filmes. Foi observado que em 300°C, durante vinte minutos, o filme de Py(10 nm) aumentou consideravelmente sua magnetização efetiva e anisotropia uniaxial, além de diminuir a relaxação de Gilbert, indicando maior cristalinidade da amostra. Como sugestão de trabalhos futuros é verificar a estabilidade térmica fazendo repetidos resfriamentos nos filmes tratados termicamente, tanto para o filme simples quanto para a bicamada.

Apêndice A

Temas Relacionados

A.1 Tabela de Conversão de Unidades

Neste trabalho são feitas medidas no sistema de medidas CGS. Na tabela A.1 são apresentados os valores de conversão de unidades para o sistema SI e para o sistema CGS.

Tabela A.1: Tabela de Conversão do sistema SI para o sistema CGS [9].

Quantidade	Símbolo	Unidades em SI	Unidades em CGS
Comprimento	x	10^{-2} m	1 cm
Massa	m	10^{-3} kg	1 g
Força	F	10^{-5} N	1 dyne
Energia	E	10^{-7} J	1 erg
Indução Magnética	B	10^{-4} T	1 G
Campo Magnético	H	$10^3/4\pi$ A/m	1 Oe
Momento Magnético	μ	10^{-3} J/T	1 erg/G
Magnetização	M	10^3 A/m	1 Oe
Susceptibilidade	χ	4π	1 emu/cm ³

A.2 Ressonância Remanescente de Borda da deposição oblíqua e a Importância da Preparação de Amostra

Durante a realização das medidas ficou evidente a necessidade de um protocolo de preparação das amostras. Absorções secundárias foram observadas juntamente com a FMR no plano do filme. Essas ressonâncias secundárias foram atribuídas a borda da

amostra.

As amostras de *Permalloy* deste trabalho foram produzidos por deposição oblíqua, com o objetivo de induzir a anisotropia uniaxial, já que o Permalloy é isotrópico (maiores detalhes a respeito de indução de anisotropia por deposição oblíqua são encontradas na referência [10]). Isso significa que além da produção do filme na superfície, deve haver deposição no plano lateral do substrato de silício. Esta deposição indesejada, será chamada aqui de Ressonância Remanescente de Borda, formando um segundo filme na mesma amostra, podendo ser observada no espectro da FMR como uma absorção secundária (ver Figura A.1)

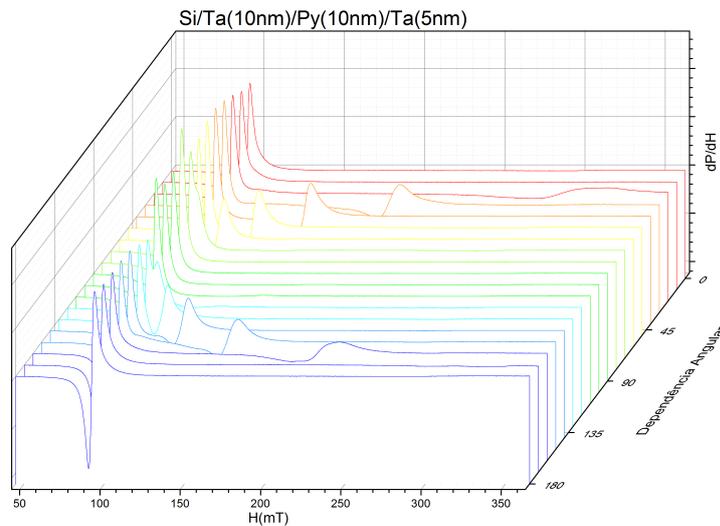


Figura A.1: Espectro de FMR de uma amostra com borda, com frequência de 9,22 GHz.

Para eliminar este efeito da medida será necessário um trabalho adicional de ajuste dos dados. Esse procedimento consiste em integrar todas as medidas e subtrair as linhas de base (ver Figura A.2a)). Logo depois ajustar numericamente a Lorentziana dos dois picos observados (ver Figura A.2b)) e finalmente deve-se *plotar* separadamente cada Lorentziana.

Neste caso foi plotada apenas a medida desta borda a fim de realçar o fenômeno (ver Figura A.3). É importante destacar que esse filme depositado na borda tem a espessura próxima ao filme de interesse e que sua magnetização também está presa no plano.

Essa segunda ressonância observada na figura A.3 varia fortemente durante a dependência angular. Isso se dá pela projeção do campo externo sobre o plano do filme ferromagnético secundário.

É interessante definir agora o campo magnético que o filme efetivamente sente H_p , como sendo

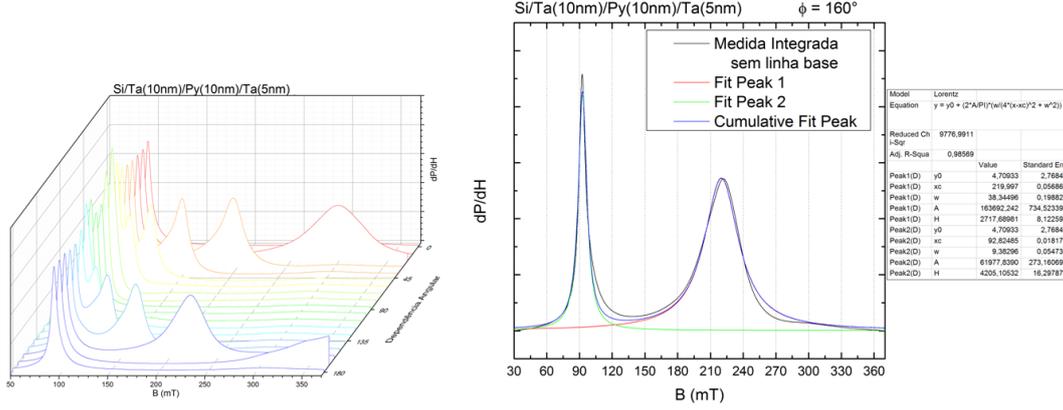


Figura A.2: Imagem da a) medida integrada e o b) ajuste numérico de cada Lorentziana da medida em 160° , com frequência de 9,22 GHz.

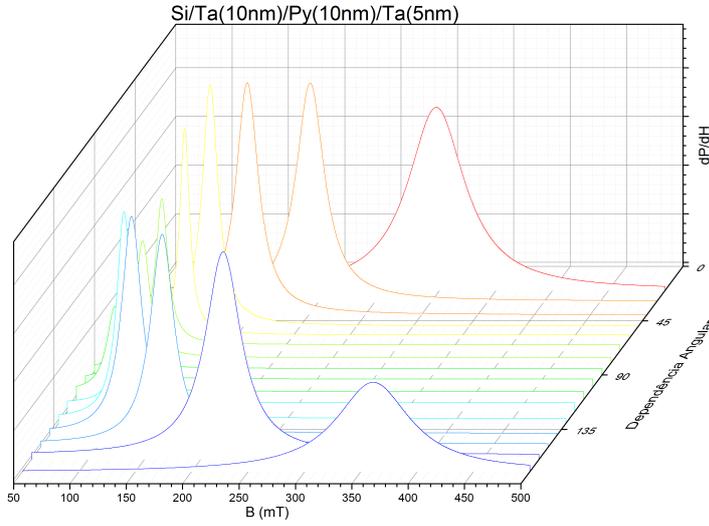


Figura A.3: Dependências angulares do ajuste numérico da Lorentziana da borda, com frequência de 9,22 GHz.

$$H_p = H \cos(\phi_p + \phi_0) \quad (\text{A.1})$$

onde ϕ_p é o ângulo entre o campo magnético externo H e o plano do filme remanescente e ϕ_0 uma fase que vai depender da posição inicial da borda.

Pode-se observar que em torno de 87° da Figura A.4 a ressonância remanescente inde-seja é de aproximadamente 86 Oe, e representa menor valor de H_r porque ele está alinhado na direção do campo magnético ($\cos\phi_p = 1$), a medida que se gira a amostra em torno da coordenada azimutal do plano da amostra a projeção do campo magnético começa a aumentar para $\cos\phi_p < 1$.

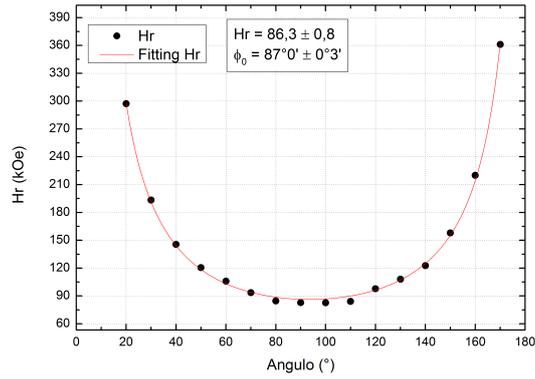


Figura A.4: Dependência angular do H_r , em função da coordenada azimutal da Borda.

Torna-se evidente a necessidade de preparar a amostra para a FMR. Essa preparação consiste em se cortar, de forma precisa, as quatro laterais das amostras. Para esse trabalho foi usado a Serra de Fio Well Walter Ebner CH2400, usando fio diamantado (ver Figura A.5) de 0,20 mm.

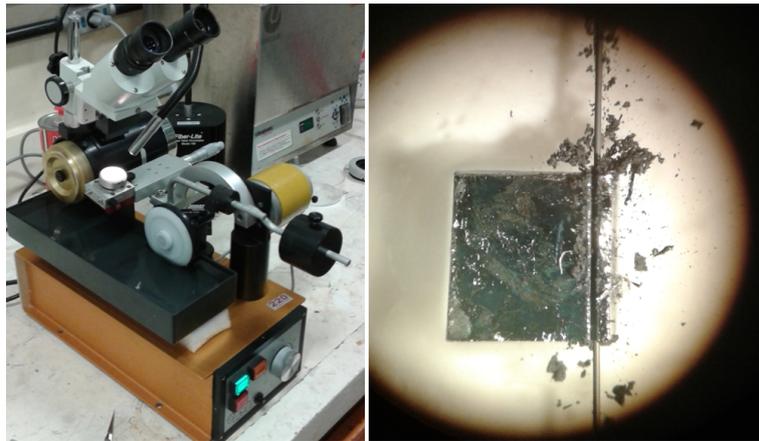


Figura A.5: Imagem da (a) Serra de Corte preciso usando (b) fio diamantado de espessura 0,20mm em processo de corte.

Referências Bibliográficas

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau e F. Petroff, *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2472 (1988).
- [2] A. Fert, P. Grünberg, A. Barthélémy, F. Petroff e W. Zinn, *J. Magn. Magn. Mater.*, **140 - 144**, 1 (1995).
- [3] A. E. Mahdi, L. Panina, D. Mapps, *Sens. Actuators, A*, **105**, 271 (2003).
- [4] Graham, D.L; Ferreira ,H.A., Freitas, P.P, Cabral, J.M.S. *Biosens. Bioelectron*,**18**, 483, 2003.
- [5] Li, G., et a. *Sens Actuators A Phys*, 126, 98, 2006.
- [6] Chang, C.S., Kostylev, M. e Ivanov,E. *Appl. Phys. Lett*, **102**, 142405 (2013).
- [7] T. E. P. Bueno, Estudo de Bicamadas FM/AF e válvulas de spin por ressonância ferromagnética. Tese de Doutorado, Departamento de Física-Universidade Federal de Minas Gerais, 2014.
- [8] Kleber Daum Machado, Teoria do Eletromagnetismo, Segunda Edição, volume 2, UEPG, Ponta Grossa, (2005).
- [9] M. Getzlaff, *Fundamentals of Magnetism*, Editora Springer-Verlag (2008).
- [10] J. B. S. Mendes, Investigação de relaxação e anisotropias magnéticas em filmes obliquamente depositados. Dissertação de mestredo, Departamento de Física - Universidade Federal de Pernambuco, 2009.
- [11] Z. Kakol, e J. M. Honig, *Phys. Rev. B* **40**, 9090 (1989).
- [12] Ü. Özgür, Y. Alivov, e H. Morkoç, *J. Mater. Sci: Mater Electron*, **20**, 789 (2009).
- [13] X. Chen, D. Parker, K. P. Ong, M.-H. Du e D. J. Singh, *Appl. Phys. Lett*, **102**, 102403 (2013).

- [14] B. D. Cullity e C. D. Grahamm, *Introduction to Magnetic Materials*, Editora IEEE Press (2009).
- [15] I. Barsukov, P. Landeros, R. Meckenstock, J. Lindner, D. Spoddig, Zi-An Li, B. Krumme, H. Wende, D. L. Mills, and M. Farle. *Phys. Rev. B* **85**, 014420 (2012).
- [16] X. Chen, Y. G. Ma e C. K. Ong, *J. Appl. Phys.*, **104**, 013921 (2008).
- [17] Y. G. Ma e C. K. Ong, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **40**, 3286 (2007).
- [18] N. D. Ha, M.-H. Phan, e C. O. Kim, *Nanotechnology*, **18**, 155705 (2007).
- [19] F. Xu, X. Chen, Y. Ma, N. N. Phuoc, X. Zhang e C. K. Ong, *J. Appl. Phys.*, **104**, 083915 (2008).
- [20] L. Xi, J. H. Du, J. J. Zhou, J. H. Ma, X. Y. Li, Z. Wang, Y. L. Zuo e D. S. Xue, *Thin Solid Films*, **520**, 5421 (2012).
- [21] N. N. Phuoc e C. K. Ong, *J. Appl. Phys.*, **113**, 203916 (2013).
- [22] N. N. Phuoc e C. K. Ong, *Appl. Phys. Lett.*, **102**, 212406 (2013).
- [23] Y.-H. Wang, C.-H. Lai, C.-. Chang, J.-S. Yang e C. K. Lo, *J. Appl. Phys.*, **89**, 6603 (2001).
- [24] V. A. Lukshina, B. K. Sokolov, N. V. Ershov, Yu. P. Chernenkov e V. I. Fedorov, *Phys. Sol. Stat*, **48**, 314 (2006).
- [25] S. Li, Z. Huang, J.-G. Duh e M. Yamaguchi, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 092501 (2008).
- [26] G. Knorr e R. W. Hoffman, *Phys. Rev.*, **113**, 1039 (1959).
- [27] D. O. Smith, *J. Appl. Phys.*, **30**, S264 (1959).
- [28] D. O. Smith, M. S. Cohen e G. P. Weiss, *J. Appl. Phys.*, **31**, 1755 (1960).
- [29] J.M. Alameda, F. Carmona, F.H. Salas, L.M. Alvarez-Prado, R. Morales e G.T. Pérez, *J. Magn. Magn. Mat.*, **153**, 249 (1996).
- [30] F. Liu, M. T. Umlor, L. Shen, J. Weston, W. Eads, J. A. Barnard e G. J. Mankey, *J. Appl. Phys.*, **85**, 5486 (1999).
- [31] F. Tang, D.-L. Liu, D.-X. Ye, Y.-P. Zhao, T.-M. Lu, G.-C. Wang e A. Vijayaraghavan, *J. Appl. Phys.*, **93**, 4194 (2003).

- [32] M. T. Umlor, *J. Appl. Phys.*, **87**, 082505 (2005).
- [33] Nguyen N. Phuoc, Feng Xu, e C. K. Ong, *J. Appl. Phys.*, **105**, 113926 (2009).
- [34] J. B. S. Mendes, L. H. Vilela-Leo, S. Rezende e A. Azevedo, *IEEE Trans. Magn.*, **45**, 2293 (2010).
- [35] C.-S. Chi, B.-Y. Wang, W.-F. Pong, T.-Y. Ho, C.-J. Tsai, F.-Y. Lo, M.-Y. Chern, e W.-C. Lin, *J. Appl. Phys.*, **111**, 123918 (2012).
- [36] G. Wang, C. Dong, W. Wang, Z. Wang, G. Chai, C. Jiang, e D. Xue, F.-Y. Lo, M.-Y. Chern, e W.-C. Lin, *J. Appl. Phys.*, **112**, 093907 (2012).
- [37] S. Komogortsev, S. Varnakov, S. Satsuk, I. Yakovlev, e S. Ovchinnikov, *J. Magn. Magn. Mat.*, **351**, 104 (2014).
- [38] N. Chowdhury e S. Bedanta, *AIP Adv.*, **4**, 027104 (2014).
- [39] K. Hara, K. Itoh, M. Kamiya, H. Fujiwara, K. Okamoto e T. Hashimoto, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33**, 3448 (1994).
- [40] Louis Néel *J. Phys. Radium*, **15**, 225 (1954).
- [41] H. J. G. Draaisma, F. J. A. den Broeder e W. J. M. de Jonge, *J. Magn. Magn. Mat.*, **66**, 351 (1987).
- [42] F. J. A. den Broeder, W. Hoving e P. J. H. Bloemen, *J. Magn. Magn. Mat.*, **93**, 562 (1991).
- [43] C. Kittel, *Phys. Rev.*, **73**, 155 (1948).
- [44] W. H. Meiklejohn e C. P. Bean, *Phys. Rev.*, **102**, 1413 (1956).
- [45] W. H. Meiklejohn, *J. Appl. Phys.* **33**, 1328 (1962).
- [46] L. Neel, *Comptes Rendus*, **255**, 1545 (1962).
- [47] D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus e E. Kay, *J. Appl. Phys.*, **62**, 3047 (1987).
- [48] J. Nogués, J. Sort, V. Langlais, V. Skumryev, S. Suriñach, J.S. Muñoz, M.D. Baró, *Phys. Rep.*, **422**, 65 (2005).
- [49] R. D. McMichael, M. D. Stiles, P. J. Chen e W. F. Egelhoff, *Phys. Rev. B*, **58**, 8605 (1998).

- [50] M. D. Stiles e R. D. McMichael, *Phys. Rev. B.*, **59**, 3722 (1999).
- [51] Abdulahad, F.B., Hung, D.S, Lee, S.F. [*J Mater. Res.* 29, 11 (2014)].
- [52] R. L. R. Suarez, Fenômenos magneto-eletrônicos em interfaces metálicas. Tese de doutorado, Departamento de Física-Universidade Federal de Pernambuco, 2006.
- [53] W. R. Groove, *Phil. Trans. Roy. Soc. London*, **142**, 87 (1852).
- [54] R. L. Comstock, *Introduction to Magnetism and Magnetic Recording*, Wiley, New York (1999).
- [55] I. L. C. Merino, Fenômenos de Exchange Bias e Exchange Spring em Tricamadas NiFe/IrMn/Co: A Influência da Textura Cristalográfica da camada IrMn. Tese de Doutorado, Departamento de Física - Universidade Federal do Espírito Santo, 2013.
- [56] J. C. Bilello, and S. M. Yalisove *Department of Materials Science and Engineering*, University of Michigan, 2300 Hayward Street, Ann Arbor, Michigan 48109-2136.
- [57] M.M., Hawkeye and M.J. Brett, *Journal of Vacuum*, 25, 1317 (2007).
- [58] Foner, S., *Versatile and sensitive vibrating-sample magnetometer*, *Review of Scientific Instruments*, 30 (2004).
- [59] E. R. Moog, C. Liu, S. D. Bader and J. Zak, *Phys. Rev. B* 39, 6949 (1989);
- [60] Y.-P. Fang, W. He, H.-L. Liu, Q.-F. Zhan, H.-F. Du, Q. Wu, H.-T. Yang, X.-Q. Zhang e Z.-H. Cheng, *Appl. Phys. Lett.*, **97**, 022507 (2010).
- [61] Kerr, J. *Phil. Mag.* 3, 321 (1877).
- [62] Kerr, J. *Phil. Mag.* 5, 161 (1878).
- [63] Smith, D. O. *Rev. Sci. Instrum.* **27** (261). doi:10.1063/1.1715538.(1956).
- [64] Gustavo Foscolo de Moura Gomes, Estudo *in-situ* de filmes ultrafinos de Fe₃O₄/Pd(100), Fe₃O₄/Ag(100) e -Fe₂O₃/Pd(111) por dicroísmo circular magnético de raios-X. Tese de Doutorado, Departamento de Física - Universidade Federal do Minas Gerais, 2015.
- [65] Gustavo Fóscolo de Moura Gomes, Estudo *in-situ* de filmes magnéticos ultrafinos por magnetometria Kerr e técnicas de superfície. Dissertação de Mestrado, Departamento de Física - Universidade Federal do Minas Gerais, 2009.
- [66] V. K. Arkadyev, *J. Russ. Phys. Chem. Soc.*, **44**, 165, (1912).

- [67] Gans R e Loyarte R. G., *Ann. Physik*, **64**, 209-249 e 250-252 (1921).
- [68] Ya. G. Dorfman, *Z. Physik* **17**, 98 (1923).
- [69] E. K. Zavoiskii, *J. Phys. USSR* **10**, 197 (1946).
- [70] J. H. E. Griffiths, *Nat.*, **158**, 670 (1946).
- [71] L. Landau e E. Lifshitz, *Phys. Z. Sowjetunion*, **8**, 153 (1935).
- [72] C. Kittel, *Phys. Rev.*, **70**, 281 (1947).
- [73] C. Kittel, *Phys. Rev.* **73** (1948).
- [74] M.C. Hickey e J.S. Moodera *Phys. Rev. Letters*, **102**, 137601 (2009).
- [75] R. Arias e D. L. Mills, *Phys. Rev. B*, **60**, 7395 (1999).
- [76] COEY, J.M.D. *Magnetism and Magnetic Materials* (2010).
- [77] L. F. Yin, D. H. Wei, L.H. Zhou, C. S. Tian, G. S. Dong, X. F. Jin, L. P. Guo, Q. J. Jia, R. Q. Wu, *Phys. Rev. Lett*, **97**, 067203 (2006).
- [78] Callen, H. B., *J. Phys. Chem. Solids*, **27**, 1271-1285 (1966).
- [79] Oak, W., Spring, S., e Callen, H. B., *J. Phys. Chem. Solids*, **16**, 310-328 (1960).
- [80] R.C. Oliveira , R.L. Rodríguez-Suarez, F.M. de Aguiar, S.M. Rezende, J.R. Fermin e A. Azevedo, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 272-276 (2004).
- [81] R. L. Rodríguez-Suárez, L. H. Vilela-Leão, T. Bueno, J. B. S. Mendes, P. Landeros, S. M. Rezende e A. Azevedo, *Appl. Phys. Lett.*, **100**, 242406 (2012).
- [82] Hou, C., Fujiwara, H., Zhang, K., Tanaka, A., Shimizu, Y. (2000). Temperature dependence of the exchange-bias field of ferromagnetic layers coupled with antiferromagnetic layers. *Physical Review B*, **63**, 1-6. <http://doi.org/10.1103/PhysRevB.63.024411>.
- [83] Ledue, D., Maitre, a., Barbe, F., Lechevallier, L. (2014). Temperature dependence of the exchange bias properties of ferromagnetic/antiferromagnetic polycrystalline bilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **372**, 134-140. <http://doi.org/10.1016/j.jmmm.2014.07.021>.