

UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO  
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS  
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

Isabel Liz Castro Merino

Fenômenos de *Exchange Bias* e *Exchange Spring* em Tricamadas *NiFe/IrMn/Co*: A  
Influência da Textura Cristalográfica da  
camada *IrMn*

VITÓRIA  
2013

ISABEL LIZ CASTRO MERINO

FENÔMENOS DE *Exchange Bias* E *Exchange Spring*  
EM TRICAMADAS *NiFe/IrMn/Co*: A INFLUÊNCIA DA  
TEXTURA CRISTALOGRÁFICA DA CAMADA *IrMn*

Apresentação de Tese ao Programa de Pós-Graduação em Física do Centro de Ciências Exatas da Universidade Federal do Espírito Santo, como requisito parcial para obtenção do Grau de Doutor em Física, na área de concentração de Física da Matéria Condensada.

Orientador: Prof. Dr. Edson Passamani Caetano.

Dados Internacionais de Catalogação-na-publicação (CIP)  
(Biblioteca Central da Universidade Federal do Espírito Santo, ES, Brasil)

---

M562f Merino, Isabel Liz Castro, 1976-  
Fenômenos de *exchange bias* e *exchange spring* em  
tricamadas NiFe/IrMn/Co : a influência da textura cristalográfica da  
camada IrMn / Isabel Liz Castro Merino. – 2013.  
189 f. : il.

Orientador: Edson Passamani Caetano.  
Coorientador: Valberto Pedruzzi Nascimento.  
Tese (Doutorado em Física) – Universidade Federal do  
Espírito Santo, Centro de Ciências Exatas.

1. Magnetismo. 2. Anisotropia. 3. Ressonância magnética. I.  
Caetano, Edson Passamani. II. Nascimento, Valberto Pedruzzi,  
1972-. III. Universidade Federal do Espírito Santo. Centro de  
Ciências Exatas. IV. Título.

CDU: 53

---



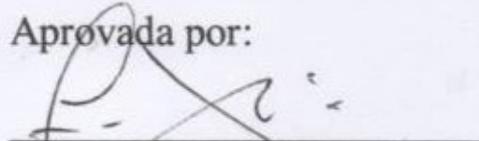
UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO  
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS  
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

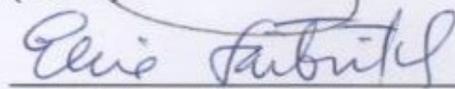
“Fenômenos de *Exchange Bias* e *Exchange Spring* em  
Tricamadas NiFe/IrMn/Co: A Influência da Textura  
Cristalográfica da camada IrMn”

ISABEL LIZ CASTRO MERINO

Tese submetida ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal do Espírito Santo como requisito parcial para a obtenção do título de Doutor em Física.

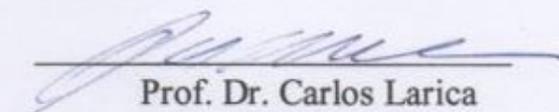
Aprovada por:

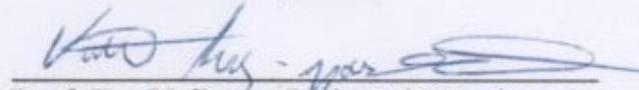
  
Prof. Dr. Flávio Garcia  
(CBPF)

  
Prof. Dr. Elisa Maria Baggio Saitovitch  
(CBPF)

  
Prof. Dr. Antonio Alberto Ribeiro Fernandes  
(UFES)

  
Prof. Dr. Edson Passamani Caetano  
(Orientador/UFES)

  
Prof. Dr. Carlos Larica  
(UFES)

  
Prof. Dr. Valberto Pedruzzi Nascimento  
(UFES)

Vitória-ES, 19 de julho de 2013.

# Agradecimentos

Agradeço primeiramente a Deus, por me conceder tudo nesta vida, principalmente pela força de vontade, persistência e entendimento que precise para terminar esta tese. Obrigada meu Senhor e te dedico todas minhas vitórias.

Agradeço a meus pais, Luz e Modesto, aos meus irmãos, Guadalupe, Carmen-*in memoriam*, Ricardo Alfredo e Jorge, às minhas sobrinhas Maryori e Ruthi, às minhas queridas Andreas, Sheyla, Blanca e Manchitas. Serei eternamente grata por todo amor, carinho, atenção, compreensão, por dar-me a coragem de prosseguir e pela confiança depositada em mim. Amo vocês.

Agradeço a meu prezado, Luis Ivan pela paciência, compreensão, por estar a meu lado mesmo estando longe. Obrigada por preencher a minha vida e fazê-la mais prazerosa.

Agradeço ao governo brasileiro por financiar esta pesquisa através das Bolsas de Estudos CAPES e CNPq/CLAF (Centro Latinoamericano de Física).

Ao meu orientador, Prof. Dr. Edson Passamani Caetano, pelo exemplo de pesquisador e administrador. Pelo apoio nas correções deste trabalho e pela oportunidade que me deu desde o mestrado e agora no doutorado de trabalhar com ele. Obrigada professor pela ajuda concedida em todo este tempo.

Ao meu co-orientador, Prof. Dr. Valberto Pedruzzi Nascimento, por ter apoiado nas longas noites de medidas de dados. O trabalho foi proposto por ele e a sua ajuda nas interpretações dos espectros e discussões foi de fundamental importância para a redação desta tese. Obrigada professor por tudo.

Agradeço ao Prof. Dr. Armando Takeuchi por ter-me transmitido valores como independência e iniciativa quando teve a oportunidade de trabalhar com ele, como também pela ajuda nas correções da tese. Ao Prof. Dr. Carlos Larica pela qualidade de pessoa, por dar-se tempo de revisar e corrigir esta tese. Ao Prof. Dr. Jorge Luis pela amizade e pela preocupação que demonstrou sempre por minha pessoa. Obrigado meu amigo Jorge!. Ao Prof. Dr. Alfredo Gonçalves da Cunha pela sua generosidade que mostrou sempre.

Agradeço ao Prof. Dr. Fernando Pelegrini pela sua hospitalidade durante a estada em Goiânia, pela oportunidade de realizar os experimentos de ressonância ferromagnética. Agradeço a Marcio e a Marcos por ter-me ajudado nas medidas de ressonância. Ao Prof.

Dr. Rogério Magalhães Paniago pela ajuda nas medidas de refletividade no LNLS, e ao pessoal do LNLS pelo apoio técnico e auxílio financeiro durante os experimentos.

Ao professor e amigo Dr. Jorge Espichan, pelo apoio durante o mestrado e no doutorado. Obrigada Jorge por tudo.

Ao secretário da Pós-Graduação em Física, José Carlos pela sua amizade, por ter sempre uma solução a cada problema e, pelos seus serviços prestados tornando minha documentação muito mais fácil. A minha amiga Barbara esposa e companheira de Zé.

Durante minha estada na Pós-Graduação da Física da UFES - LEMAG, tive a felicidade de integrar um ambiente sempre muito agradável e cooperativo que me proporcionou a oportunidade de fazer grandes amizades. Agradeço aos meus colegas e amigos pelos conselhos, companheirismo, pelas muitas risadas e entretenimento, Alisson, Alonso, André, Breno, Carlos Eduardo, César, Cleiton, Cristofher, David, Enrique, Evel, Gilmar, Gloria, Gustavo (Gu Gu), Hamilton, Jaime, Janaina, Jhone, Miguel, Paulo, Paulinho do Raios-X, Rafael, Rodrigo, Tales, Tiago, Victor, Zui. Muito obrigada de coração meus prezados amigos.

A meus amigos da Igreja de Cristo em Vitória Cleide, Edileusa, Edmar e família, Fabiana, Jeferson, Luiz Carlos, Pretinha, Renato, Viviane e em especial a minha prezada amiga Sinara, pela amizade, pelas orações e pelo carinho.

# Resumo

Apresenta-se, no presente trabalho, uma investigação sistemática, através da caracterização estrutural e magnética, da influência da textura cristalográfica sobre o efeito de *Exchange Spring* presente nas tricamadas NiFe/IrMn/Co depositadas, à temperatura ambiente, pelo método de *Magnetron Sputtering*. Usando a difração de Raios-X, demonstrou-se que as camadas de NiFe, IrMn e Co estão texturizadas com orientação [111]-fcc quando a deposição ocorre sobre a camada semente de Ta, não havendo constatação de outros tipos de orientações. Para as amostras crescidas sobre a camada semente de Cu, além da orientação majoritária [111]-fcc, orientações do tipo [200] e [220] encontram-se também presentes nos difratogramas das heteroestruturas NiFe/IrMn/Co. Deste modo, constata-se que o sistema com Ta possui um grau de textura [111] maior do que aquele do sistema com Cu. Da análise das curvas de difração de Raios-X em ângulos rasantes (refletividade) dos sistemas com Cu e Ta, verifica-se que o sistema com Cu possui uma elevada rugosidade na interface Si/Cu (2,8 nm), quando comparada com aquela da interface Si/Ta (0,2 nm) do sistema com Ta. A combinação das técnicas de magnetização DC e ressonância ferromagnética, à temperatura ambiente, nos proporcionou estudar a anisotropia magnética planar e os efeitos conjugados de *Exchange Bias* (acoplamento de troca unidirecional nas interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co) e *Exchange Spring* nas heteroestruturas NiFe/IrMn/Co. Os resultados de magnetização DC sugerem que o efeito de *Exchange Spring* existe mesmo antes da aplicação de um resfriamento com campo magnético (indução de anisotropia unidirecional). O fenômeno de *Exchange Spring* (consequentemente a estrutura de *spins* do IrMn) se mostrou fortemente dependente do grau de textura [111] da camada de IrMn que, por sua vez, é dependente da camada semente (Cu ou Ta) depositada sobre o substrato de Si(100). Verificou-se, a posteriori, que um campo magnético de resfriamento de 10 Oe (desde 400 K até 300 K) é

suficiente para estabelecer o efeito de *Exchange Bias* em ambas as interfaces (NiFe/IrMn e IrMn/Co). Observou-se que os maiores valores do campo de *Exchange Bias* ocorrem quando se estabiliza a estrutura  $L1_2$  do IrMn (intervalo 6-8 nm), a qual possui baixa tensão cristalográfica. Devido aos diferentes graus de textura (um efeito de rugosidade pode também estar presente), demonstra-se que o efeito de *Exchange Bias* da interface IrMn/Co é distinto para os sistemas com Ta e Cu. Para os sistemas com anisotropia unidirecional, comprovou-se que ao se aumentar a espessura da camada de IrMn (de 5 a 30 nm), o ângulo de acoplamento entre a camada de NiFe e a camada de Co aumentou no sistema com Cu e reduziu no sistema com Ta, apresentando comportamentos opostos. Explicaram-se estes resultados considerando: (i) diferentes anisotropias das camadas de Co e IrMn induzidas pelo grau de textura [111] e (ii) campos de *Exchange Bias* distintos nas interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co em ambos os sistemas. Comprovou-se que o ângulo de acoplamento encontra-se fortemente correlacionado com ambos os efeitos: *Exchange Bias* e *Exchange Spring*. Através de medidas de espalhamento magnético ressonante, constatou-se a presença de *spins* não-compensados reversíveis sob ação de campo magnético para ambos os sistemas com anisotropia unidirecional (efeito mais claro para o sistema com Cu). Além disso, através dos laços de histerese elemento seletivo obtidos por essa técnica, provou-se a presença do efeito de *Exchange Spring* no sistema com Cu, mesmo antes de se aplicar o resfriamento com campo magnético.

**Palavras-chave:** *Exchange Bias*, *Exchange Spring*, acoplamento magnético.

# Abstract

In the present work, a systematic investigation, through structural and magnetic characterizations, is discussed regarding the influence of the crystallographic texture on the Exchange Spring observed in the NiFe/IrMn/Co trilayer deposited at room temperature with Magnetron Sputtering technique. Using X-ray diffraction, it was shown that NiFe, IrMn and Co layers have texture oriented fcc [111], when Ta seed layer deposited, and there was no of other types of orientations. For samples grown on Cu seed layer, beyond majority [111]-fcc, types of [200] and [220] orientations are also present in the diffraction patterns of the NiFe/IrMn/Co heterostructures. From X-ray reflectivity, it was determined that the Cu-system has much high Si/Cu interface roughness (Si/Cu, rms = 2.8 nm) than that of Ta (Si/Ta, rms = 0.2 nm). Combining results from the combination of DC magnetization and ferromagnetic resonance techniques, performed at room temperature, it is provided a planar magnetic anisotropy and an understanding of the Exchange Bias (unidirectional exchange coupling at the NiFe/IrMn and IrMn/Co interfaces) and the Exchange Spring effects in NiFe/IrMn/Co heterostructures. DC magnetization data suggest that the Exchange Spring exists before the field cooling protocol (unidirectional anisotropy induction). The Exchange Spring phenomenon (consequently the IrMn spins structure) was shown to be strongly dependent on the degree of [111] texture in the IrMn layer, which is, in turn, dependent on the seed layer (Cu or Ta) deposited on Si(100) substrate. It has also been demonstrated, a posteriori, that a field cooling of 10 Oe is sufficient to set the Exchange Bias effect on both interfaces (NiFe/IrMn and IrMn/Co). In addition, it was observed that the highest Exchange Bias field occurs when an unstressed  $L1_2$  IrMn structure is stabilized at 6-8 nm IrMn thickness interval. Due to different degree of texture (interface roughness may also be present), it can be shown that exchange bias effect is distinct for Ta and Cu systems. For the systems where unidi-

rectional anisotropy is set, it has been demonstrated that for increasing IrMn thickness (from 5 up to 30 nm), the magnetic coupling angle between NiFe and Co magnetizations increases for the Cu-system, while it is reduced in the Ta-system. These results were explained considering: (i) the measured different anisotropies of the Co and IrMn layers induced by the [111] texture and (ii) distinct Exchange Bias field in NiFe/IrMn and IrMn/Co interfaces in both systems. It was shown that the coupling angle is strongly correlated by both Exchange Bias and Exchange Spring effects. Through resonant magnetic scattering measurements found a presence of reversible non-compensated under the action of magnetic field for both systems with unidirectional anisotropy (clearer effect for the Cu-system). Furthermore hysteresis loops through element selective obtained by this technique proved the presence of Exchange Spring effect in Cu system, even prior to applying cooling field.

**Keywords:** Exchange bias, Exchange Spring, magnetic coupling.

# Lista de Figuras

2.1	Estrutura da (a) Parede de Domínio de Bloch e (b) Parede de Domínio de Néel.	14
2.2	Representação da curva de magnetização em função do campo magnético para o Co hcp e fcc (a). Estruturas cristalinas do Co hcp (b) e fcc (c), indicando as direções do eixo fácil e difícil, onde $a$ e $c$ são os parâmetros de rede. . . . .	16
2.3	Diagrama esquemático apresentando as configurações interfaciais colineares de <i>spins</i> compensados e não-compensados na bicamada FM/AFM. . . . .	20
2.4	Diagrama esquemático de duas configurações de <i>spins</i> com acoplamento não-colineares (ângulo de $90^\circ$ ) em bicamadas FM/AFM. . . . .	21
2.5	Diagrama esquemático da configuração dos <i>spins</i> nas camadas FM e AFM ao longo do laço de histerese magnético (em diferentes estágios da magnetização) de um sistema com Polarização de Troca. . . . .	22
2.6	Modelo de Mauri e col. para a interface de um filme FM sobre um substrato AFM. A anisotropia uniaxial do AFM esta ao longo do eixo $z$ . A figura descreve a situação na qual um campo magnético externo é aplicado oposto a $z$ e o acoplamento de troca, através da interface com espessura $\xi$ é positivo. Os <i>spins</i> de uma única sub-rede do AFM são mostrados. . . . .	26
2.7	Acoplamento (a) Bilinear, quando o espaçador é não magnético e (b) Biquadrático, quando o espaçador tem ordenamento magnético. . . . .	31

2.8	Ilustração hipotética dos estados quase-antiferromagnéticos do modelo de Slonczewski para um espaçador de Cr ou Mn. . . . .	33
2.9	Diagrama esquemático da estrutura de <i>spins</i> em tricamadas NiFe/FeMn/Co (a) Para espessuras de FeMn $t_{AFM} > 9$ nm com $\theta = \pi$ entre as magnetizações de Co e Py, e (b) Para espessuras de FeMn $t_{AFM} < 9$ nm e $\theta < \pi$ . . . . .	36
2.10	(a) $H_{EB}$ e $H_C$ para amostras de IrMn com diferentes composições depositados por pulverização catódica a 250 W de potência RF, (b) Dependência do campo <i>pinning</i> versus temperatura do AFM. . . . .	39
2.11	Difratograma de Raios-X para a bicamada NiFe/IrMn para vários materiais de camada semente e duas sequências de empilhamento. . . . .	41
3.1	Esquema de uma fonte <i>magnetron sputtering</i> , onde destacam-se o alvo do material do qual se deseja formar o filme, o substrato e seu sistema de refrigeração, átomos iniciando a deposição, e os ímãs permanentes que colimam o feixe de íons responsáveis pelo <i>sputtering</i> do alvo. . . . .	46
3.2	Equipamento <i>Magnetron Sputtering</i> instalado no LEMAG. . . . .	48
3.3	Representação esquemática do <i>Magnetron Sputtering</i> instalado no LEMAG. . . . .	50
3.4	Imagem do interior da câmara principal, onde observar-se a disposição dos 7 alvos e da célula de evaporação térmica. . . . .	51
3.5	Refletividade de Raios-X do filme de IrMn depositado em substrato de Si(100) por <i>Magnetron Sputtering</i> . Os números 1-6 indicam os pontos usados para o cálculo da espessura final depositada. . . . .	56
3.6	Representação esquemática das etapas de deposição dos filmes, onde X= Cu ou Ta são as camadas semente e protetora. . . . .	57
3.7	Geometrias disponíveis no Difratômetro RIGAKU, <i>Bragg Brentano</i> e <i>Parallel Beam</i> instalado no LEMAG/UFES. . . . .	59

3.8	Difratômetro RIGAKU; sistema usado para medidas de Raios-X em filmes. . . . .	60
3.9	Fotos e diagramas esquemáticos do sistema PPMS instalado no LEMAG, contendo a opção VSM. . . . .	63
3.10	Esboço da precessão uniforme da $\mathbf{M}$ sobre o campo magnético externo $H_0$ . . . . .	65
3.11	Orientação do campo magnético $H_0$ e da magnetização $\mathbf{M}$ com respeito ao sistema de coordenadas, onde o filme está no plano $xy$ . Com (a) $H_0$ fora do plano do filme e (b) $H_0$ no plano do filme. . . . .	66
3.12	(a) Representação esquemática da montagem experimental para as medidas de FMR instalado LRM/UFG, (b) Foto do equipamento. . . . .	71
3.13	(a) A razão de assimetria da modulação química do pico de difração na vizinhança das bordas $L_3$ e $L_2$ para uma multicamada de Ag/Ni. Realizou-se o experimento de difração na geometria vertical usando feixe de polarização circular. A curva tracejada é uma simulação assumindo lorentzianas para ressonância magnética, enquanto a curva sólida calcula-se do ajuste dos fatores de estrutura magnéticos $M_r$ e $M_i$ , (b) Observa-se a parte imaginária dos espectros XRMS (círculos abertos) e MCD (linha solida) para o Ni em unidades de elétron. . . . .	76
3.14	Representação do modelo de dois passos contendo somente (a) Momento de <i>spin</i> , (b) Momento orbital. . . . .	81
3.15	(a) Espectros de absorção de Raios-X para a magnetização na direção paralela e antiparalela com respeito ao vetor do fóton incidente e (b) Espectro de XMCD nas bordas $L_{2,3}$ do <i>Co-bulk</i> . . . . .	82
3.16	Laços de histerese magnéticos de elementos específicos Fe e Co (lado-esquerdo) e aqueles obtidos por VSM (lado direito-superior) para a tricamada Fe/Cu/Co. . . . .	84
3.17	(a) Representação esquemática da montagem experimental para as medidas de XRMS, (b) Foto do equipamento. . . . .	85

- 4.1 Difratogramas convencionais de Raios-X extraídos à temperatura ambiente para a Série-A com  $t_{IrMn} = 4, 6, 8, 12$  e  $15$  nm. Multiplicaram-se os difratogramas por um fator 20, para que a escala seja similar para ambas as Séries A e B. Figura inserida corresponde a uma amplificação maior do que 20 para a região angular de  $40^\circ$  até  $52^\circ$ . . . . . 91
- 4.2 Difratogramas convencionais de Raios-X extraídos à temperatura ambiente para a Série-B com  $t_{IrMn} = 4, 6, 8, 12, 15, 18, 20, 24$  e  $30$  nm. Ao lado mostram-se duas ampliações, para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 12$  nm e para  $t_{IrMn}^{Ta} = 18$  nm (padrão de difração multiplicado pelo fator 5). . . . . 93
- 4.3 Curvas de refletividades das tricamadas  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  nm e  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm (em linha preta) e os ajustes teóricos obtidos com o programa WINGIXA dispostos em cinza. . . . . 95
- 4.4 Curvas de *Rocking* para as amostras  $t_{IrMn}^{Cu}$  e  $t_{IrMn}^{Ta}$  com  $t_{IrMn} = 12$  nm para a reflexão [111] do IrMn. . . . . 97
- 4.5 Laços de histereses normalizados  $M(H)$  para a amostra (a)  $t_{IrMn}^{Cu} = 5$  nm da Série-A com  $H_{FC} = 10$  Oe (●) e  $H_{FC} = 500$  Oe (○), e para a amostra (b)  $t_{IrMn}^{Ta} = 6$  nm da Série-B medidas com campo de resfriamento de  $H_{FC} = 10$  Oe (●) e  $H_{FC} = -10$  Oe (○) (b). . . . . 101
- 4.6 Laços de histereses normalizados tomados à temperatura ambiente para as amostras (a)  $t_{IrMn}^{Cu} = 6$  nm e (b)  $t_{IrMn}^{Ta} = 8$  nm após ser resfriadas com  $H_{FC} = 10$  Oe (Protocolo 2). O  $H_{FC}$  para cada laço está a  $0^\circ, 45^\circ, 70^\circ$  e  $90^\circ$  com relação à direção [110] do substrato de Si. . . . . 102
- 4.7 Representação esquemática da posição das amostras na haste do VSM em relação à direção do campo magnético. Mede-se, com transferidor, o ângulo  $\theta$  entre a direção [110] do Si e o campo aplicado. Usou-se os seguintes valores para  $\theta = 0^\circ, 45^\circ, 70^\circ$  e  $90^\circ$ . . . . . 104

- 4.8 Laços de histereses normalizados da Série-A obtidos pelo Protocolo 1 (○) e Protocolo 2 (●) com campo  $H_{FC} = 10$  Oe para as amostras com espessura  $t_{IrMn} = 5, 6, 7, 8, 12$  e  $15$  nm. O campo magnético é paralelo à direção [110] do substrato de Si. As linhas são guias aos olhos e normalizaram-se as escalas em todos os gráficos tomando o valor máximo da magnetização em cada caso. . . . . 105
- 4.9 Laços de histereses normalizados da Série-B obtidos no Protocolo 1 (○) e no Protocolo 2 (●). Obtiveram-se estes laços com o campo aplicado fazendo um ângulo de  $70^\circ$  com relação a direção [110] do Si. Usaram-se as seguintes espessuras de IrMn para a Série-B  $t_{IrMn} = 6, 8, 12, 15, 18, 20, 24$  e  $30$  nm. As linhas são guias aos olhos e as escalas em todos os gráficos encontram-se normalizadas aos máximos valores de magnetização experimentalmente obtidos. . . . . 108
- 4.10 Comportamentos dos campos  $H_{EB}$  e  $H_C$  em função da espessura do espaçador ativo  $t_{IrMn}$ , obtidos das curvas  $M(H)$  com campo magnético aplicado paralelo ao plano do filme para as Séries-A e B. Os símbolos (●) referem-se aos valores obtidos da contribuição da camada de Co e (○) correspondem aos valores relativos a contribuição da camada de NiFe. As linhas sólidas servem de guias para os olhos. . . . . 110
- 4.11 Espectros de FMR tomados à temperatura ambiente para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm em diferentes ângulos entre o campo magnético estático aplicado paralelo ao plano do filme. . . . . 118
- 4.12 Varredura angular planar dos modos de ressonância do Co (círculos pretos) e NiFe (círculos cinza), obtida dos espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 7$  nm, tomados à temperatura ambiente. . . . . 119
- 4.13 Comportamento do  $H_{res}(\Psi_H)$  dos modos de ressonância de NiFe (círculos cinza) e Co(círculos pretos), para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Apresentam-se também os valores dos campos  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$ . . . . . 119
- 4.14 Ângulo de acoplamento entre as direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co como função de  $t_{IrMn}$  para a Série-A. . . . . 120

- 4.15 Espectros de FMR medidos à temperatura ambiente para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm para a configuração no plano do filme a diferentes ângulos. O *modo-s* refere-se ao modo não alinhado, que associa-se sua origem a formação de domínios na camada de NiFe. . . . . 121
- 4.16 Dependência angular de  $H_{res}(\Psi_H)$  para a tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm. Define-se  $\Delta\Psi$  como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co é  $160^\circ$ . Apresentam-se também os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  estimados por FMR. . . . . 122
- 4.17 Dependência angular do campo de ressonância ( $H_{res}(\Psi_H)$ ) para o modo não-alinhado (*modo - s*) presente na tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm. A linha tracejada serve de guia para os olhos. . . . . 123
- 4.18 Ângulo de acoplamento magnético ( $\Delta\Psi$ ) entre as direções das magnetizações do NiFe e Co como uma função da espessura da camada de IrMn ( $t_{IrMn}$ ) para as amostras da Série-B. A linha tracejada serve de guia para os olhos. . . . . 124
- 4.19 Espectros de FMR para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm obtidos à temperatura ambiente para vários ângulos na configuração varredura fora do plano (campo externo  $H_0$  em relação ao plano do filme). . . . . 125
- 4.20 Dependência angular do campo de ressonância  $H_{res}$  dos modos de Co e NiFe na tricamada  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Os  $\bullet$  representam os dados experimentais e a linha um auxílio visual. . . . . 126
- 4.21 Dependência angular da largura de linha  $\Delta H$  dos modos de ressonância do Co e do NiFe na tricamada  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Os círculos pretos representam os dados experimentais da camada de Co e os círculos cinza da camada de NiFe. As linhas sólidas servem de guias para os olhos. . . . . 126
- 4.22 Espectros de FMR, tomadas à temperatura ambiente para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm para diferentes ângulos entre o campo magnético e o plano do filme. As setas indicam as posições  $90^\circ$ ,  $26^\circ$ ,  $6^\circ$ ,  $3^\circ$  e  $0^\circ$ . . . . . 128

- 4.23 Espectros de FMR para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 24$  nm em pequenas variações angulares próximo da configuração em que  $H_0$  é perpendicular ao plano do filme. 129
- 4.24 Dependência angular do  $H_{res}$  na configuração fora do plano para os modos uniformes do Co (círculos pretos) e do NiFe (círculos cinza) da tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm. As linhas sólidas servem de guias para os olhos. . . . . 130
- 4.25 Dependência angular da largura de linha  $\Delta H$  para a tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm na configuração fora do plano do filme. Os círculos pretos e cinza representam os dados experimentais dos modos uniformes e as linhas conectando os pontos experimentais servem de auxílio visual. . . . . 130
- 4.26 Medidas de refletividades magnéticas em função do ângulo (a-c), em função da energia (d) e, laços de histerese magnética (e) obtidos à temperatura ambiente, próximas as bordas de absorção  $L_3$  dos elementos Ni, Fe e Co para a amostra no estado como depositada  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Para efeito de comparação, adicionou-se em (e) o laço tomado pela técnica de VSM. . . . . 134
- 4.27 Medidas de refletividade magnéticas em função do ângulo (a-c), em função da energia (d) e, laços de histerese (e), obtidos à temperatura ambiente, próximas as bordas de absorção  $L_3$  dos elementos Ni, Fe e Co com a técnica XRMS para a amostra no estado como depositada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm. Para efeito de comparação, adicionou-se em (e) o laço tomado pela técnica de VSM. . . . . 135
- 4.28 Curvas de refletividade magnética obtidas próximas as bordas  $L_3$  de absorção do Fe(a), Co(b) e Mn(c). Curvas de refletividade em função da energia próxima as bordas do Co(d) e Mn(e). Laços de histerese magnéticos tomados próximos às bordas do Fe, Co e Mn (f). Obtiveram-se todas estas medidas à temperatura ambiente utilizando a técnica XRMS para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Para efeito de comparação, adicionou-se em (f) o laço tomado pela técnica de VSM. 138

4.29	Curvas de refletividade magnética obtidas próximas as bordas $L_3$ de absorção do Ni(a), Fe(b), Co(c) e Mn(d). Curva de refletividade em função da energia próxima à borda do Co(e). Laços de histerese magnéticos tomados próximos às bordas do Fe, Co e Mn (f). Obtiveram-se todas estas medidas à temperatura ambiente utilizando a técnica XRMS para a amostra $t_{IrMn}^{Ta} = 15$ nm. Para efeito de comparação, adicionou-se em (f) o laço tomado pela técnica de VSM.	140
A.1	Laços de histereses normalizados tomados à temperatura ambiente para as amostras com espessuras $t_{IrMn}^{Ta} = 12$ e $15$ nm após ser resfriados com $H_{FC} = 10$ Oe. O $H_{FC}$ para cada laço está a $0^\circ$ , $45^\circ$ , $70^\circ$ e $90^\circ$ com relação à direção $[110]$ do substrato de Si.	158
B.1	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Cu} = 3$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.	159
B.2	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Cu} = 5$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.	160
B.3	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Cu} = 6$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.	160
B.4	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Cu} = 7$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.	160
B.5	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Cu} = 8$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.	161

B.6	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Cu}=12$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme. . . . .	161
B.7	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Ta}=4$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme. . . . .	162
B.8	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Ta}=6$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme. . . . .	162
B.9	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Ta}=8$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme. . . . .	163
B.10	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Ta}=18$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme. . . . .	163
B.11	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Ta}=20$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme. . . . .	163
B.12	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Ta}=24$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme. . . . .	164
B.13	Espectros de FMR da amostra $t_{IrMn}^{Ta}=30$ nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme. . . . .	164

B.14 Dependência angular de $H_{res}(\Psi_H)$ para a tricamada $t_{IrMn}^{Cu}=5$ nm. Define-se $\Delta\Psi$ como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de $H_{EB}^{NiFe}$ e $H_{EB}^{Co}$ estimados por FMR. . . . .	165
B.15 Dependência angular de $H_{res}(\Psi_H)$ para a tricamada $t_{IrMn}^{Cu}=6$ nm. Define-se $\Delta\Psi$ como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de $H_{EB}^{NiFe}$ e $H_{EB}^{Co}$ estimados por FMR. . . . .	165
B.16 Dependência angular de $H_{res}(\Psi_H)$ para a tricamada $t_{IrMn}^{Cu}=12$ nm. Define-se $\Delta\Psi$ como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de $H_{EB}^{NiFe}$ e $H_{EB}^{Co}$ estimados por FMR. . . . .	166
B.17 Dependência angular de $H_{res}(\Psi_H)$ para a tricamada $t_{IrMn}^{Ta}=6$ nm. Define-se $\Delta\Psi$ como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de $H_{EB}^{NiFe}$ e $H_{EB}^{Co}$ estimados por FMR. . . . .	166
B.18 Dependência angular de $H_{res}(\Psi_H)$ para a tricamada $t_{IrMn}^{Ta}=8$ nm. Define-se $\Delta\Psi$ como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de $H_{EB}^{NiFe}$ e $H_{EB}^{Co}$ estimados por FMR. . . . .	167
B.19 Dependência angular de $H_{res}(\Psi_H)$ para a tricamada $t_{IrMn}^{Ta}=24$ nm. Define-se $\Delta\Psi$ como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de $H_{EB}^{NiFe}$ e $H_{EB}^{Co}$ estimados por FMR. . . . .	167
B.20 Dependência angular de $H_{res}(\Psi_H)$ para a tricamada $t_{IrMn}^{Ta}=30$ nm. Define-se $\Delta\Psi$ como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de $H_{EB}^{NiFe}$ e $H_{EB}^{Co}$ estimados por FMR. . . . .	167

# Lista de Tabelas

3.1	Taxas de deposição dos alvos utilizadas na preparação dos filmes . . . . .	56
3.2	Características e definições das tricamadas preparadas por <i>magnetron sputtering</i> DC para esta tese. . . . .	58
3.3	Parâmetros utilizados durante a deposição dos filmes das séries A e B. . .	58
4.1	Valores dos parâmetro de rede $a$ e do tamanho de grão $L$ obtidos dos difratogramas relativo ao pico [111] do IrMn nas amostras da Série-A, com espessuras $t_{IrMn}$ indicadas. . . . .	92
4.2	Valores dos parâmetro de rede $a$ e do tamanho de grão $L$ obtidos de ajustes dos difratogramas de raios-X da Série-B relativo a camada de IrMn texturizada [111]. . . . .	94
4.3	Valores teóricos das espessuras e as rugosidades interfaciais das tricamadas X( $t_X=10$ nm)/NiFe( $t_{NiFe}=20$ nm)/IrMn( $t_{IrMn}$ )/Co( $t_{Co}=10$ nm)/X( $t_X=10$ nm), onde X é o Cu ou Ta. Dados obtidos pelos ajustes das curvas de refletividade utilizando o WINGIXA. . . . .	96
4.4	Valores das constantes de anisotropias magnéticas efetivas ( $K_{eff}$ ) e campos de anisotropias efetivas ( $4\pi M_{eff}$ ) para algumas amostras da Série-A .	127
4.5	Valores das constantes de anisotropias magnéticas efetivas ( $K_{eff}$ ) e campos de anisotropias efetivas ( $4\pi M_{eff}$ ) para algumas amostras da Série-B.	129

# Sumário

<b>1</b>	<b>Introdução</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Aspectos Gerais</b>	<b>7</b>
2.1	Filmes Finos . . . . .	7
2.2	Multicamadas Magnéticas . . . . .	9
2.3	Domínios Magnéticos . . . . .	12
2.4	Anisotropia em sistemas magnéticos . . . . .	15
2.5	<i>Exchange Bias</i> . . . . .	19
2.5.1	Modelo de Mauri . . . . .	26
2.6	Acoplamento magnético entre camadas FM's mediadas por uma camada AFM . . . . .	28
2.6.1	Acoplamento Bilinear . . . . .	30
2.6.2	Acoplamento Biquadrático . . . . .	31
2.7	<i>Exchange Spring</i> . . . . .	34
2.8	Propriedades Gerais do sistema Si(100)/ <i>buffer</i> / Ni <sub>81</sub> Fe <sub>19</sub> /Ir <sub>20</sub> Mn <sub>80</sub> /Co/ <i>capping layer</i> . . . . .	36
2.9	Comportamento magnético das interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co . . . . .	40
<b>3</b>	<b>Técnicas de Preparação e Caracterização</b>	<b>44</b>
3.1	Técnica de Deposição por <i>Magnetron Sputtering</i> . . . . .	44
3.1.1	Equipamento <i>Magnetron Sputtering</i> instalado no LEMAG . . . . .	48
3.2	Detalhes da preparação e deposição das amostras por <i>Magnetron Sputtering</i>	52
3.2.1	Amostras preparadas . . . . .	57
3.3	Caracterização Estrutural dos filmes . . . . .	58
3.3.1	Difração de Raios-X . . . . .	58
3.4	Caracterização Magnética dos filmes . . . . .	62
3.4.1	Magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM) . . . . .	62
3.4.2	Ressonância Ferromagnética (FMR) . . . . .	63
3.4.3	Espalhamento magnético Ressonante de Raios-X (XRMS) . . . . .	71

<b>4</b>	<b>Resultados Experimentais e Discussões</b>	<b>88</b>
4.1	Caracterização Estrutural por Difração de Raios-X . . . . .	88
4.1.1	Difração de Raios-X convencional para a Série-A . . . . .	90
4.1.2	Difração de Raios-X convencional para a Série-B . . . . .	92
4.1.3	Difração de Raios-X a ângulos rasantes . . . . .	95
4.1.4	Medidas de curvas de <i>Rocking</i> . . . . .	96
4.2	Caracterização Magnética . . . . .	99
4.2.1	Curvas de $M(H)$ obtidas por Magnetometria . . . . .	99
4.2.2	Resultados de curvas $M(H)$ usando os Protocolos 1 e 2 para a Série-A . . . . .	104
4.2.3	Resultados de curvas $M(H)$ usando os Protocolos 1 e 2 para a Série-B . . . . .	107
4.2.4	<b>Dependência do <math>H_{EB}</math> e <math>H_C</math> com a espessura <math>t_{IrMn}</math></b> . . . . .	109
4.3	Medidas de Ressonância Ferromagnética . . . . .	115
4.3.1	Espectros de FMR - Variação angular no plano do filme paralelo ao campo magnético . . . . .	117
4.3.2	Espectros de FMR - Variação angular fora do plano do filme . . . . .	124
4.4	Medidas de Espalhamento Magnético Ressonante de Raios-X . . . . .	132
<b>5</b>	<b>Conclusão</b>	<b>141</b>
	<b>Referências</b>	<b>144</b>
	<b>Apêndice</b>	<b>158</b>
<b>A</b>	<b>Medidas de Magnetização</b>	<b>158</b>
<b>B</b>	<b>Medidas de Ressonância Ferromagnética</b>	<b>159</b>

# Capítulo 1

## Introdução

A evolução rápida de sensores e memórias magnéticas em materiais em forma de filmes finos, durante as duas últimas décadas, tem não só levado a um crescimento explosivo da literatura sobre o estudo das propriedades magnéticas destes sistemas, mas também a um desenvolvimento semelhante de estudos do crescimento destes filmes. Assim, houve como consequência uma melhoria no aumento do número de técnicas experimentais para o estudo do crescimento de filmes finos. Por exemplo, sabe-se que as propriedades magnéticas dos filmes dependem fortemente da espessura e da estrutura cristalina do filme, que são, em grande parte, determinadas pelo crescimento das camadas que os compõem [1].

Então, propriedades físicas não observadas experimentalmente em materiais massivos (volumétricos = *bulk*) têm sido medidas em filmes finos sob a forma de multicamadas (empilhamentos alternados de diferentes materiais com espessuras individuais da ordem de nanômetros =  $10^{-9}$  m) [2–6]. Dentre estas propriedades físicas, que basicamente são governadas por efeitos de superfícies/interfaces, destacam-se àquelas no campo do magneto-transporte (magnetismo + transporte), que vêm determinando, aplicações práticas crescentes desses materiais em vários dispositivos eletrônicos. Especificamente, destacam-se os fenômenos de (i) acoplamento magnético de troca entre camadas magnéticas separadas por camadas ou ordenadas (fase antiferromagnética) ou não ordenadas magneticamente (fase paramagnética) [3], (ii) magnetorresistência gigante (GMR) [2], (iii) *Exchange Bias* (EB) [7–15], (iv) válvulas de *spins* (combinação dos efeitos de EB

+ GMR) [6, 16] e também (v) efeitos intrínsecos da região de interface, a energia de anisotropia magnética, etc. [17, 18]. Com isto, nas últimas quatro décadas, a comunidade científica vem buscando desenvolver e caracterizar materiais que apresentem efeitos de GMR e EB e outras combinações (sistemas híbridos), pois estes podem gerar novos dispositivos eletroeletrônico, óptico-eletrônico, *spin*-eletrônico, etc. [19].

Este empenho da comunidade científica resultou no desenvolvimento e estudo de uma grande variedade de novos sistemas (novos materiais), com estruturas cristalinas artificiais e propriedades magnéticas cada vez mais complexas, onde novos fenômenos começaram a ser observados [20–22]. Dentre estes fenômenos recentemente discutidos na literatura [23], cita-se o *Exchange Spring* ("mola magnética"), que se baseia no efeito de EB e na influência do campo magnético aplicado, girando os *spins* do FM e produzindo modificações na estrutura de *spins* da fase AFM de um sistema de bicamada ferromagneto (FM)/antiferromagneto (AFM). Ressalta-se aqui que embora muitos destes fenômenos já tenham sido aproveitados nas tecnologias atuais (ex: fenômeno de EB), seus fundamentos físicos ainda estão sendo investigados, pois não há o entendimento completo das origens dos efeitos dos arranjos atômicos nas interfaces, da influência do tamanho de grão cristalino, da textura cristalina, entre outros.

Especificamente falando, o EB é um efeito que surge da interação interfacial entre os *spins* de materiais FM e AFM, mas as configurações atômicas e de *spins* não são totalmente compreendidas e tem intrigado aos pesquisadores há mais de 50 anos. Observa-se este fenômeno tomando o caso de um sistema composto por duas fases magnéticas FM/AFM em forma de bicamada, comparando a influência dos processos de medidas em campos nulo e não-nulos de resfriamentos (medidas abaixo das temperaturas de ordens das fases FM e AFM). Tomando, primeiramente o caso de resfriamento em campo nulo (*Zero-Field Cooling* - ZFC), espera-se uma magnetização líquida proveniente da fase FM. Conseqüentemente, o laço de histerese  $M(H)$  é o de um ferromagneto isolado, ou seja, um laço centrado na origem, com  $M(H) = -M(-H)$  (onde  $M$  é a magnetização e  $H$  o campo magnético aplicado), satisfazendo a simetria de reversão. No caso das medidas em processo de resfriamento com campo (*Field-Cooling* - FC) e sob certas condições experi-

mentais, na junção FM/AFM induz-se uma anisotropia unidirecional pela interação entre os *spins* do FM e os *spins* do AFM. No processo de resfriamento com campo: esfria-se a bicamada FM/AFM desde uma temperatura  $T < T_C$  até uma temperatura  $T < T_N$ , considerando  $T_C > T_N$  ( $T_N$  é a temperatura de Néel do AFM e  $T_C$  é a temperatura de Curie do FM). Então, em geral, este processo induz uma interação unidirecional na interface FM/AFM e que se mede experimentalmente pelo deslocamento do laço de histerese ao longo do eixo do campo magnético. Particularmente, no caso dos filmes finos em forma de multicamadas, induz-se a anisotropia unidirecional também durante a deposição das camadas FM e AFM na presença de um campo magnético aplicado [10, 24]. Este efeito (denominado de *Exchange Bias* ou Polarização de Troca) foi primeiramente observado por Meiklejohn e Bean [7–9] ao estudar sistemas de nanopartículas de Co com superfícies oxidadas. Hoje em dia, o efeito de EB é encontrado em outros tipos de sistemas com interfaces FM/AFM, tais como: materiais inomogêneos, filmes FM em monocristais AFM e filmes finos em forma de multicamadas, nanoestruturas, sistemas FM/*spin glass*, entre outros [25].

Com base nas observações experimentais de EB, seguiram-se alguns modelos teóricos [26, 27] em um sistema com acoplamento de troca FM/AFM. Quando a anisotropia magnética da camada FM é suficientemente forte, pode provocar a formação de uma parede de domínio magnético planar dentro da camada AFM, quando os *spins* da camada FM são rodados sob a ação de um campo magnético aplicado. Nesta condição, o sistema funciona como uma mola magnética composta pelo acoplamento de materiais magnéticos mole e duro [28, 29]. No sistema de tricamadas do tipo FM<sub>1</sub>/AFM/FM<sub>2</sub>, tal como NiFe/FeMn/Co [30], resultados experimentais sugerem que o acoplamento entre as camadas magnéticas favorece a uma estrutura de *spin* em espiral (parede de domínio) no interior da camada espaçadora antiferromagnética FeMn; define-se tal acoplamento como *Exchange Spring* (ES). Após de um processo de resfriamento, observam-se os laços de histerese magnético das camadas de NiFe e Co em duas regiões bem separadas na curva  $M(H)$  (um laço no primeiro e o outro no terceiro quadrante, respectivamente) para o caso em que a espessura da camada FeMn seja superior a 9 nm. O ângulo de acoplamento  $\Delta\Psi$  entre as camadas ( $\Delta\Psi$ , ângulo medido entre as direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co) varia de 90°-180° quando as espessuras da camada

FeMn ( $t_{FeMn}$ ) aumenta de 5 até 9 nm. Para  $9 \text{ nm} \leq t_{FeMn} \leq 15 \text{ nm}$ , os valores de  $\Delta\Psi$  situam-se em torno de  $180^\circ$  [30]. Conseqüentemente, vários sistemas protótipos compostos basicamente por configurações do tipo FM/AFM e FM/AFM/FM têm sido produzidos, investigados e reportados na literatura para investigar o mecanismo responsável pelo acoplamento ES [23, 31, 32]. Assim como as estruturas cristalina das fases, seus tamanhos de grãos, estruturas de *spins*, orientação cristalográfica, rugosidade interfacial neste sistemas influenciam diretamente nas propriedades magnéticas observadas [30]. Estes fatores também governam as propriedades relacionadas ao fenômeno de ES, já que o mesmo está associado ao efeito de EB. Particularmente, sabe-se que a textura cristalina desempenha um papel importante no efeito de EB [33–35]. Porém, ressalta-se que em tricamadas do tipo  $FM_1/AFM/FM_2$ , onde o fenômeno de ES pode ser encontrado, a influência da textura cristalina, não foi reportada na literatura, exceto pelo trabalho científico que deu origem a esta tese de doutorado [34].

A seguir, discutem-se alguns resultados importantes reportados na literatura sobre efeito de textura cristalina, por exemplo, em sistemas com EB. No sistema vidro/Ta/NiFe/IrMn/Ta [33], a textura [111] faz aumentar a constante de anisotropia da camada de IrMn, o que afeta diretamente o campo de EB ( $H_{EB}$ ) e a energia de troca interfacial ( $J_{FM/AFM}$ ). Relata-se também, que o aumento na espessura do IrMn ( $t_{IrMn}$ ) conduz a uma melhoria na textura [111] e para  $t_{IrMn}$  maiores do que 9 nm, parâmetros como  $H_{EB}$  e  $J_{FM/AFM}$  parecem atingir um regime de saturação [33]. Por outro lado, para o sistema de bicamadas IrMn/CoFe [34], observa-se um incremento médio da temperatura de bloqueio ( $T_B$ ) e da constante de anisotropia da camada de IrMn ( $K_{AFM}$ ); efeitos que explicam principalmente assumindo um aumento da textura [111] do IrMn-fcc. Neste caso [34], induz-se efeito de texturas diferentes para três camadas sementes diferentes (Cu, Ru e NiCr), onde a camada semente de NiCr foi a que melhor favorece a textura [111] do IrMn [34]. Adicionalmente, tem-se reportado na literatura a influência da espessura da camada semente de Ta e da camada de NiFe na textura, no tamanho de grão e nos parâmetros magnéticos da multicamada com EB Ta/NiFe/IrMn/CoFe/Ta [35]. Mais uma vez, os resultados apresentados sugerem que a textura [111] do IrMn desempenha um papel importante sobre os valores do  $H_{EB}$  e  $J_{FM/AFM}$  de ambas as interfaces NiFe/IrMn e IrMn/CoFe, enquanto a influência do tamanho de grão sobre os campos  $H_C$

e  $H_{EB}$ , ainda não são claros [35]. Vale ressaltar um resultado importante em [35], onde observou-se a estabilização da estrutura  $L1_2$  do  $\text{IrMn}_3$ , à temperatura ambiente, através da otimização das espessuras das camadas de Ta e NiFe, para os quais mediu-se o valor mais elevado do campo de  $H_{EB}$ . Como se relatou acima, a influência da textura no acoplamento do ES em tricamadas do tipo  $\text{FM}_1/\text{AFM}/\text{FM}_2$  ainda não havia sido reportado, por conseguinte, é um problema que merece investigação. Considerando esta demanda, neste trabalho de tese, estudou-se a influência de diferentes texturas cristalográficas, induzidas por camadas sementes distintas, em tricamadas do tipo  $\text{FM}_1/\text{AFM}/\text{FM}_2$  sob os fenômenos de EB e ES. Para o referido estudo, escolheu-se o sistema NiFe/IrMn/Co, crescidos sobre duas camadas sementes distintas, Cu e o Ta. A escolha de materiais FM's, deveu-se às diversas particularidades que apresentam; uma das quais é a grande diferença entre as anisotropias magnéticas. Por um lado, optou-se pela liga permalloy NiFe ( $\text{FM}_1$ ), pois é um ferromagneto mole muito utilizado em dispositivos de sensores (possui alta permeabilidade magnética, baixa coercividade, baixa anisotropia magneto-cristalina, entre outras características) [36–39]. Por outro lado, escolheu-se o Co ( $\text{FM}_2$ ) por ser um ferromagneto relativamente mais duro e que facilmente pode ser crescido na fase cristalina cúbica de face centrada (fcc - *face centered cubic* do inglês) por técnicas de deposição de vapores atômicos, tipo *Sputtering* [40,41]. Como material AFM, definiu-se o antiferromagneto IrMn por ser capaz de induzir um campo magnético de troca relativamente mais forte (quando comparado, por exemplo, com o do sistema FeMn AFM), mesmo para baixas espessuras da camada AFM [42]. Além disso, este material apresenta uma aceitável resistência à corrosão [12, 42–45]) e tem facilidade de crescimento da estrutura fcc com textura [111], diferentemente do sistema FeMn que só cresce texturizada sob condições específicas [24].

Especificamente, produziram-se duas Séries de tricamadas depositadas por *Magnetron Sputtering* sobre substrato de Si(100). A Série-A refere-se às tricamadas crescidas sobre a camada semente de Cu. Optou-se pela notação  $t_{\text{IrMn}}^{\text{Cu}}$ , onde destacam-se somente as mudanças na espessura da camada AFM, ou seja:  $t_{\text{IrMn}} = 3, 4, 5, 6, 7, 8, 12$  ou  $15$  nm. De modo similar, para o sistema de tricamadas crescidas sobre a camada semente de Ta, denominou-se como Série-B e cuja notação adotou-se por  $t_{\text{IrMn}}^{\text{Ta}}$ , cujas espessuras são:  $t_{\text{IrMn}} = 4, 6, 8, 12, 15, 18, 20$  ou  $30$  nm. Escolheu-se o Cu e Ta, a fim de promo-

ver o crescimento da camada de NiFe na orientação [111] e, pela excelente combinação entre parâmetros de rede entre estas camadas, podendo proporcionar baixas tensões interfaciais no acoplamento entre as camadas. Com isto, buscou-se entender a influência da textura [111] sobre as propriedades das tricamadas, tal que pudesse estabelecer uma relação entre as propriedades estruturais e magnéticas a fim de melhor compreender o comportamento dos fenômenos de ES e EB em função das diferentes texturas provocadas. Para o estudo das propriedades estruturais e magnéticas das amostras, utilizou-se um conjunto de técnicas experimentais: para determinar a estrutura cristalina e a textura nas amostras, usaram-se medidas de difração de Raios-X convencional e radiação síncrotron. Valores como espessura das camadas e rugosidades interfaciais obtiveram-se por medidas de refletividade (difração a ângulos rasantes). Comportamentos magnéticos avaliaram-se através das técnicas de Magnetometria de Amostra Vibrante (VSM), Ressonância Ferromagnética (FMR) e Difração Magnética com Raios-X (XRMS).

Organizou-se esta tese da maneira seguinte: No Capítulo 2, discute-se, em forma de uma revisão bibliográfica os principais conceitos físicos e estruturais relacionados às multicamadas, aos principais modelos fenomenológicos que contribuem para a descrição das propriedades desses sistemas, focalizando-nos no efeito de *Exchange Bias*, acoplamento de troca e efeito *Exchange Spring*. No Capítulo 3, realiza-se uma breve descrição da técnica de deposição de filmes finos por *Magnetron Sputtering*. Descrevem-se também os aspectos físicos inerentes ao processo e os detalhes da preparação das amostras. A seguir, faz-se a descrição de cada uma das técnicas de caracterização, destacando alguns aspectos da teoria e das instalações experimentais utilizadas. No Capítulo 4, apresentam-se os resultados experimentais para as Séries A e B acompanhados da interpretação e suas respectivas discussões. No Capítulo 5, fazem-se as considerações finais sobre as contribuições dos resultados obtidos no desenvolvimento desta tese, seguidas das referências. Finalmente, nos Apêndices A e B, encontram-se dispostas as medidas de magnetização e de ressonância ferromagnética dos dados adquiridos nesta tese, que não figuram no Capítulo de resultados.

## Capítulo 2

# Aspectos Gerais

### 2.1 Filmes Finos

Os filmes são considerados finos quando possuem espessuras de até 100 nanômetros ( $1 \text{ nm} = 10^{-9} \text{ m} = 10 \text{ \AA}$ ). Normalmente, as propriedades de um material na forma de filme diferem substancialmente daquelas encontradas em sua forma massiva (*bulk*, em inglês), devido principalmente à espessura reduzida e à influência dos efeitos de superfície. Nestes materiais, a razão superfície/volume é muito maior do que nos respectivos materiais massivos (volumétricos). Isso implica num maior número de átomos na superfície com ligações incompletas. Esta característica favorece que os filmes sejam mais reativos quimicamente com a atmosfera externa, podendo portanto ocorrer processos de oxidação, nitretação, entre outros [46]. Mesmo na "ausência" de elementos externos, os átomos da superfície passam por um processo de reconstrução para minimizar a energia, consequentemente têm propriedades distintas daquelas encontradas nos átomos "mergulhados" no interior do material. A quebra de simetria atômica, que ocorre na superfície, dá origem a propriedades físicas específicas desse tipo de estrutura [46].

Com relação às características estruturais, o estado cristalográfico do filme pode ser: amorfo, monocristalino ou policristalino. Os filmes amorfos não possuem ordenamento atômico de longo alcance e geralmente contêm os elementos C, Te, Si, Ge, entre outros [47]. Um material monocristalino é formado por um único grão cristalino ou cristalito.

Um grão cristalino é formado pelo arranjo de planos atômicos paralelos de um sólido com estrutura cristalina. Quanto mais se prolongar este arranjo, sem que haja distorção da rede cristalina ou rotação dos planos, maior será o tamanho do grão. No caso de filmes, no entanto, o termo monocristalino pode ser utilizado para filmes que possuem um único grão na direção de crescimento. Os filmes monocristalinos são usualmente fabricados por Epitaxia por Feixe Molecular (MBE), a partir da deposição dos vapores atômicos sobre um substrato monocristalino [48]. Os filmes policristalinos são formados por vários grãos dispostos em várias direções cristalográficas (no plano e fora dele). O tamanho dos grãos depende das condições da deposição e dos tratamentos térmicos posteriores (grãos maiores geralmente estão associados a temperaturas maiores de tratamento). O estado da superfície, do ponto de vista topológico, pode ser classificado como liso ou rugoso. A rugosidade é formada por irregularidades topográficas, onde vales, picos, terraços ou ilhas podem ser formados. Aumentando-se a temperatura do substrato, durante a deposição, pode haver uma tendência de se produzir filmes menos rugosos, mas há também um aumento na probabilidade de difusão atômica na interface filme/substrato. A rugosidade pode também estar relacionada com o tamanho dos grãos, principalmente no caso de filmes crescidos por MBE.

Os filmes finos são magnéticos quando possuem uma magnetização líquida não nula. Neste caso, o filme é formado por um material ferromagnético (FM) ou ferrimagnético (FI) ou um filme de um material AFM massivo com magnetização não nula devido aos *spins* não-compensados da superfície do filme. Um material é dito FM quando, abaixo de certa temperatura crítica, denominada temperatura de Curie ( $T_C$ ), apresenta uma orientação espontânea paralela dos momentos magnéticos dos átomos adjacentes, mesmo na ausência de um campo magnético externo. Define-se a temperatura de Curie como sendo a temperatura na qual a magnetização tende a zero, uma vez que os momentos magnéticos efetivos são desorientados por efeito da agitação térmica. Acima dessa temperatura, o material passa a ter um comportamento paramagnético (PM), estado em que a magnetização líquida é nula. Para exemplificar, os valores de  $T_C$  para os metais  $3d$  volumétricos são: do Fe ( $T_C=1043$  K), do Co ( $T_C=1404$  K) e do Ni ( $T_C=631$  K) [15]. Essa temperatura depende da anisotropia magnética, do acoplamento de troca e da estrutura de bandas eletrônicas [49] e obviamente da espessura do filme, conforme demonstrado experimentalmente para vários metais e ligas  $3d$  [50].

As propriedades dos filmes são altamente dependentes dos seus processos de preparação, já que os ambientes onde são realizadas as deposições podem determinar o arranjo atômico. Dentre as técnicas mais empregadas na preparação de filmes, pode-se citar: (i) Epitaxia por Feixe Molecular (EFM) ou *Molecular Beam Epitaxy* (MBE) e (ii) Pulverização Catódica *Magnetron Sputtering* (técnica utilizada nesta tese, vide Sec.3.1).

## 2.2 Multicamadas Magnéticas

As multicamadas são formadas pela deposição alternada de filmes finos de materiais distintos sobre um outro material massivo, que serve de apoio, chamado de substrato. O substrato a ser utilizado pode ser amorfo ou cristalino dependendo da finalidade, tendo, portanto, um papel importante na definição da estrutura cristalina da multicamada. A estrutura das multicamadas é baseada na nomenclatura de Falicov [51] na qual o sistema é composto de um substrato denotado por S, seguido das camadas alternadas subsequentes, separadas por barras (/). Tanto o substrato quanto as camadas são nominadas através dos elementos químicos ou ligas que os constituem. Quando o substrato é monocristalino, usa-se os índices de Miller entre parêntesis para denotar a textura cristalina (a direção de crescimento é perpendicular ao plano  $(hkl)$ ). Após a identificação de cada camada é colocada entre parêntesis sua espessura com a respectiva unidade. Abaixo, segue um exemplo genérico de uma multicamada expressada na nomenclatura de Falicov [51]:

$$S(hkl)/\textit{Buffer layer}(t_b)/[\textit{camada1}(t_1)/\textit{camada2}(t_2)/\dots/\textit{camadan}(t_n)]_n/\textit{Capping layer}(t_c)$$

Sobre o substrato, muitas vezes, pode ser depositada uma camada semente (*Buffer Layer*, em inglês), com o objetivo de isolar o substrato do resto da multicamada ou induzir um crescimento cristalográfico das camadas individuais diferente daquele que seria proporcionado pela deposição direta sobre o substrato, daí a origem da palavra semente. O sistema principal de camadas (*camada1*, *camada2*, ...) pode repetir-se periodicamente ou não, de acordo com o índice  $n$ . Quando  $n$  igual a 1, não há repetição e os colchetes podem ser suprimidos. O fechamento deste empilhamento é feito, geralmente, através de uma camada protetora, também chamada de *Capping Layer* (em inglês), feita de um material pouco reativo com a última camada do filme. Esta camada tem a finalidade de

isolar quimicamente a multicamada do meio externo, como também, poderá servir para acentuar propriedades das multicamadas antecedentes.

A denominação de multicamada é sempre utilizada de forma genérica. Em geral, sistemas com apenas duas (bicamadas) ou três camadas (tricamadas) podem também ser classificados como multicamadas. Multicamadas magnéticas são aquelas que possuem, pelo menos, uma de suas camadas composta por um filme fino magnético (magnetização líquida não nula). Além disso, o sistema pode também conter camadas não magnéticas ou com outro tipo de ordem magnética, como por exemplo, antiferromagnética (AFM). O ordenamento AFM é aquele em que a interação de troca entre os átomos vizinhos provoca orientações antiparalelas entre seus momentos magnéticos, ou seja, estes materiais apresentam, no mínimo, duas sub-redes com momentos iguais e opostos, proporcionando uma magnetização nula na ausência de campo magnético em materiais volumétricos. Neste tipo de material, o ordenamento AFM aparece abaixo de uma temperatura crítica conhecida como temperatura de Néel ( $T_N$ ). A  $T_N$  é a temperatura acima da qual desaparece a ordem AFM dos materiais, de forma que o sistema entra em um comportamento PM. Exemplos de materiais AFM volumétricos são: CoO, FeMn, IrMn e NiO.

Multicamadas de filmes finos magnéticos foram intensamente estudadas nas últimas décadas [50], pois possuem propriedades físicas não usuais relacionadas a sua baixa dimensionalidade. Uma das primeiras grandes contribuições científicas reportadas para multicamadas magnéticas surgiu em 1986, com a descoberta do acoplamento de troca indireto entre dois filmes ferromagnéticos intercalados por um filme não magnético, FM/NM/FM [52]. Este tipo de acoplamento das magnetizações, que depende da espessura da camada AFM (ou não-magnética - NM), possibilitou a descoberta da Magnetoresistência Gigante (GMR do inglês Giant Magnetoresistance) [2] nas multicamadas  $[\text{Fe}/\text{Cr}]_n$ ; estruturas periódicas compostas de camadas alternadas de Fe separadas por camadas (espaçadoras) de Cr [2]. O efeito de GMR foi também encontrado em multicamadas  $[\text{Co}/\text{Cr}]_n$ ,  $[\text{Co}/\text{Cu}]_n$  [53],  $[\text{Co}/\text{Ru}]_n$  [3], entre outros sistemas. Uma outra descoberta relevante nestes sistemas artificiais foi a de que este acoplamento de troca indireta oscila, entre acoplamento paralelo e antiparalelo entre as magnetizações das camadas ferromagnéticas e tem sua amplitude mudada, quando a espessura do material NM varia [3]. O efeito de GMR aparece em multicamadas que no estado natural possui

o acoplamento antiparalelo que, por sua vez, possui um estado de resistência maior do que aquele quando as camadas estão paralelamente acopladas. Com a ação do campo magnético externo, muda-se da configuração antiparalela para paralela gerando uma variação de resistência (GMR), que é superior àquela encontrada em materiais magnéticos convencionais [3].

Outro tema bastante abordado nos últimos anos é o acoplamento entre materiais FM e AFM em bicamadas, devido às aplicações tecnológicas do efeito *Exchange Bias* (EB) em cabeças magnetorresistivas e/ou dispositivos baseados em válvula de *spin*. Devido à sua natureza interfacial, o efeito *Exchange Bias* é correlacionado com a estrutura de *spin* interfacial. Exemplos das bicamadas do tipo FM/AFM são: NiFe/FeMn [54], NiFe/IrMn [42, 54–57], NiFe/NiMn [58]. O material AFM pode ser uma camada fina ou pode ser o próprio substrato.

Este assunto será melhor descrito na Sec.(2.6). Com a diminuição da espessura do filme FM, em poucas dezenas de ângstrom ( $\text{\AA}$ ), algumas das propriedades magnéticas do sistema mudam, pois, de fato, agora a superfície e a interface entre o filme e o substrato começam a ter um papel preponderante. Logo, fenômenos tais como: interdifusão interfacial, estruturas de *spins*, rugosidades, anisotropias de superfícies, entre outras são determinantes nas propriedades das interfaces, conseqüentemente dos filmes. Então, multicamadas magnéticas, inclusive aquelas com espaçadores não magnéticos de dimensão finita, apresentam quebra de simetria e/ou efeitos de interfaces que são suficientes para modificar propriedades magnéticas, como por exemplo, a histerese magnética.

Resumindo as razões pelas quais estes materiais apresentam estas propriedades distintas, segundo Camley e col. [59], são:

- Contribuições de interface - Como os efeitos de interface usualmente penetram no mínimo algumas camadas, em filmes finos a interface influência profundamente todo o sistema;
- Contribuições coletivas - A mesma estrutura de camadas pode permitir novas configurações de equilíbrio e novos modos dinâmicos da magnetização;

- Controle das propriedades das multicamadas - A estrutura das multicamadas pode ser controlada durante a preparação da amostra. Padrões de crescimentos e empilhamentos podem ser ajustados para conseguir características específicas do sistema desejado.

## 2.3 Domínios Magnéticos

Do ponto de vista de aplicações, os materiais magnéticos podem ser idealmente classificados em moles ou duros. Mole significa fácil de ser magnetizado ou desmagnetizado, pois precisam de baixos valores de campo magnético  $H$  para serem totalmente magnetizados. São materiais que possuem curva de histerese fina ou estreita (baixos campos coercitivos). Exemplos desses materiais são: o ferro, ligas de Fe como o *Permalloy* ( $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ ), etc. Estes materiais são usados sobretudo em aplicações onde há campos magnéticos alternados e as perdas de energia devem ser minimizadas (ex. transformadores por sua elevada permeabilidade magnética  $\mu$ ). Duros (como por exemplo, o Co) são materiais difíceis de desmagnetizar, e possuem curvas de histerese grossas (altos campos coercitivos) e sua principal função é reter a magnetização (alinhamento dos domínios permanece) quando o campo externo é removido. São bons magnetos permanentes, ligas Nd-Fe-B, Sm-Co e outros [50].

Em geral, os materiais ferromagnéticos moles não se comportam como objetos magnetizados (ímãs). Ao invés disso, possuem um momento magnético total nulo. Esse é o caso, por exemplo, de um objeto comum de ferro, à temperatura ambiente, na ausência de um campo magnético externo e com magnetização remanente nula. A explicação para esse fato é a existência de domínios magnéticos que são criados para reduzir a energia magnetostática do sistema. Assim, supondo que esse objeto se encontre em uma temperatura abaixo de  $T_C$ , uma ordem FM é estabelecida, porém os momentos magnéticos estão divididos em pequenas regiões chamadas de domínios magnéticos. Os momentos magnéticos atômicos em cada domínio apontam para a mesma direção, formando um momento líquido coletivo. No entanto, cada um desses momentos resultantes (para cada domínio) aponta para uma direção aleatória, de tal modo que a soma vetorial des-

ses momentos pode ser nula, resultando em uma magnetização líquida também nula. Entretanto, a formação de um domínio só é energeticamente favorável acima de uma determinada dimensão. Ou seja, corpos muito pequenos tendem a ter monodomínio. O conceito de domínio foi originalmente introduzido por P. Weiss em 1906, para explicar o porque dos materiais magnéticos poderem estar desmagnetizados, mesmo possuindo localmente uma magnetização espontânea não nula. Falamos desta característica magnética dos materiais, pois os domínios, nas camadas FM e AFM, têm importância vital para o efeito de  $H_{EB}$  (vide Sec.2.5), por exemplo. Domínios orientados paralelamente à interface, apenas podem ser vistos de forma indireta, como por exemplo, observando a mudança na anisotropia local. Portanto, os domínios dos filmes FM dependem de suas espessuras e das junções das interfaces, sendo também o que determina as propriedades magnéticas das multicamadas.

Entre dois domínios adjacentes, com direções de magnetização que diferem de um ângulo  $\theta$ , existe uma região de transição ou intermediária de largura finita, chamada de parede de domínio. As paredes de domínios são interfaces entre regiões de um material FM, onde os momentos atômicos têm direções diferentes [15]. A largura da parede de domínio é finita e possui estruturas internas, como foi descrito por Bloch em 1932, quando mostrou que a parede de domínio é uma região em que a energia livre é minimizada [15]. Esta minimização leva em conta termos das energias de troca, magnetostática e anisotropia. O mínimo para a energia de troca é observado quando os *spins* adjacentes são paralelos e será máxima para *spins* antiparalelos. Para a energia de anisotropia, o mínimo acontecerá quando os *spins* estão alinhados na direção de magnetização fácil. Enquanto a energia de troca tenta fazer com que a parede de domínio seja extensa ou larga, a energia de anisotropia tenta encurtar a dimensão da parede de domínio (paredes estreitas), buscando aumentar o número de *spins* apontando na direção do eixo de magnetização fácil. Essa competição entre as energias de troca e de anisotropia determina a largura e a estrutura da parede de domínio.

A largura da parede de domínio ( $\delta$ ) é proporcional à  $\sqrt{J}$  e inversamente proporcional à  $\sqrt{K}$ , onde  $J$  e  $K$  são a integral de troca (parâmetro de troca) e a constante de anisotropia, respectivamente [50,60]. A expressão para  $\delta$  então pode ser escrita como:

$$\delta \propto \sqrt{\frac{J}{K}}. \quad (2.1)$$

Existem dois tipos de paredes que separam domínios com orientação antiparalela, também chamada de parede de 180°. As paredes de Bloch (Fig.2.1-a) e as de Néel (Fig.2.1-b). Nas paredes de Bloch, a direção da magnetização gira sempre paralelo ao plano da parede (perpendicular ao plano do filme magnético). Nas paredes de Néel, a direção da magnetização gira perpendicular à parede (paralelo ao plano do filme) [50].

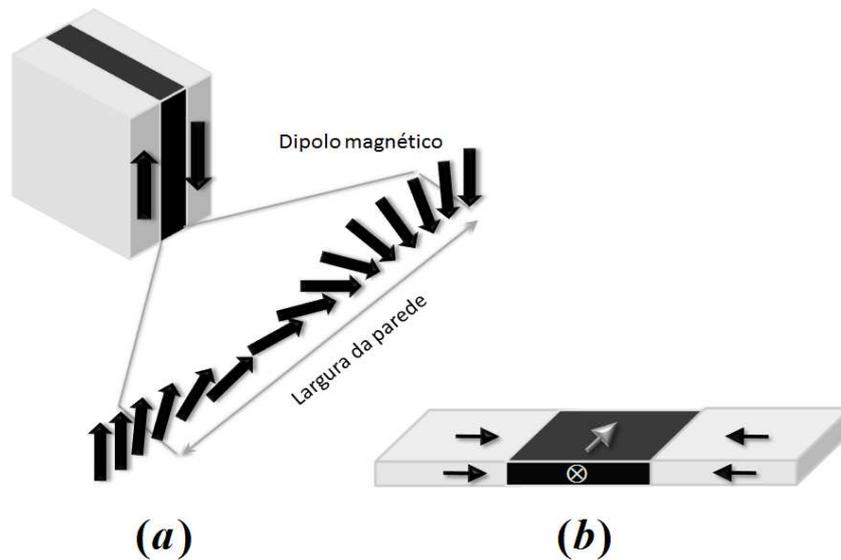


Figura 2.1: Estrutura da (a) Parede de Domínio de Bloch e (b) Parede de Domínio de Néel [50].

A diferença entre materiais duros e moles pode ser descrita em termos dos movimentos de paredes de domínios. Para obter um material mole, essas paredes devem mover-se o mais facilmente possível; isso se consegue evitando a interação com fronteiras de grão e outras imperfeições. Em outras palavras, o material deve ter grãos de grandes dimensões e não conter muitas imperfeições. Ao contrário, os materiais magneticamente duros devem ter grãos muito pequenos ( $\sim 10$  nm); neste caso, não é fácil desmagnetizar o material, a não ser que se forcem todos os momentos magnéticos de um domínio a mudar de direção, o que implica um elevado campo coercivo  $H_C$ . Os materiais duros, geralmente, apresentam muitas fronteiras de grãos e imperfeições.

Finalmente, para uma compreensão das propriedades dos domínios e estruturas magnéticas, faz-se necessário considerar a influência da estrutura cristalina sobre a direção da magnetização.

## 2.4 Anisotropia em sistemas magnéticos

Quando a propriedade física de um material é função da direção, diz-se que ela apresenta anisotropia. Baseado nesta definição, é conhecido da literatura que as curvas de magnetização podem mudar drasticamente quando a direção do campo magnético aplicado  $H$  é variada. A magnetização, em média, possui os seguintes eixos de direção de anisotropia preferidos: fácil, médio e difícil. A origem física da anisotropia magnética está no fato de que a distribuição de carga não simétrica do íon magnético é influenciada pelos íons da rede cristalina, levando a determinação de uma direção para o orbital do íon magnético que, por sua vez, sofre a ação da interação *spin*-órbita. Genericamente, este efeito está ligado ao fato de que os momentos magnéticos no interior do material magnético não apontam indiferentemente para direções quaisquer em relação aos eixos cristalinos. Assim, para cada cristal há uma direção preferencial, conhecida como direção de fácil magnetização, ou direção fácil, onde a energia necessária para magnetizar o material é menor, pois os *spins* dos elétrons (responsáveis pelo magnetismo), acoplam-se aos orbitais cristalinos. Na ausência de campos magnéticos externos, o *spin* do elétron interage com o campo elétrico gerado pelos íons do cristal. Ao aplicar um campo magnético ao longo da direção fácil, atinge-se a magnetização máxima (ou magnetização de saturação) com valores mais baixos de  $H$ , enquanto que a direção que apresenta maior campo de saturação é chamada de eixo difícil.

O comportamento da magnetização do cobalto hcp (hexagonal compacta ou *Hexagonal close packed* em inglês) e fcc (cúbica de face centrada ou *Face Centered Cubic* (em inglês) obtido com o campo magnético aplicado em distintas direções cristalográficas (fácil e difícil) é mostrado na Fig.(2.2) [61, 62]. Para o Co hcp, na direção perpendicular ao plano da base (eixo fácil), a magnetização de saturação  $M_S$  é atingida para menores campos do que aquele quando se quer saturar ao longo do eixo difícil, contido no plano

da base. Para o Co fcc, o eixo fácil é o  $[100]$  conforme ilustrado na Fig.(2.2-c). A relação entre a anisotropia magnética e o campo de saturação no eixo difícil é válida em sistemas nos quais os domínios magnéticos são muito grandes, de forma que a interação entre eles se torna desprezível [63]. Para se determinar a anisotropia magnética de amostras, com qualquer tamanho de grão, utiliza-se o método das áreas, que consiste em calcular a área entre as curvas de histerese magnética com campo aplicado ao longo dos eixos fácil e difícil. O problema deste método é que as curvas de magnetização podem apresentar histerese magnética, sendo necessário tomar uma média entre os dois ramos do laços de histerese [63]. Além disso, algumas vezes o campo necessário para saturar a amostra no eixo difícil não é alcançável pelo equipamento de medida.

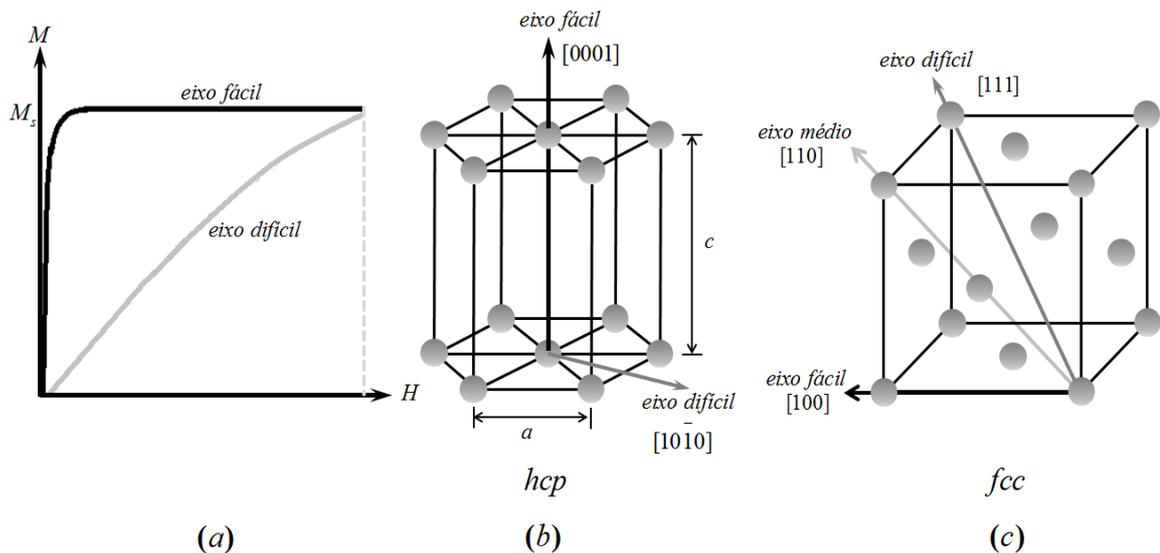


Figura 2.2: Representação da curva de magnetização em função do campo magnético para o Co hcp e fcc (a). Estruturas cristalinas do Co hcp (b) e fcc (c), indicando as direções do eixo fácil e difícil, onde  $a$  e  $c$  são os parâmetros de rede. Adaptado das Refs. [61,62].

Então, a energia de anisotropia  $E_K$  determina a direção do eixo fácil, onde o índice  $K$  indica as constantes de anisotropia. Por exemplo,  $K_1$  e  $K_2$  são as constantes de primeira e segunda ordens da energia de anisotropia uniaxial para estruturas hexagonais. Em outras palavras, para o Co hcp *bulk* a temperatura ambiente e sem campo magnético externo aplicado, a magnetização espontânea apresenta uma direção preferencial ao longo do eixo cristalino hexagonal  $c$ . Quando a magnetização se afasta deste eixo  $c$ , a energia de anisotropia cresce com o aumento do ângulo  $\theta$ , medido entre o eixo fácil (eixo  $c$ ) e  $M_S$ . Assim, a energia magneto-cristalina para o Co hcp considerada até a segunda ordem, é dada por [64]:

$$E_K = K_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta. \quad (2.2)$$

Em geral, o primeiro termo anisotrópico  $K_1 \sin^2 \theta$  é suficiente para expressar a energia de anisotropia magneto-cristalina, pois sua contribuição é bem maior do que a do segundo termo. Para o Co hcp *bulk* à temperatura ambiente, as constantes são  $K_1=4,5 \times 10^{-6}$  erg/cm<sup>3</sup> e  $K_2=1,5 \times 10^{-6}$  erg/cm<sup>3</sup> [15, 49].

Em filmes finos, assumimos que os átomos da superfície têm condições de contorno diferentes das apresentadas pelos átomos do interior, mas estão sujeitos a uma similar simetria hexagonal, portanto pode-se assumir que a energia de anisotropia de superfície será similar a da Eq.(2.2), porém com diferentes termos  $K$ 's [64].

Por outro lado, para estruturas cristalinas cúbicas (ex. Co fcc) a energia magneto-cristalina pode ser expressa como uma expansão em série de cossenos diretores dos três eixos principais da magnetização em relação aos eixos de coordenadas cartesianas:  $E_K^c = K_0 + K_1(\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2 \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \dots$ , onde  $\alpha_1 = \sin \varphi \cos \theta$ ,  $\alpha_2 = \sin \varphi \sin \theta$ ,  $\alpha_3 = \cos \theta$ , e  $K_0$ ,  $K_1$  e  $K_2$  são as constantes de anisotropia cúbica. Enquanto  $K_0$  é independente do ângulo e pode ser ignorado,  $K_1$  e  $K_2$  variam com a temperatura e com o material ferromagnético. Quando  $K_2$  é zero, a direção de fácil magnetização é determinada pelo sinal de  $K_1$ . Se  $K_1 > 0$ , [100] é a direção de fácil magnetização, pois a energia é mínima quando o momento está nessa direção. Se  $K_1 < 0$ , [111] é a direção de fácil magnetização. Quando  $K_2$  não é zero, a direção de fácil magnetização depende das duas constantes [15].

De um modo geral, a anisotropia magneto-cristalina (ou anisotropia cristalina) é a principal fonte de anisotropia magnética intrínseca. Entretanto, há várias outras contribuições extrínsecas para a energia de anisotropia do sistema, que são elas:

1. Anisotropia de forma (geometria das amostras), também chamada de energia desmagnetizante;

Nesta contribuição ressaltamos o fator de desmagnetização do material, onde o campo magnético no interior do material difere do externo pela não compensação dos momentos na superfície do material, criando um campo desmagnetizante  $H_d$ , onde  $H_d = -N_d M_S$ ,  $N_d$  é o coeficiente de desmagnetização na direção de  $M_S$  e  $H_d$  é antiparalela à  $M_S$ . Para filmes  $N_d = 4\pi$  fora do plano e zero no plano.

## 2. Anisotropia causada por tensão mecânica ou magnetoelástica

A origem física desta contribuição em filmes finos está no fato de que a ocorrência de um grande descasamento entre os parâmetros de rede do filme e do substrato provoca uma deformação  $\eta$  que, por sua vez, cria uma tensão interna  $\sigma = E \eta$  ( $E$ : módulo de Young) em grande parte dos sistemas. Ao depositar um material  $A$  sobre um material  $B$ , a tensão, devido ao descasamento entre os parâmetros de redes  $a_A$  e  $b_B$ , pode ser expressada por [63]:

$$\eta = \frac{(a_A - b_B)}{a_B}. \quad (2.3)$$

Descasamento entre as redes faz com que a minimização da energia leve a dois regimes: Quando  $\eta$  é menor um valor limite  $\eta_c$ , chamado de regime coerente, a rede se acomoda como uma camada sofrendo contração e a outra sofrendo distensão, de forma que ambas assumem o mesmo parâmetro de rede no plano. Quando  $\eta > \eta_c$ , a energia do sistema é mínima para uma configuração em que há um descasamento entre as camadas.

3. Anisotropia de troca ou *Exchange Anisotropy*. Por sua importância nesta tese, sua contribuição é abordada mais detalhadamente na Sec.(2.5);
4. Anisotropia de superfície: Para filmes finos pode aparecer a anisotropia de superfície magneto-cristalina (proposta por Néel), anisotropia superficial dipolar (rugosidade da superfície) e magnetoelástica [50].

Cabe finalizar mencionando que as contribuições para anisotropias magnéticas podem ainda ser induzidas por: (i) tratamento térmico (*annealing*) na presença de campo magnético, (ii) deformação plástica ou ainda (iii) irradiação com partículas de alta energia com campo magnético aplicado.

## 2.5 *Exchange Bias*

O avanço na investigação da spintrônica foi iniciado com a descoberta do acoplamento magnético entre camadas de filmes finos e da GMR, os quais revelaram uma série de efeitos físicos interessantes, tal como o fenômeno de Polarização de Troca ou anisotropia unidirecional ou também chamado *Exchange Bias* (EB), em inglês. O efeito de Polarização de Troca ocorre em sistemas que apresentam interfaces entre, pelo menos, dois tipos de ordenamentos magnéticos com distintas temperaturas de transições magnéticas. Em geral, a Polarização de Troca é originada de uma interação através da interface entre um ferromagneto e um antiferromagneto, ou um ferrimagneto (FI); ou ainda entre um antiferromagneto e um ferrimagneto, em heteroestruturas, em nanoescala. Em termos simples, esta interação de troca age como um campo efetivo (bias) que muda o comportamento do ferromagneto sob ação de um campo magnético aplicado. Como resultado, a curva de histerese do material FM aparece deslocada no eixo do campo magnético de um valor igual ao campo de EB ( $H_{EB}$ ). Os campos de EB e coercitivo ( $H_C$ ) do ferromagneto são determinados, neste caso, pelas propriedades magnéticas do antiferromagneto adjacente e da estrutura de *spin* interfacial.

O efeito de EB (Polarização de troca) foi primeiro observado por Meiklejohn e Bean (1956) [7] em estudos de partículas de Co oxidadas resfriadas em campo FC (*Field Cooling*) desde a  $T_N$  do CoO. Neste caso, a interface relevante é aquela entre o caroço de Co (FM) e a camada externa de óxido (CoO) (AFM).

Em primeiro lugar, no modelo mais simples, o antiferromagneto é considerado rígido sob o torque exercido durante a inversão da camada FM. Logo depois, esta restrição foi levantada permitindo que os *spins* AFM rotacionam como um todo durante a reversão da magnetização do ferromagneto. Os *spins* AFM dos materiais *bulk* podem ser deslocados de sua orientação rígida ou podem reverter-se sob o torque exercido pelo acoplamento interfacial. Isto leva a uma temperatura de bloqueio e uma espessura crítica para que o efeito de EB possa ocorrer. A temperatura de bloqueio  $T_B$  é a temperatura crítica acima da qual o efeito de EB se extingue. Em alguns casos,  $T_B < T_N$  e, em outros, como em filmes AFM espessos,  $T_B \approx T_N$  [5,65]. Estes parâmetros são determinados pela constante de anisotropia da camada AFM, bem como, pela natureza do acoplamento interfacial.

Recentemente, um outro efeito de proximidade foi evidenciado experimentalmente para a interface de bicamadas com EB [66]: a proximidade da camada FM influencia diretamente os *spins* AFM interfaciais não-compensados que, por sua vez, afeta a estrutura de *spins* do AFM mais profundamente. Estes *spins*, que podem estar frouxos ou congelados, afetam portanto a interação interfacial e mediam a coercividade da camada FM, por conseguinte, contribuem essencialmente para o efeito EB.

Alguns termos comumente utilizados na literatura para descrever a configuração de *spins* interfaciais e da camada AFM propriamente dita, são mostrados a seguir.

Em geral, um material AFM possui uma estrutura de *spins* totalmente compensada, ou seja, a magnetização total da camada AFM é nula (efeitos de superfície são desprezados). No entanto, considerando uma interface FM/AFM e uma configuração interfacial colinear, onde os *spins* interfaciais da camada FM e da camada AFM estão alinhados sobre uma mesma reta, destacam-se dois termos muito utilizados na literatura [5]: estrutura interfacial compensada (magnetização nula da contribuição interfacial da camada AFM) ou não-compensada (magnetização não nula da contribuição interfacial da camada AFM), como pode ser observada na Fig.(2.3).

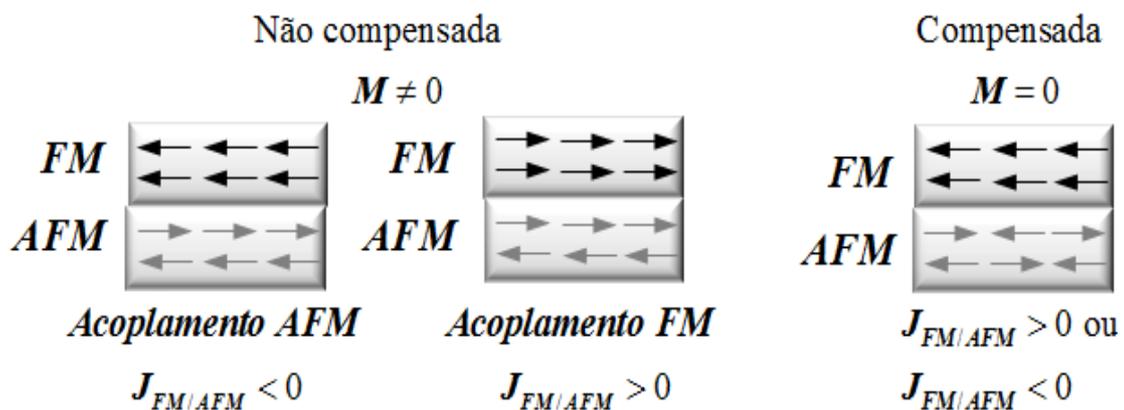


Figura 2.3: Diagrama esquemático apresentando as configurações interfaciais colineares de *spins* compensados e não-compensados na bicamada FM/AFM [5].

Além disso, os *spins* interfaciais da camada FM e da camada AFM podem formar configurações não-colineares, conforme os esquemas de *spins* dispostos na Fig.(2.4). Neste caso particular, os *spins* (domínios) da camada AFM estão perpendiculares aos *spins* da camada FM. È relevante dizer que a não-colinearidade pode gerar ângulos entre 0°

e  $180^\circ$  entre os domínios FM e AFM e, com o efeito de proximidade da camada FM, a estrutura de *spins* da camada AFM pode desenvolver uma configuração espiral, que discutiremos nesta tese.



Figura 2.4: Diagrama esquemático de duas configurações de *spins* com acoplamento não-colineares (ângulo de  $90^\circ$ ) em bicamadas FM/AFM [5].

Um modelo simplificado intuitivo das configurações dos *spins*, para o acoplamento FM-AFM, foi descrito por Nogués e Schuller [10] que, por sua vez, fizeram uso do modelo proposto por Meiklejohn e Bean [7–9]. Neste modelo, assume-se filmes de bicamadas com interfaces bem definidas, compostos por duas camadas homogêneas, uma FM, na porção superior, e a outra AFM, na posição inferior. Na Fig.(2.5) é apresentado um diagrama esquemático da configuração de *spins* do FM e do AFM durante todo o laço de histerese.

- Fig.(2.5-a): A bicamada FM/AFM está na presença de um campo magnético estático  $H$ , em uma temperatura  $T > T_N$ , tal que o AFM esteja na fase PM; enquanto isso o FM estará, à temperatura  $T < T_C$ , ordenado magneticamente e o campo aplicado é suficientemente alto para que o FM comporte-se como tendo um monodomínio magnético. Em outras palavras, em (a), a  $T$  que a bicamada é colocada na presença do campo deve satisfazer a condição  $T_N < T < T_C$ . Nesta condição, um laço de histerese obtido é o da camada FM (laço ordinário, simétrico e centrado em torno do valor nulo de campo aplicado). Quando a bicamada é resfriada até uma  $T < T_N$  na presença do campo, os *spins* do AFM próximos à interface FM/AFM alinham-se paralelamente ou antiparalelamente (dependendo da magnitude do campo aplicado [10]), aos *spins* da camada FM (gerando uma interação FM ou AFM) devido à interação de troca na interface. Para campos magnéticos

baixos ( $< 5$  T), o alinhamento dos *spins* das fases FM e AFM na interface será FM [10]. Dessa forma, os planos de *spins* do AFM mais afastados da interface seguem a ordem AFM, tal que sua magnetização líquida continua sendo nula.

Esta interação de troca induzida na interface FM/AFM, considerando uma anisotropia de troca do AFM grande, afeta o comportamento do laço de histerese (deslocamento ao longo do eixo do campo). O entendimento intuitivo é descrito assumindo as configurações de *spins* da Fig.(2.5)(b-e), conforme descrevemos abaixo:

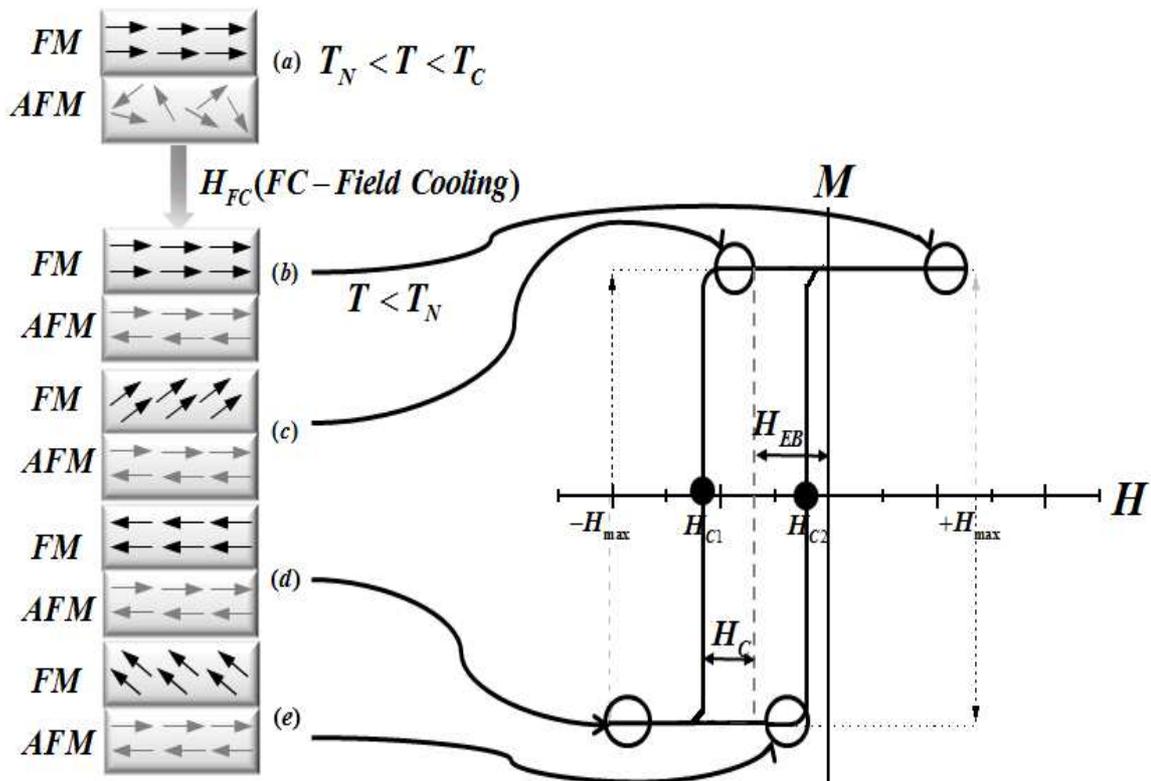


Figura 2.5: Diagrama esquemático da configuração dos *spins* nas camadas FM e AFM ao longo do laço de histerese magnético (em diferentes estágios da magnetização) de um sistema com Polarização de Troca [10].

- Fig.(2.5-b): Após o protocolo de FC, os *spins* da interface dos materiais AFM e FM estão alinhados paralelamente. Quando o campo é reduzido do valor máximo até valores que levam a inversão do seu sentido (campo é invertido), os *spins* FM tendem a girar para se alinharem com o sentido do campo, devido à energia *Zeeman*. Os *spins* AFM permanecerão inalterados devido a sua grande anisotropia e é bem maior do que o FM;
- Fig.(2.5-c): Porém, os *spins* interfaciais do AFM exercem um "torque" microscópico

(uma força) sobre os *spins* do FM tentando mantê-los na sua direção original de congelamento, ou seja, com a configuração na interface produzida pelo campo de resfriamento. Desta forma, os *spins* do FM têm uma única configuração estável, resultando em uma energia mínima, com um mínimo absoluto (anisotropia unidirecional). Este mesmo valor de energia não será obtido se o sistema fosse resfriado no protocolo *Zero Field Cooling* (ZFC) (resfriamento da amostra em campo zero) e um laço de histerese fosse obtido. Assim, para que exista uma reversão da magnetização, o campo externo aplicado deverá ser aumentado, compensando assim o torque exercido pelo AFM. Desta forma, haverá um deslocamento no valor do campo coercitivo  $H_{C1}$  original obtido na condição Fig.(2.5)(a), para o qual a magnetização de varredura negativa é nula;

- Fig.(2.5-d): Consequentemente, o campo necessário para inverter completamente os *spins* da camada FM será maior se ela está acoplada a um AFM, porque um campo magnético extra é necessário para superar o torque microscópico exercido pelos *spins* interfaciais do AFM e girar os *spins* do FM até ser obtida a situação de saturação;
- Fig.(2.5-e): Se o campo é invertido para sua direção inicial (sentido do campo durante o resfriamento), os *spins* FM giram, mesmo antes de haver a reversão do campo magnético, devido à interação com os *spins* do AFM (que agora exerce um torque no mesmo sentido do campo aplicado). Em outras palavras, os *spins* da camada FM voltarão sua configuração inicial em  $H_{C2}$  antes daquele valor obtido em uma curva tomada no protocolo ZFC (campo coercitivo de varredura positiva e para o qual a magnetização também é nula). Desta forma, é claro o fato de que o laço de  $M(H)$  após realizado o protocolo FC será deslocado ao longo do eixo dos campos se comparado com aquele obtido em ZFC.

O entendimento para tal observação experimental foi de que o sistema funciona como se houvesse um campo de bias  $H_{EB}$  interno que gera um desvio no ciclo de histerese  $M(H)$ . Para a maioria dos sistemas magnéticos que possui EB, o centro do ciclo de histerese desloca-se para campos negativos, onde conforme Nogués e Schuller [10], os *spins* interfaciais da camada FM e da camada AFM acoplam-se ferromagneticamente.

Entretanto, alguns sistemas quando resfriados desde temperaturas  $T < T_C$  até temperaturas  $T < T_N$ , em altos campos magnéticos externos (maiores que 5 T), apresentam o fenômeno EB positivo, onde o acoplamento de troca dos *spins* interfaciais FM/AFM é antiferromagnético. Neste caso, o centro do ciclo de histerese desloca-se para campos positivos [24].

Em resumo, há evidentemente, pelo menos, três requerimentos para o estabelecimento do efeito de EB [15]:

1. Resfriamento do sistema desde  $T_N < T < T_C$  até  $T < T_N$  sob ação de campo magnético aplicado ou pela deposição de filmes finos sob a presença de campo magnético aplicado;
2. Contato direto entre *spins* do FM e AFM, de modo que o acoplamento de troca pode ocorrer através desta interface;
3. Um AFM com um volume que garanta uma energia anisotrópica estável e suficiente para travar os *spins* FM, bem como possuir anisotropia magnética relativamente alta.

Dos dados experimentais e da previsão do modelo proposto por Meiklejohn e Bean [7–9], obtém-se que  $H_{EB} \propto 1/t_{FM}$ , onde  $t_{FM}$  é a espessura da camada FM [10]. Este comportamento é observado para filmes FM relativamente espessos (dezenas de nm), desde que esta espessura  $t_{FM}$  seja menor que o tamanho da parede de domínio do FM. Em outras palavras, quando os filmes FM são muito finos, esta relação não é mais válida, portanto o valor de  $t_{FM}$  limite varia para diferentes sistemas. Por outro lado, a dependência do campo  $H_{EB}$  com a espessura do AFM é mais complicada. Observa-se a existência de uma espessura mínima abaixo da qual não se verifica o efeito, possivelmente devido a não estabilização da fase AFM ou da modificação na anisotropia magnética do AFM [10]. Experimentalmente observa-se que há uma espessura crítica para o AFM ( $t_{AFM}$ ) abaixo da qual o efeito EB não é mensurável e acima desta espessura o valor do  $H_{EB}$  cresce até atingir uma saturação [10]. Como dito acima, esta observação pode estar ligada ao fato de que a anisotropia de um filme AFM muito fino não seja suficiente

para impedir a rotação da camada FM e/ou  $T_N$  pode ser modificado com a espessura do AFM. A cristalinidade e o tamanho de grão são também parâmetros que devem ser controlados [67, 68].

Outra propriedade física que se modifica quando existe o efeito de EB é a coercividade de uma bicamada FM/AFM, que geralmente aumenta após o protocolo FC. Esta propriedade, em geral, é associada com a intensidade da anisotropia magneto-cristalina da camada AFM. Além disso, a coercividade também deve ser afetada pela microestrutura da camada FM, a qual é uma propriedade particular de cada sistema. O aumento da coercividade pode ser compreendido da seguinte forma. Quando a camada AFM possui anisotropia cristalina baixa, os momentos do FM são deslocados da posição de equilíbrio em  $H=0$  pela ação de um campo externo e devido ao acoplamento interfacial os momentos do AFM também são deslocados da sua direção preferencial, aumentando assim a coercividade da camada FM. Por outro lado, quando a anisotropia do AFM é suficientemente intensa, os momentos FM se desacoplam dos momentos AFM diminuindo consideravelmente a coercividade. Uma consequência da influência da anisotropia do AFM sobre a coercividade do FM é o pico observado na curva  $H_{EB}$  versus T, que é usualmente observado quando a temperatura aproxima-se da  $T_B$ , pois próximo a esta temperatura a anisotropia do AFM diminui. Os momentos do FM se tornam capazes de modificar a orientação dos momentos do AFM, aumentando assim a coercividade. Acima de  $T_B$ , o AFM se torna PM e passa a não influenciar na magnetização do FM, de forma que o comportamento da coercividade com a temperatura é a do ferromagneto [10].

Resumindo, o efeito de EB é um problema atual e bastante complexo de ser resolvido por uma única teoria. Diversos modelos teóricos têm sido propostos desde 1956, tentando explicar este fenômeno. Uma revisão completa destes pode ser encontrada por exemplo, em Kiwi [5]. Particularmente, a presença de domínios magnéticos no filme FM é desprezada, mas no caso AFM, a estrutura de domínio que é mais complexa tem que ser levada em consideração, pois modifica e é modificada pelo acoplamento. Além disso, em sistemas de tricamadas do tipo FM/AFM/FM há também a interação de troca entre as camadas FM que, por sua vez, modifica também a estrutura de *spin* do AFM. O

problema conjunto do efeito de EB e do acoplamento de troca via estrutura de *spins* do AFM merece então um tratamento especial. Vamos tratá-lo em duas partes, usando os modelos de Mauri (EB) [26] e Slonczweski [69] (troca entre camadas, vide Sec.2.6.2).

### 2.5.1 Modelo de Mauri

Mauri e col. [26] sugeriram um modelo alternativo, a criação de uma parede de domínio no interior do material AFM. Este foi o primeiro modelo de domínios para o AFM após o do Néel. Os autores obtiveram valores de  $H_{EB}$  razoáveis, já que o limite superior para a energia de troca é imposto pela formação da parede de domínio no AFM.

O modelo de Mauri é ilustrado na Fig.(2.6), apresentando uma interface FM/AFM com formação de parede de domínio em uma sub-rede do AFM de espessura infinita.

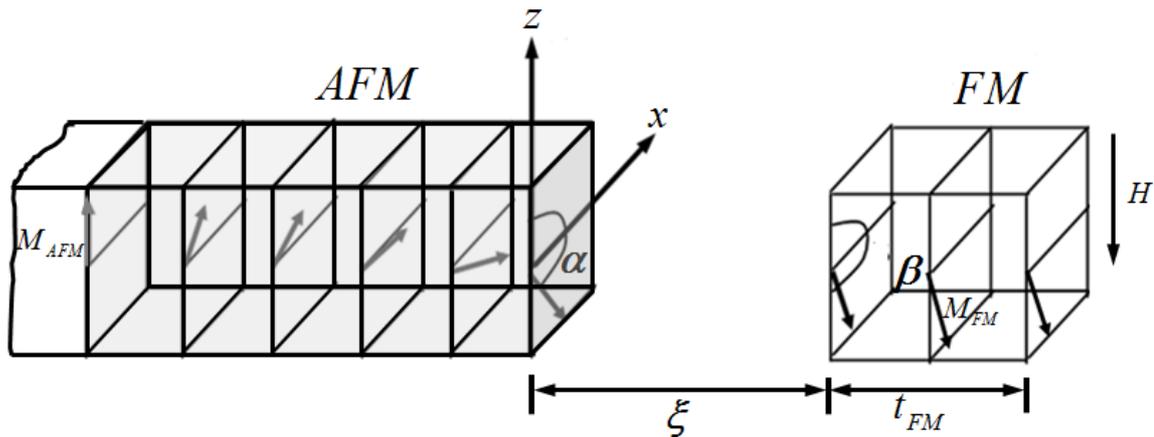


Figura 2.6: Modelo de Mauri e col. para a interface de um filme FM sobre um substrato AFM. A anisotropia uniaxial do AFM esta ao longo do eixo  $z$ . A figura descreve a situação na qual um campo magnético externo é aplicado oposto a  $z$  e o acoplamento de troca, através da interface com espessura  $\xi$  é positivo. Os *spins* de uma única sub-rede do AFM são mostrados. Adaptado de [26].

Algumas das hipóteses do modelo são:

1. Os *spins* do FM e AFM se acoplam ferromagneticamente através de uma interface FM/AFM de espessura  $\xi$  perfeitamente lisa. Existe magnetização paralela entre o FM e AFM em ausência de um campo externo;
2. O substrato AFM, com anisotropia uniaxial na direção  $z$ , é infinitamente mais espesso do que a camada FM;

3. A anisotropia do AFM deve ser menor que a do FM;
4. A espessura do FM ( $t_{FM}$ ) é muito menor do que a largura da parede de domínio da camada FM. Pode-se assumir que os *spins* na camada FM estão na mesma direção formando um ângulo  $\beta$  com o eixo  $z$ , e os *spins* interfaciais do "substrato" AFM fazem um ângulo  $\alpha$  com o eixo  $z$ . Se  $\alpha \neq 0$ , a parede de domínio se formará no interior do substrato AFM. A energia total magnética desta interface será então [26]:

$$\delta = 2\sqrt{AK}(1 - \cos \alpha) + \frac{A_{12}}{\xi(1 - \cos(\alpha - \beta))} + K_{FM}t_{FM} \cos^2 \beta + HM_{FM}t_{FM}(1 - \cos \beta). \quad (2.4)$$

O primeiro termo é a energia de formação da parede de domínio, estendendo-se para dentro do volume do AFM de acordo com Zijilstra [70], sendo  $A = \frac{J_{AFM}}{a}$ , onde  $a$  é o parâmetro de rede do AFM e  $J_{AFM}$  é a constante de troca dentro do AFM. O segundo termo é a energia de troca, com  $A_{12}$  a constante de dureza na interface. O terceiro termo é a energia de anisotropia no FM com a constante de anisotropia  $K_{FM}$ . O último termo é a energia magnetostática.

A energia  $2\sqrt{AK}$ , que corresponde a energia por unidade de superfície de uma parede de domínio de  $90^\circ$  na camada AFM, é correlacionada através de [26]:

$$\delta = (1 - \cos \alpha) + \lambda[1 - \cos(\alpha - \beta)] + \mu \cos^2 \beta + \kappa(1 - \cos \beta), \quad (2.5)$$

onde a constante de interface de troca  $\lambda = \frac{A_{12}}{\xi 2\sqrt{AK}}$  pode ser  $<0$  ou  $>0$  dependendo se o acoplamento dos *spins* paralelo ou antiparalelo for favorecido. A anisotropia do FM  $\mu = \frac{K_{FM}t_{FM}}{2\sqrt{AK}}$  pode também ser  $<0$  ou  $>0$  dependendo se o eixo fácil do FM é paralelo ou perpendicular ao eixo  $z$ , respetivamente. Com o termo de interação Zeeman  $\kappa(1 - \cos \theta)$  onde  $\kappa = \frac{HM_{FM}d}{2\sqrt{AK}}$ , o campo externo é aplicado ao longo do eixo  $z$ .

Minimizando a energia magnética dada pela Eq.(2.4), Mauri e col. [26] encontraram uma expressão para o valor de  $H_{EB}$  para os casos limites onde  $\lambda \ll 1$  e  $\lambda \gg 1$ , assim:

$$\begin{aligned}
t_{FM}H_{EB} &= -\frac{A_{12}/\xi}{M} \rightarrow \frac{A_{12}}{\xi 2\sqrt{AK}} \ll 1, \\
t_{FM}H_{EB} &= -\frac{2\sqrt{AK}}{M} \rightarrow \frac{A_{12}}{\xi 2\sqrt{AK}} \gg 1.
\end{aligned}
\tag{2.6}$$

Vale lembrar que uma das limitações deste modelo é que a constante de anisotropia  $K_{AFM}$  deve ser bem pequena para que uma parede de domínio possa se formar no AFM, caso contrário, torna-se energeticamente favorável à formação da parede de domínio no FM. Outra limitação deste modelo é que ele não explica como uma interface perfeitamente compensada pode gerar um  $H_{EB}$  tão grande e até maior do que uma não compensada.

## 2.6 Acoplamento magnético entre camadas FM's mediadas por uma camada AFM

Duas camadas FM's que façam parte de um mesmo sistema físico mostram, em geral, um acoplamento magnético efetivo [50]. Néel, em 1952 [71], previu que uma interface rugosa entre duas camadas conduziria a polos não-compensados (efeito de casca de laranja ou *orange-peel*) [72] que acoplaria essas camadas através de campos dipolares [73].

Tipicamente, dois filmes finos de materiais ferromagnéticos  $FM_1$  e  $FM_2$  separados um do outro por um filme fino de material não magnético ou magnético, chamado *espaçador*, possuem direções da magnetização definidas para cada camada ferromagnética, através de um acoplamento via interação de troca e o sinal deste acoplamento oscila em função da espessura do espaçador [3, 52, 74].

Quando a camada espaçadora for não-magnética o espaçador é dito como passivo do ponto de vista do magnetismo, já que os elétrons de condução ao atravessarem as interfaces  $FM_1/\text{espaçador}$  e  $\text{espaçador}/FM_2$  não sofrem modificações diretas na sua polariza-

ção de *spins* pelo espaçador. O acoplamento de troca através da camada não magnética depende fortemente da natureza química e da espessura do espaçador, bem como da rugosidade na interface [74]. Um modelo aceitável para descrever o mecanismo de interação magnética entre as camadas  $FM_1$  e  $FM_2$  é o modelo de Heisenberg modificado (acoplamento bilinear), que leva em conta os termos superiores da interação entre *spins* totais da camada  $FM_1$  e  $FM_2$  (mais detalhe na Sec.2.6.1).

Agora, quando a camada espaçadora for de um material com ordenamento magnético, como por exemplo um AFM, os elétrons de condução da camada  $FM_1$  possuem suas polarizações modificadas pelos *spins* da camada espaçadora na interface  $FM_1/AFM$ , assim como os da camada  $FM_2$  são influenciados pelo *espaçador* na interface  $AFM/FM_2$  e, a estrutura de *spin* da fase AFM, que depende da sua espessura, provoca uma orientação relativa entre as magnetizações líquidas das camadas  $FM_1$  e  $FM_2$ . Este processo de acoplamento faz com que, em geral, as camadas  $FM$ 's se acoplem não colinearmente. Além disso, pelo fato de existirem interfaces  $FM/AFM$ , este acoplamento de interface dá origem a uma anisotropia uniaxial, que levará a um realce da coercividade nas camadas  $FM$ 's. Se considerarmos ainda o protocolo de resfriamento com um campo magnético (FC), discutido na seção do efeito de EB Sec.(2.5), a anisotropia uniaxial se transforma em unidirecional. Na literatura, não se encontram muitos trabalhos concentrados no acoplamento de sistemas de tricamadas  $FM_1/AFM/FM_2$  [75], principalmente discutindo a combinação dos fenômenos de *Exchange Bias* e acoplamento de troca entre camadas, é bastante complicado.

A primeira observação experimentalmente do acoplamento de troca em filmes foi do Grupo de Grunberg em 1986 [52]. Eles observaram que quando uma camada fina de Cr separa duas camadas de Fe, as magnetizações das camadas  $FM$ 's, para determinadas espessuras de Cr, se organizavam com um alinhamento do tipo AFM. Isto demonstrava que havia um acoplamento magnético entre as magnetizações líquidas dos filmes (cujas espessuras se encontram no regime de dezenas de angstroms). Rührig e col. [76] em 1991, relataram que em certas condições de espessuras do espaçador, aparecia um acoplamento inusitado entre os filmes de Fe/Cr que tendia a alinhar as magnetizações das camadas

de Fe formando um ângulo de  $90^\circ$ , postulando a existência de um termo de acoplamento biquadrático na energia, tal que propiciasse tal acoplamento. Este termo tem sido e é usualmente atribuído a efeitos extrínsecos, da interface, por exemplo, rugosidade interfacial [77]. Este tipo de acoplamento foi posteriormente bem caracterizado utilizando diversas técnicas experimentais [78].

### 2.6.1 Acoplamento Bilinear

Há muitos modelos teóricos que descrevem a natureza do acoplamento bilinear. Um dos primeiros usados é o que leva em conta a teoria RKKY, que tem essencialmente a mesma origem física do modelo usado para o acoplamento magnético entre impurezas magnéticas em uma matriz não-magnética [79]. No caso das multicamadas, esta teoria é usada para tratar a interação entre os momentos magnéticos das camadas e os *spins* dos elétrons de condução da camada espaçadora. Esta teoria prevê a presença de uma dependência oscilatória para a interação de troca com a espessura do espaçador (determina os valores dos períodos de oscilação possíveis), mas enfrenta dificuldades na estimativa dos valores da interação em si [77, 79].

A expressão fenomenológica da energia magnética associada ao acoplamento bilinear é semelhante à energia de acoplamento proposta por W. Heisenberg [80], conhecida como interação de troca. Esta analogia é feita, porque assim como o acoplamento de troca tende a alinhar os *spins* de átomos (ou moléculas) vizinhos paralelamente (em ferromagnetos) ou antiparalelamente (em antiferromagnetos), o acoplamento bilinear pode ser do tipo ferromagnético, quando as magnetizações dos filmes adjacentes estão alinhadas paralelamente, e antiferromagnético quando estão antiparalelas, como mostra-se na Fig.(2.7-a) [81]. Entretanto, o valor da constante de acoplamento bilinear  $J_{bl}$  [78,82] é muito menor do que a constante de troca  $J$ . A expressão de energia de troca descrevendo a interação magnética de duas camadas ferromagnéticas acopladas é dada por [78, 83]:

$$E_{bl} = -J_{bl} \frac{\vec{M}_1 \cdot \vec{M}_2}{|\vec{M}_1| \cdot |\vec{M}_2|}. \quad (2.7)$$

onde  $E_{bl}$  é a energia por unidade de superfície da interface [83, 84]. Como a Eq.(2.7) é bilinear com respeito a  $\vec{M}_1$  e  $\vec{M}_2$ , tal tipo de interação é chamada de Bilinear. A condição de mínima energia para o acoplamento bilinear será:  $\vec{M}_1$  e  $\vec{M}_2$  paralelas (acoplamento FM) para  $J_{bl} > 0$ , enquanto que para  $J_{bl} < 0$ ,  $\vec{M}_1$  e  $\vec{M}_2$  devem ser antiparalelas (acoplamento AFM).

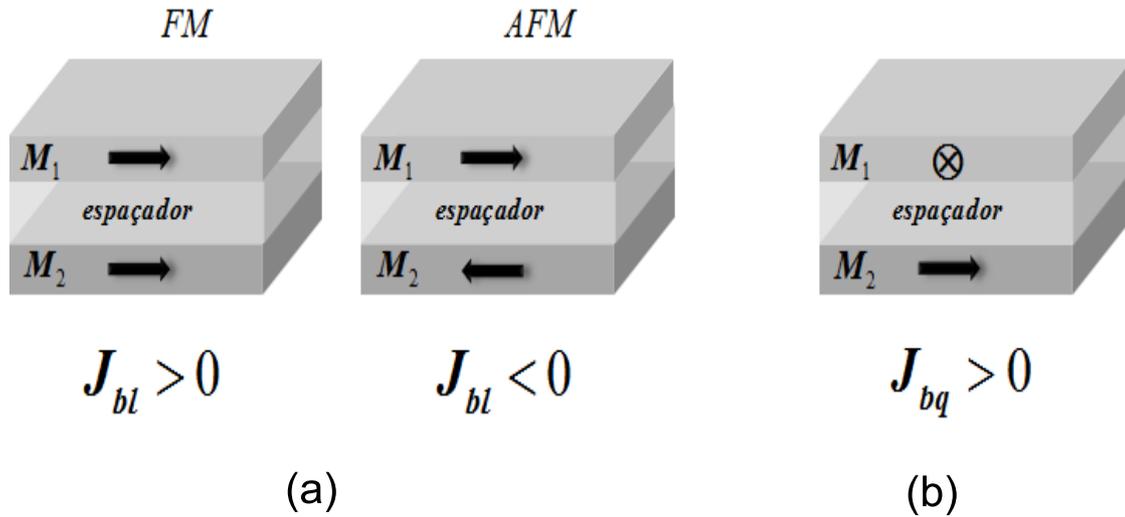


Figura 2.7: Acoplamento (a) Bilinear quando o espaçador é não magnético e (b) Biquadrático, quando o espaçador tem ordenamento magnético.

## 2.6.2 Acoplamento Biquadrático

Do ponto de vista fenomenológico, o acoplamento biquadrático tem sido modelado, com sucesso, através de uma energia anisotrópica da forma [83]:

$$E_{bq} = J_{bq} \frac{(\vec{M}_1 \cdot \vec{M}_2)^2}{|\vec{M}_1|^2 |\vec{M}_2|^2}. \quad (2.8)$$

onde  $J_{bq}$  é a constante de acoplamento biquadrático e é sempre positiva. Por se tratar de um termo de segunda ordem é esperado que  $J_{bq} \ll J_{bl}$ . No entanto, para determinadas espessuras da camada espaçadora não-magnética, o termo biquadrático pode ser da mesma ordem de magnitude do termo de troca bilinear ( $J_{bq} \approx J_{bl}$ ) [82].

Este termo é mínimo quando  $\theta_{12}=90^\circ$ , ou seja, quando as magnetizações líquidas das duas camadas ferromagnéticas estão alinhadas perpendicularmente entre si (Fig.2.7-b) [81]; mesmo assim as magnetizações permanecem nos planos de seus respectivos filmes, assumindo também o fator de desmagnetização.

Vários modelos têm sido propostos para explorar o termo biquadrático [83,85,86], mas é claro que no caso de espaçadores AFM, o acoplamento de troca da camada mediadora com as camadas FM's bem como a estrutura de *spin* da camada AFM desempenham um papel muito importante no acoplamento das camadas FM's e no ângulo de acoplamento das camadas [69,87]. Por exemplo, a estrutura de *spin* em espiral na camada AFM pode levar para diferentes ângulos entre os eixos de magnetização das duas camadas FM's. Esse não usual acoplamento de  $90^\circ$ , entre as camadas FM's pode ser devido à estrutura de *spin* em espiral na camada AFM, ou a rugosidade interfacial combinada com o valor de anisotropia da camada mediadora AFM [74].

Slonczewski [69] propôs o modelo para o acoplamento biquadrático (não Heisenberg), que além de incluir a rugosidade, também considera o espaçador como um material AFM e com estrutura em espiral. Sugeriu a substituição dos termos relativos ao modelo de Heisenberg modificado, e propôs o modelo de *magnetismo de proximidade* [69,79] que, por sua vez, é baseado em um arranjo quase helicoidal da camada AFM. Este modelo assume uma forma diferente da energia de interação de camadas adjacentes FM, em comparação com a interação biquadrática [79] e, por exemplo, consegue explicar a estrutura magnética não-colinear no caso do Cr ou Mn, como camadas espaçadoras [3,52,75]. Neste modelo, a energia do acoplamento de troca por unidade de área é dada por [69,88,89]:

$$E_c = C_+(\theta)^2 + C_-(\theta - \pi)^2, \quad (2.9)$$

onde  $C_+$  e  $C_-$  são os coeficientes de acoplamento ( $C_+ \geq 0$ ,  $C_- \leq 0$  e  $0 \leq \theta \leq \pi$ ), e  $\theta$  é o ângulo entre os vetores magnetização das duas camadas FM's. Em outras palavras,  $C_+$  e  $C_-$  refletem as contribuições dos acoplamentos FM e AFM entre as camadas FM's. Se nem  $C_+$  nem  $C_-$  desaparecem, a mutua orientação de equilíbrio entre as duas magnetizações das camadas FM's estará em um estado de configuração tipo não-colinear. Se um dos dois coeficientes  $C_+$  ou  $C_-$  desaparece para espaçadores perfeitos (ou seja, que não

possuem flutuações na espessura), as camadas FM's apresentarão configuração do tipo colinear (acoplamento FM ou AFM), também encontradas no modelo de Heisenberg padrão. Misturas comparáveis de monocamadas pares e ímpares da camada espaçadora AFM podem gerar  $C_+ = C_-$  que, por sua vez, favorece um acoplamento ortogonal das camadas FM<sub>1</sub> e FM<sub>2</sub> [88]. Os coeficientes  $C_+$  e  $C_-$  refletem as contribuições magnéticas das regiões, onde o espaçador possui um número ímpar (vide Fig.2.8-a) ou par (Fig.2.8-b) de monocamadas.

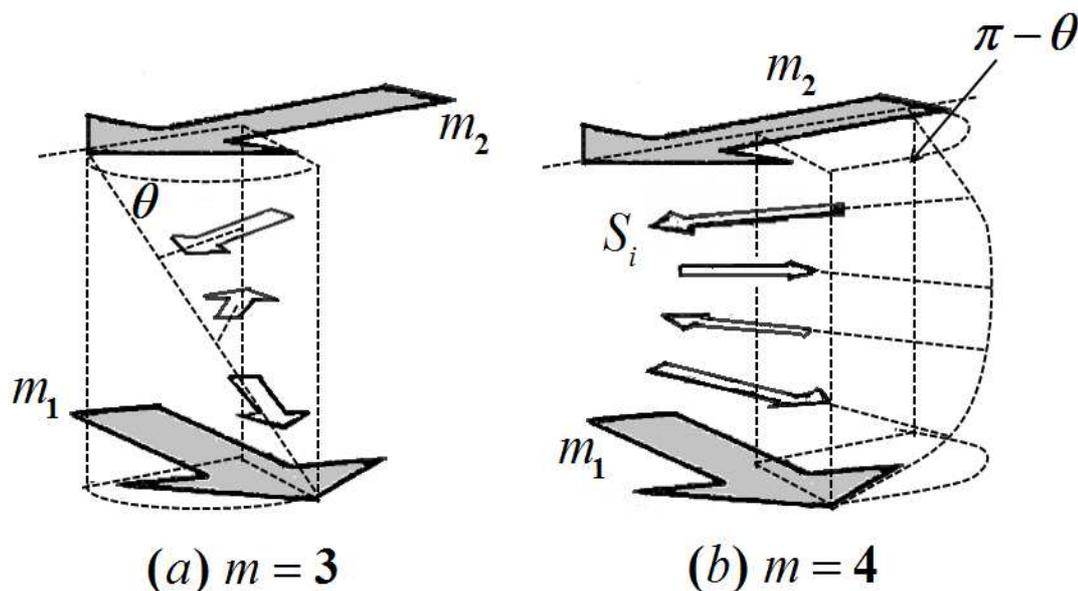


Figura 2.8: Ilustração hipotética dos estados quase-antiferromagnéticos do modelo de Slonczewski para um espaçador de Cr ou Mn [69].

Portanto, para o caso de filmes finos monocristalinos, a energia magnética do sistema tem, pelo menos, três contribuições relevantes: energia magneto-cristalina, energia Zeeman e a energia de acoplamento de troca entre as camadas dada pela Eq.(2.9), tal que a energia  $E$  por unidade de área é escrita como [88, 89]:

$$E = E_a + E_h + E_c, \quad (2.10)$$

$$E_a = Kt[(\sin 2\Phi_1)^2 + (\sin 2\Phi_2)^2]/4,$$

$$E_h = -HMt(\cos \Phi_1 + \cos \Phi_2),$$

$$E_c = C_+(|\Phi_1 - \Phi_2|)^2 + C_- (|\Phi_1 - \Phi_2| - \pi)^2,$$

onde  $E_a$  é a energia de anisotropia,  $E_h$  é a energia Zeeman e  $E_c$  é a energia de acoplamento sugerida por Slonczewski, para um espaçador AFM. Aqui  $t$ ,  $M$ ,  $K$  e  $H$  são,

respectivamente, as espessuras da camada FM, a magnetização de saturação da camada FM, a anisotropia magneto-cristalina e o campo externo aplicado;  $\Phi_1$  (ou  $\Phi_2$ ) é o ângulo entre o vetor magnetização da primeira (ou segunda) camada FM e a direção do campo; e  $C_+$  e  $C_-$  são os coeficientes de acoplamento;  $|\Phi_1 - \Phi_2| = \theta$  ( $0 \leq \theta \leq \pi$ ) é o ângulo entre os dois vetores de magnetização das camadas FM para um dado campo externo (chamado ângulo de acoplamento) [88]. Além destes termos, ainda existem outros que devem ser considerados, tais como a energia unidirecional (EB), a energia de demagnetização, a energia de anisotropia do AFM, entre outras, fazendo com que possíveis ajustes de curvas de  $M(H)$  sejam bastante complexos e sem solução unívoca.

## 2.7 *Exchange Spring*

Um magneto com *Exchange Spring* (ES) é composto por duas fases de materiais magnéticos macias e duras [90]. Estes tipos de materiais são estudadas com a finalidade de desenvolver um magneto permanente de alto desempenho com grande produto energético ( $BH_{max}$ ). Em magnetos com ES [90], a magnetização da camada magnética dura (que fornece uma alta anisotropia e alto campo coercitivo) fixa as camadas magnéticas macias adjacentes aumentando o momento magnético, através do acoplamento de troca nas interfaces entre as camadas magnéticas duras e macias. Os magnetos geralmente utilizam o metal de terra rara para a camada magnética dura assim, em magnetos com ES este processo traz um benefício adicional na fabricação destes materiais, ao reduzir o teor de terras raras, pois a fase mole está livre de terras raras. Pela aplicação do campo magnético externo, uma parte de momentos magnéticos na camada magnética macia começa a rodar, e uma estrutura magnética de torção espacial, semelhante a uma parede de domínio tipo Bloch [91] é formada. A pesquisa experimental sobre filmes de materiais ferromagnéticos duros e moles e multicamadas magnéticas concentra-se principalmente em explorar a física dos processos de reversão em sistema que apresentam o fenômeno de *Exchange Spring* [92], gerado pelo acoplamento dos *spins* dos materiais duros e moles.

Um dos trabalhos de maior relevância sobre o entendimento do ES, é o reportado por Yang e col. [30], que realizaram um estudo no sistema de tricamadas do tipo

FM<sub>1</sub>/AFM/FM<sub>2</sub> variando a espessura da camada AFM ( $t_{AFM}$ ). Os autores observaram que as duas camadas FM's (FM<sub>1</sub> e FM<sub>2</sub>) acoplam-se através de uma camada fina AFM chamada espaçadora. O mais importante,  $\theta$  que é o ângulo entre os eixos de magnetização das camadas FM's através da camada AFM, depende linearmente da espessura da camada AFM assim  $\theta \propto t_{AFM}$  (para  $t_{AFM} < 9$  nm). Esta é a primeira evidencia experimental da estrutura de *spins* em espiral com camada AFM em um sistema com acoplamento de troca. Neste estudo, ambas as camadas FM's apresentam diferentes anisotropias magnéticas, o FM<sub>1</sub> é um material magnético mole (NiFe) e o FM<sub>2</sub> é um material magnético duro (Co). Devido a estrutura de *spins* da camada AFM estar fortemente acoplada com as camadas de Co e NiFe, o ângulo de rotação  $\theta$  entre estas camadas revela uma estrutura de *spins* em espiral no interior da camada AFM. Por um lado para espessuras  $t_{AFM} > 9$  nm, os eixos de magnetização das camadas FM's estão opostas (antiparalelo), devido ao processo de resfriamento com campo. Por outro lado, para  $t_{AFM} < 9$  nm o comprimento da espiral é ditada pela  $t_{AFM}$ , conseqüentemente o ângulo  $\theta$  deve ser menor que  $\pi$  e varia como  $gt_{AFM}$  ( $g = 1.76^\circ/\text{\AA}$ ). O comprimento da estrutura de *spins* em espiral no AFM é determinada pela espessura da parede de domínio do AFM, prevista teoricamente. Em geral, a espessura da parede de domínio pode ser longa no caso de uma espiral com ângulo de inclinação muito pequena. No entanto, existe um mínimo na espessura da parede de domínio do AFM. Este valor mínimo é previsto teoricamente e é proporcional a  $(A_{AFM}/K_{AFM})^{1/2}$ , onde  $A_{AFM}$  e  $K_{AFM}$  são as constantes de *stiffness* e de anisotropia do AFM [26, 77].

A estrutura de *spin* em espiral formada dentro do AFM é esquematizada na Fig.(2.9-a) para  $t_{AFM} > 9$  nm, onde as camadas de Co e NiFe formam um ângulo de rotação  $\theta = \pi$ , e só uma sub-rede está representada para maior clareza. Esta estrutura de *spins* em espiral pode também existir em camadas AFM's de maior espessura. Para o caso em que  $t_{AFM} < 9$  nm, a espiral (ângulo entre *spins* adjacentes no AFM) é reduzida, resultando em um ângulo de rotação  $\theta < \pi$ , conforme ilustrado na Fig.(2.9-b). A diminuição do ângulo na estrutura de *spins* em espiral obriga a rotação do eixo de magnetização da camada de NiFe, que tem anisotropia mais fraca. Assim, a direção da anisotropia unidirecional da camada NiFe será ditada pelo comprimento da espiral que, por sua vez, depende linearmente da  $t_{AFM}$ . Devido a forte anisotropia da camada de Co o eixo de anisotropia

unidirecional é sempre ao longo do campo de resfriamento. A camada de Co ancora a estrutura de *spins* em espiral do AFM, enquanto esta é manifestada pela rotação da camada de NiFe.

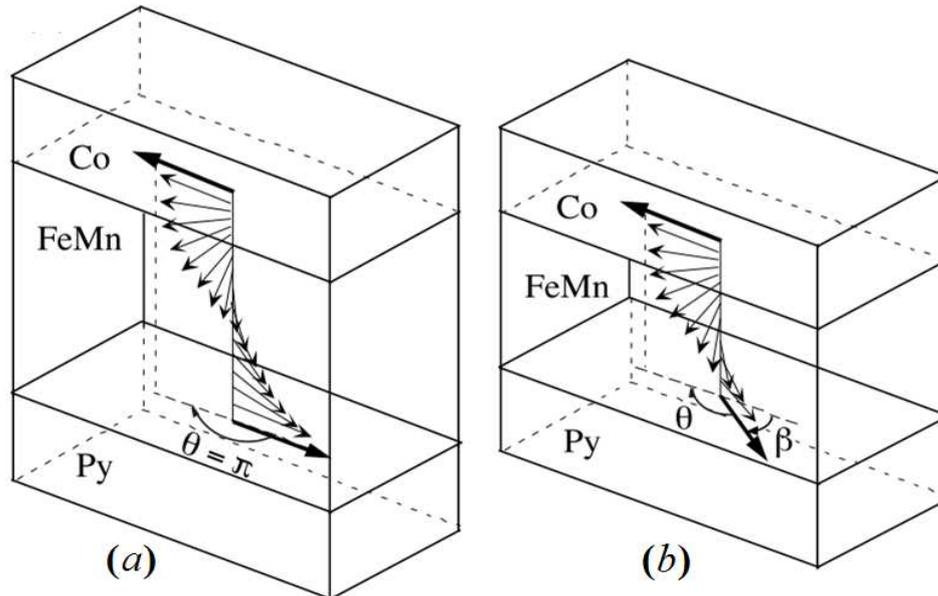


Figura 2.9: Diagrama esquemático da estrutura de *spins* em tricamadas NiFe/FeMn/Co (a) Para espessuras de FeMn  $t_{AFM} > 9$  nm com  $\theta = \pi$  entre as magnetizações de Co e Py, e (b) Para espessuras de FeMn  $t_{AFM} < 9$  nm e  $\theta < \pi$  [30].

Experimentos como os reportados por Scholl e col. [23] têm mostrado que isto só acontece para camadas únicas AFM não acopladas a FM, ou seja, em sistemas onde não exista o EB. Para sistemas com EB, a magnetização da camada dura (FM) arrasta a magnetização do AFM, enrolando a estrutura dos *spins* AFM como uma mola de relógio, daí o termo *Exchange Spring* (ES) [23,93].

## 2.8 Propriedades Gerais do sistema Si(100)/*buffer*/Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>/Co/*capping layer*

Nesta seção, aborda-se algumas das principais características e propriedades de cada uma das camadas que compõe o sistema estudado nesta tese: Si(100)/*buffer*/Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>/Co/*capping layer*, com o intuito de explicar suas funções e contribuições, magnéticas ou estruturais, para a heteroestrutura.

**Substrato de Silício** - No crescimento de filmes finos, a escolha dos substratos é importante, pois quanto maior for a semelhança da estrutura cristalina entre o filme e o substrato, menores são os defeitos e as tensões induzidas na deposição. Podem ser usados substratos de materiais sólidos amorfos ou cristalinos. O silício monocristalino é um dos substratos mais usados atualmente. Possui alto módulo de elasticidade e a alta dureza, sendo capaz de suportar os processos que a indústria impõe. Os substratos de Si são denominados *wafers* [94], muitas vezes traduzido como lâminas em português. Possuem uma camada de óxido nativo ( $\text{SiO}_2$ ), que é crescida pela oxidação da superfície do substrato em altas temperaturas e pela presença de oxigênio. Esta camada ajuda impedir a formação de ligas na interface Si/primeira camada. O substrato de Si escolhido é monocristalino, semicondutor e diamagnético, na direção [110] (direção adotada nesta tese) para indicar a orientação cristalográfica no plano. Esses cortes são úteis para o posicionamento dos *wafers* em equipamentos de processos de micro-fabricação, como também para determinar a orientação cristalina no plano do filme. Os processos de limpeza dos substratos depositados são detalhados na Sec.(3.2).

A acomodação do descasamento entre os parâmetros de rede camada/substrato é um dos fatores mais importantes a se considerar no processo de deposição de filmes. Deve-se escolher, portanto uma camada semente, que possibilite o crescimento texturizado na direção que se deseja trabalhar. Além da influência na cristalinidade, a camada semente também tem influência na aderência e na rugosidade dos filmes; este último parâmetro importante para o controle do efeito de *Exchange Bias*. As interfaces, tanto entre o substrato com a camada *buffer* quanto entre a camada  $\text{FM}_2$  com a camada protetora, são geralmente escolhidas de modo a não influenciar no caráter magnético das tricamadas, além de possuírem baixa miscibilidade com os principais constituintes das multicamadas.

**Cu** - O uso do Cu, como camada semente para o crescimento do  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ , proporciona uma excelente combinação entre os parâmetros de rede dessas duas camadas, gerando rugosidades interfaciais baixas para as camadas subsequentes, o que é necessário para a preparação de sistemas de *Exchange Bias* com alta qualidade [55,66]. O Cu também pode servir como camada protetora para prevenir a oxidação, por exemplo, da heteroestrutura  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}$  [55, 66].

**Ta** - A camada semente de Ta reforça a orientação [111] e promove a anisotropia uniaxial na camada de NiFe [67, 95–97]. Chouckh [98] observou que a inserção do Ta, como camada semente para o crescimento de bicamadas NiFe/FeMn, favorece a formação de filmes com rugosidade baixas e tamanhos de grão pequenos, aumentando o valor do  $H_{EB}$  e reduzindo o campo coercitivo  $H_C$  das multicamadas. Nenhuma sistemática entretanto foi observada com relação a dependência do  $H_{EB}$  com a espessura da camada semente de Ta, em espessuras da faixa de 5 - 40 nm. Resultados da literatura obtidos por difração de Raios-X para um sistema de bicamadas [42, 94] NiFe/IrMn, depositadas por *sputtering* RF, sugerem que a camada semente de Ta, crescida sobre substrato de Si, induz uma forte textura cristalina na direção [111] nas camadas de NiFe e IrMn.

**Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>** - Chamada de *Permalloy* (Py) - tem estrutura cúbica fcc, com os átomos de Fe ocupando posições aleatórias na rede, resultando em uma energia de anisotropia magneto-cristalina quase nula. Camadas de Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>, com espessura suficientemente pequenas, têm sido vastamente utilizadas em diversos sistemas de multicamadas, que apresentem efeitos como a GMR [2, 3] e a EB [33, 66, 99]. Seu potencial de aplicação é devido às suas propriedades magnéticas moles, tais como alta permeabilidade magnética ( $10^5 \mu\text{N}/\text{A}^2$ ), baixa anisotropia magneto-cristalina (dependente do método de preparação e pós-tratamentos térmicos), magnetostricção próxima de zero, uma magnetorresistência anisotrópica significativa (5%) e uma coercividade muito baixa ( $\sim 1$  Oe) [18, 38].

**Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>** - O FeMn [100] e NiO [101] são materiais AFM ´s mais comumente utilizados em sistemas para induzir o efeito de EB. O FeMn apresenta resistência baixa à corrosão e temperatura de bloqueio em torno de 423 K [21]. O NiO apresenta uma  $T_B$  de 473 K [21] (um pouco maior que a do FeMn), mas geralmente bicamadas FM/NiO possuem energia de troca interfacial baixa, o que o torna inadequado para à aplicação em dispositivos de gravação de alta densidade [42]. O IrMn, por sua vez, é um AFM promissor, capaz de induzir um campo de troca forte, mesmo quando a camada AFM é muito fina ( $\approx 7,5$  nm) [42], apresentando uma aceitável resistência à corrosão [12, 42–45] (ligeiramente melhor que o FeMn [42]), e uma  $T_N=690$  K [10], conseqüentemente, dispositivos que possuem IrMn possuem maior estabilidade térmica. Além disso, sabe-se que a textura cristalina IrMn - fcc[111] em bicamadas influência fortemente o  $H_{EB}$  [102].

A microestrutura da camada AFM em sistemas como bicamadas ou tricamadas tem um importante impacto nas propriedades magnéticas do sistema. Conforme reportado na literatura, a textura [111], favorece significativamente ao campo de *Exchange Bias*  $H_{EB}$ , isto pode estar relacionado à estrutura de *spin* do IrMn alinhado ao longo do plano (111) [10,35]. Por exemplo, a composição  $\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}$  apresenta o grau máximo de textura cristalina [111] [45] e, conseqüentemente maior  $H_{EB}$  para o sistema NiFe/IrMn [42].

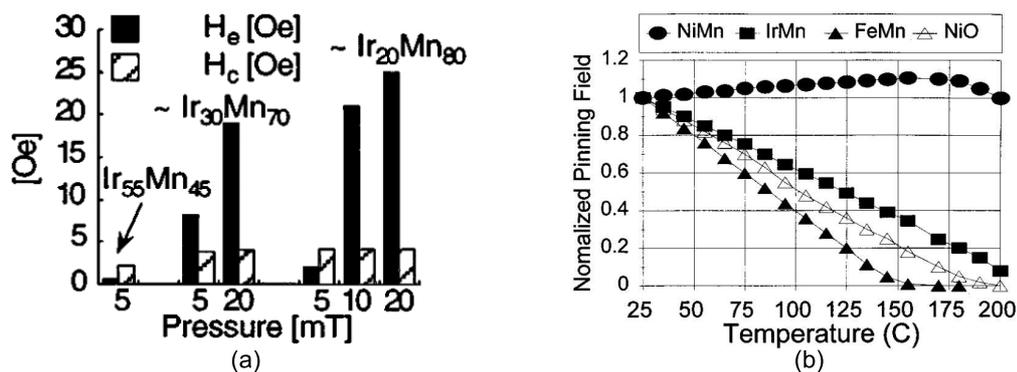


Figura 2.10: (a)  $H_{EB}$  e  $H_C$  para amostras de IrMn com diferentes composições depositados por pulverização catódica a 250 W de potência RF [42], (b) Dependência do campo *pinning* versus temperatura do AFM [21].

Pode-se observar da Fig.(2.10) (lado esquerdo), medidas de  $H_{EB}$  e  $H_C$  em função da pressão de trabalho do *sputtering* realizadas por Devasahayam e col. [42] para diversas composições de IrMn na faixa de 16-32 at.% para o Ir. A composição de  $\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}$  apresentou o mais alto valor de  $H_{EB}$  (60 Oe) quando este foi acoplado com 25 nm de espessura de NiFe. Neste caso, a energia de troca interfacial correspondente é de  $0.145 \text{ erg/cm}^2$  (tirado por ajustes da curva  $1/t_{FM}$ ). Do lado direito da Fig.(2.10), Mao e col. reportaram o valor da  $T_B$  para alguns AFM's: FeMn ( $T_B=423 \text{ K}$ ), NiO ( $T_B=473 \text{ K}$ ), NiMn ( $T_B=653 \text{ K}$ ) e IrMn ( $T_B=493 \text{ K}$ ) [21]. O valor obtido por Mao e col. está em acordo com os reportados, por outros autores, na literatura [10, 42, 67]. Na Ref. [42], verificou-se que a  $T_B$  do IrMn encontra-se dentro da faixa de 300-523 K. Além disso, foi demonstrado que o valor de  $T_B$  é uma função da espessura do IrMn, devido aos efeitos de tamanho finito da camada AFM. Sasao e col. [45] reportaram que a máxima intensidade do pico [111] nas medidas de difração de Raios-X, para o sistema  $\gamma\text{-Mn}_{100-x}\text{Ir}_x$ , acontece na composição  $\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}$ .

**Co** - O cobalto é um metal de transição  $3d$  que possui, comparado ao Fe e ao Ni, alta anisotropia uniaxial (Co hcp, sendo o eixo  $c$  de fácil magnetização, vide Fig.(2.2)) e um complexo equilíbrio entre as energias magnetostática, magnetoelástica e magneto-cristalina. Em filmes ultrafinos de Co, a contribuição magneto-cristalina é, na maioria dos casos, anisotrópica, portanto desempenhando uma forte influência sobre as propriedades magnéticas do filme. Neste sentido, a anisotropia magnética perpendicular de filmes de Co vem sendo exaustivamente estudada por sua dependência com a espessura do filme. O Co apresenta uma estrutura cristalina hcp à temperatura ambiente. A temperaturas superiores a 700 K, o Co *bulk* sofre uma mudança de fase para estrutura fcc [40]. O predomínio de uma fase ou da outra depende das condições de deposição, da espessura do filme e do substrato e/ou *buffer* utilizados. Em alguns casos, pode haver mudança de estrutura cristalina com o aumento da espessura de Co. Filmes de Co passam da fase fcc para hcp com o aumento da espessura. Todavia, deve ser lembrado que as propriedades dos filmes finos geralmente mostram desvios significativos em relação àquelas dos respectivos materiais *bulk* [50]. Um dos fatores que levam as diferentes propriedades é a questão das tensões que surgem na estrutura depositada, devido à diferença dos parâmetros de rede do filme e do substrato. Portanto, em filmes finos magnéticos, as propriedades magnéticas e eletrônicas são fortemente influenciadas por essas tensões internas de acoplamento e outros aspectos estruturais, o que torna de suma importância à investigação da estrutura física dos filmes depositados. Tanto o Co *bulk* hcp, como o fcc podem ocorrer em filmes finos, apresentando parâmetros de rede de  $a = 0,2507$  nm,  $c = 0,407$  nm e  $a = 0,3552$  nm, respectivamente.

## 2.9 Comportamento magnético das interfaces

### NiFe/IrMn e IrMn/Co

**Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>** - Yoon e col. [103] utilizando camadas sementes de Ta, Cr (bcc), Ti, Zr (hcp), Cu, Ag (fcc), com espessuras de 5 nm, estudaram o comportamento do crescimento na direção [111] em dois arranjos diferentes de bicamadas, com Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>(10 nm) e Ir<sub>19</sub>Mn<sub>81</sub>(20 nm). Estes materiais foram depositados sobre substrato de Si(100) por *magnetron sputtering* à temperatura ambiente. Para induzir uma anisotropia mag-

nética uniaxial na camada de NiFe aplicaram um campo magnético de 100 Oe durante o processo de deposição. O estudo da estrutura cristalina foi realizado por difração de Raios-X com radiação  $\text{Cu-K}\alpha$ , e os resultados estão apresentados na Fig.(2.11). Os autores observaram uma diferença significativa no comportamento do crescimento [111] do IrMn e do NiFe para as camadas sementes escolhidas. As camadas Ti, Zr e Ta foram as que apresentaram melhor crescimento na direção [111], indicando que os planos (111) da camada IrMn podem ser crescidos epitaxialmente sobre os planos (111) da camada de NiFe. Estas camadas sementes favoreceram também um maior valor de  $H_{EB}$  e menor  $H_C$  se comparadas com as outras camadas que não mostraram um pico de Bragg para o plano (111) significativo. Observaram também que a ordem do crescimento Si/camada semente/IrMn/NiFe e Si/camada semente/NiFe/IrMn fornecem resultados bastante distintos, sendo a melhor cristalinidade obtida para a configuração Si/camada semente/NiFe/IrMn.

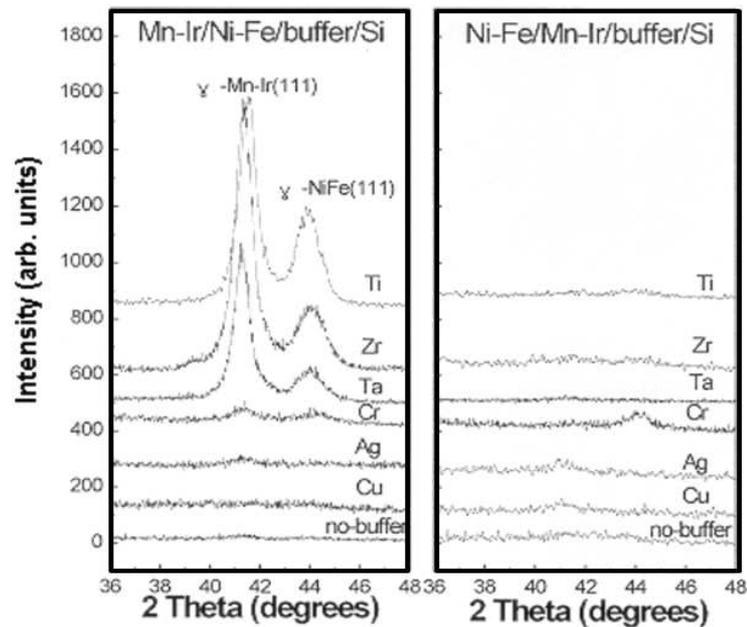


Figura 2.11: Difratoograma de Raios-X para a bicamada NiFe/IrMn para vários materiais de camada semente e duas seqüências de empilhamento [103].

Pokhil e col. [97] estudaram os sistemas NiFe/IrMn e NiFe/NiMn, onde a interface FM/AFM induz na camada FM, regiões com anisotropias unidirecional e a uniaxial, e a razão entre estas anisotropias depende do tipo de interface FM/AFM. Este resultado está de acordo com aquele reportado por Schulthess e Butler [104] em sistemas CoO/FM (onde FM= Co ou NiFe). King e col. [54] verificaram que a reversão da magnetização de

uma camada fina de NiFe, em bicamadas NiFe/FeMn e NiFe/IrMn, comporta-se similar nos dois sistemas, sendo que o  $H_{EB}$  é maior e o  $H_C$  é menor quando o antiferromagneto é o IrMn. Mishra e col. [66] reportaram a dependência dos campos  $H_{EB}$  e  $H_C$  com a espessura do  $t_{AFM}$  para o sistema NiFe/IrMn. O  $H_{EB}$  é praticamente nulo para  $t_{AFM}$  até 1 nm e depois aumenta significativamente. O  $H_C$  aumenta até 2 nm e depois diminui. Utilizando medidas de refletividade magnética ressonante por Raios-X moles (*soft x-ray resonant magnetic reflectivity*- XRMR), estes autores [66] observaram que os *spins* não compensados do AFM estão predominantemente congelados devido à inter-mistura química [66].

**Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>/Co** - A dependência do  $H_{EB}$  com a espessura do FM ( $H_{EB} \propto \frac{1}{t_{FM}}$ ) indica que o fenômeno de EB é um efeito de interface, onde este comportamento é, em geral, válido para filmes relativamente espessos (dezenas de nanômetros) e não para uma fina camada FM [10]. No entanto, a dependência do  $H_C$  com a espessura do FM é proporcional ao inverso da espessura da camada FM com expoente  $n$  [105, 106], ou seja,  $H_C \propto \frac{1}{(t_{FM})^n}$ , e valores de  $n = 1$  a 1.5 são observados [106]. As dependências de  $H_{EB}$  ( $\propto 1/t_{FM}$ ) e  $H_C$  são observados em sistemas de IrMn/Co e FeMn/Co, onde se varia a espessura da camada FM (Co). A conexão entre  $H_C$  e  $H_{EB}$  é relativamente mais complexa nos sistemas de Co do que nos com NiFe [39]. Esta complexidade no comportamento e valores de  $H_{EB}$  e  $H_C$  é reforçada, quando se varia a espessura da camada AFM [12]. Por exemplo, para o sistema de Co/Ir<sub>25</sub>Mn<sub>75</sub> [107] estudou-se a dependência do  $H_{EB}$  ao variar a espessura do IrMn, com medidas realizadas em diferentes temperaturas. Para o caso de medidas à temperatura ambiente, o efeito de EB se manifestou a partir de uma espessura crítica do IrMn  $t_c = 2,1$  nm, onde a espessura de saturação do efeito é de 4 nm, atribuídas a formação de uma parede de domínio parcial no AFM paralela sua interface com o FM [57]. Em temperaturas mais baixas, este efeito ( $H_{EB} \neq 0$ ) surge para espessuras  $t_c < 1,4$  nm, aumentando abruptamente a um valor máximo para espessuras próximas a 2 nm, e diminui até atingir à espessura de saturação. O  $H_C$  aumenta com a espessura da camada de IrMn para todas as temperaturas, no entanto, o aumento da temperatura desloca os picos de  $H_C$  para espessuras menores [107].

**Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>/Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>** - Para o sistema de tricamadas estudadas por ressonância ferromagnética (FMR), em que o campo estático é aplicado tanto para a configuração

perpendicular quanto para o caso paralelo ao plano do filme [108,109], da dependência angular do campo de ressonância ( $H_{res}$ ) no plano foi deduzido os valores do  $H_{EB}$  para ambas as interfaces (FM/AFM e AFM/FM), os quais estão de acordo com as medidas de magnetização [108]. Yuan e col. [109] observaram também que a largura de linha da camada de NiFe da interface inferior FM/AFM está relacionada a um maior  $H_{EB}$ . Nascimento e col. [108] observaram que à medida que se mudava as condições para a *sputtering* (pressão de trabalho de argônio (Ar) diferentes nas deposições) aparecia um aumento da rugosidade nas interfaces FM/AFM e AFM/FM. A pressão de Ar apresenta-se como um parâmetro importante para o controle da quantidade de difusão atômica nas interfaces, e consequentemente determina os valores dos parâmetros de EB nestes tipos de sistemas. Os resultados também mostraram que a rugosidade na interface inferior FM/AFM é sempre menor que na interface superior AFM/FM [108,110]. Este resultado indica que a desordem atômica interfacial no sistema NiFe/FeMn/NiFe é influenciada pela ordem de deposição [111], gerando uma forte difusão atômica na interface superior AFM/FM. Um efeito de EB assimétrico foi investigado por Lee e col. neste sistema [110]. A diferença nos valores de  $H_{EB}$  para ambas as interfaces é devida à rugosidade das mesmas FM/AFM e AFM/FM, onde foi constatado que a do AFM aumenta com sua espessura.

**Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>/Co<sub>84</sub>Fe<sub>16</sub>** - Através de medidas XRMR foi reportada a formação de duas diferentes regiões com *spins* não-compensados na camada AFM. Laços de histerese magnético  $M(H)$  foram obtidos na borda  $L_3$  do Mn, exibindo um caráter de laço duplo, indicando a existência de *spins* não presos na região não-compensada. Além disso, foi encontrado também  $T_B$ 's diferentes para cada região das interfaces [112].

## Capítulo 3

# Técnicas de Preparação e Caracterização

### 3.1 Técnica de Deposição por *Magnetron Sputtering*

*Sputtering* é um processo no qual partículas de um material sólido, chamado "alvo" (em inglês, *target*), são ejetadas devido ao bombardeamento por íons de gases inertes (em nosso caso usou-se  $\text{Ar}^+$ ). O fenômeno ocorre devido a um campo elétrico aplicado entre dois eletrodos, o cátodo (alvo) e o ânodo (chaminé), de forma a produzir uma aceleração de íons gerados pela ignição do "gás". Esses elétrons colidem com átomos neutros do gás de Ar, ionizando-os ( $\text{Ar}^+$ ) e gerando também elétrons livres, formando, conseqüentemente, uma descarga gasosa luminosa chamada de plasma, que não reage com o material alvo. Durante a interação entre os íons do plasma e a superfície do alvo, vários fenômenos podem ocorrer em virtude da energia adquirida pelo íon até o momento da colisão. Os íons positivos  $\text{Ar}^+$  podem principalmente :(i) sofrer reflexão; (ii) provocar a ejeção de elétrons secundários dos átomos do alvo; (iii) implantar-se no alvo; (iv) ou ejetar átomos do alvo (*sputtering*), sendo este o processo de interesse em nosso caso. Esse processo é favorecido quando a energia cinética adquirida pelos íons de  $\text{Ar}^+$  for da ordem de 4 vezes a entalpia de formação do material do alvo [24]. Se um "substrato", tal como uma lâmina de silício, é colocado no caminho dessas partículas ejetadas haverá

um revestimento por um filme fino composto dos átomos do alvo.

Há, pelo menos, dois importantes processos de *sputtering*: o convencional e o *magnetron*. O sistema *sputtering* diodo convencional possui algumas desvantagens, tais como: a) pressão mínima de aproximadamente 30 mTorr, gerando filmes menos homogêneos e mais rugosos; b) degradação dos eletrodos, entre outras. Neste trabalho de tese, utilizou-se o sistema *magnetron sputtering*, capaz de depositar camadas mais homogêneas e menos rugosas. Neste processo pode-se trabalhar com pressões menores e com um maior controle na taxa de deposição.

### *Magnetron Sputtering*

A ideia de usar um campo magnético para aumentar a ionização foi sugerida por F. M. Penning [113] em 1935. Só em 1960, introduziu-se o *magnetron* no sistema *sputtering*, dando origem a pulverização catódica com *magnetron*, convertendo-se numa das técnicas de pulverização mais importantes na indústria e na pesquisa. Essa configuração permitiu maior controle no processo de deposição, conseqüentemente melhor eficácia no processo de formação dos filmes (controle do crescimento, rugosidade, homogeneidade, etc.).

O sistema *magnetron sputtering* consiste no estabelecimento de uma região de campos elétrico e magnético nas proximidades da superfície do alvo que será preferencialmente atingida (vide Fig.3.1). O campo elétrico é produzido por fontes DC ou RF na direção perpendicular ao plano do alvo, enquanto que o campo magnético é produzido por ímãs permanentes. O sistema *magnetron sputtering* utilizado é do tipo cilíndrico transversal, onde os magnetos (ímãs) distribuem-se em forma de circunferência, com um magneto adicional no centro da circunferência formada pelos outros ímãs. O magneto central possui polarização inversa, de forma que as linhas de campo fazem trajetórias curvilíneas da borda do *magnetron* para o centro, conforme representado na Fig.(3.1). Essa configuração dos magnetos produz em uma região próxima ao alvo onde o campo elétrico e o campo magnético são transversais. Os *magnetrons*, com um campo magnético paralelo à superfície do alvo, são utilizados para confinar os elétrons secundários ejetados do alvo

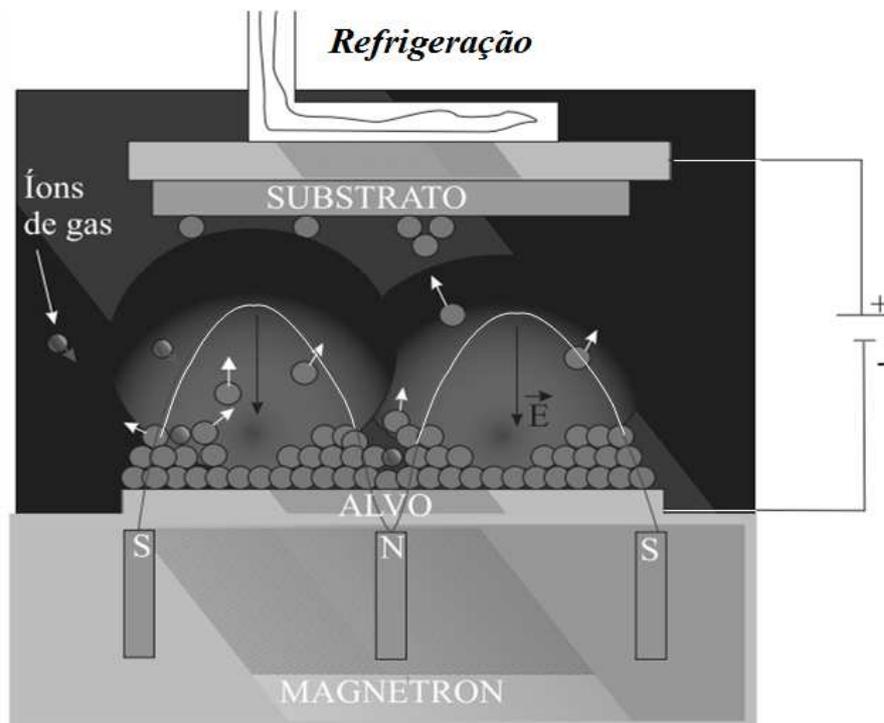


Figura 3.1: Esquema de uma fonte *magnetron sputtering*, onde destacam-se o alvo do material do qual se deseja formar o filme, o substrato e seu sistema de refrigeração, átomos iniciando a deposição, e os ímãs permanentes que colimam o feixe de íons responsáveis pelo *sputtering* do alvo [114].

durante as colisões, forçando-os a percorrerem as linhas de campo numa trajetória helicoidal. Isto aumenta substancialmente a probabilidade de ionização dos átomos do gás, resultando em um plasma mais denso na região do alvo. Este, por sua vez, conduz a um aumento do bombardeamento iônico do alvo, obtendo taxas de deposição mais elevadas. Em resumo, o campo magnético age como se a pressão do gás de trabalho tivesse sido aumentada. Devido ao confinamento do plasma, o sistema *magnetron sputtering* cilíndrico pode trabalhar com baixas pressões de Ar (em torno de 2 mTorr), o que favorece à produção de filmes bem estruturados e de baixas rugosidades [24]. Quando se mistura o gás inerte a outros gases reativos, como O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, entre outros, para a formação de óxidos, nitretos, etc., o processo chama-se *sputtering* reativo.

As principais vantagens desta técnica de crescimento são:

- Permite uma deposição uniforme sobre grandes áreas utilizando alvos de diâmetros grandes;
- Controle da espessura (taxa de deposição) pelo controle dos parâmetros de pro-

cesso;

- Limpeza de superfície do alvo por pré-*sputtering*, antes da deposição;
- Deposição de multicamadas com a utilização de alvos múltiplos;
- Não produz Raios-X

Uma grande desvantagem da pulverização catódica em *magnetron* se deve a grande "perda" de material do alvo, devido ao fato do plasma estar concentrado sobre uma porção limitada da área total da superfície do alvo. Esta concentração conduz à formação de uma pista/vale circular no alvo, visto que é pulverizado mais material neste local do que em qualquer outra parte do alvo. Tipicamente no processo por *magnetron* prevê-se que apenas 25-30% do material total do alvo seja pulverizado [18].

### ***Magnetron Sputtering por DC***

Para a deposição de materiais metálicos e suas ligas, com boa condutividade elétrica, geralmente é utilizada uma diferença de potencial fornecida por uma fonte DC. Através desta diferença de potencial, os íons de  $\text{Ar}^+$  são acelerados em direção oposta aos elétrons, e bombardeiam o alvo (mantido em um potencial negativo). Através de colisões elásticas, os íons de  $\text{Ar}^+$  ejetam átomos do alvo com alta energia que, por sua vez, migram em direção ao substrato, formando o filme. Este processo só ocorre se houver condições satisfatórias de tensão aplicada e densidade de gás.

### ***Magnetron Sputtering por RF***

Se o alvo for composto por um material isolante de baixa condutividade (dielétrico), os íons de  $\text{Ar}^+$  que chegam ao alvo, para o desgaste, concentram-se na sua superfície, criando, por sua vez, um potencial de blindagem que impede a aceleração de outros íons e a emissão de elétrons secundários, necessários para a auto-sustentação do plasma. Para contornar esta situação, utiliza-se uma fonte RF, criando o processo de *magnetron*

*sputtering* por RF, que induz uma inversão de polarização na superfície do alvo, forçando os elétrons a oscilarem, sem formar a blindagem que impede a sustentação do plasma [115]. Essa técnica também é aplicável para alvos condutores, entretanto o *magnetron sputtering* DC é frequentemente mais usado para metais.

### 3.1.1 Equipamento *Magnetron Sputtering* instalado no LEMAG

O equipamento utilizado nesta tese para o crescimento dos filmes finos foi o sistema *magnetron sputtering*, modelo *ATC ORION* da empresa *AJA International*, instalado no Laboratório de Espectroscopia Mössbauer e Magnetometria (LEMAG) da Universidade Federal do Espírito Santo (UFES) (vide Fig.3.2). Este sistema, por ser completamente automatizado, possui facilidade de operação, rapidez na preparação dos filmes, excelente reprodutibilidade e é bastante versátil.

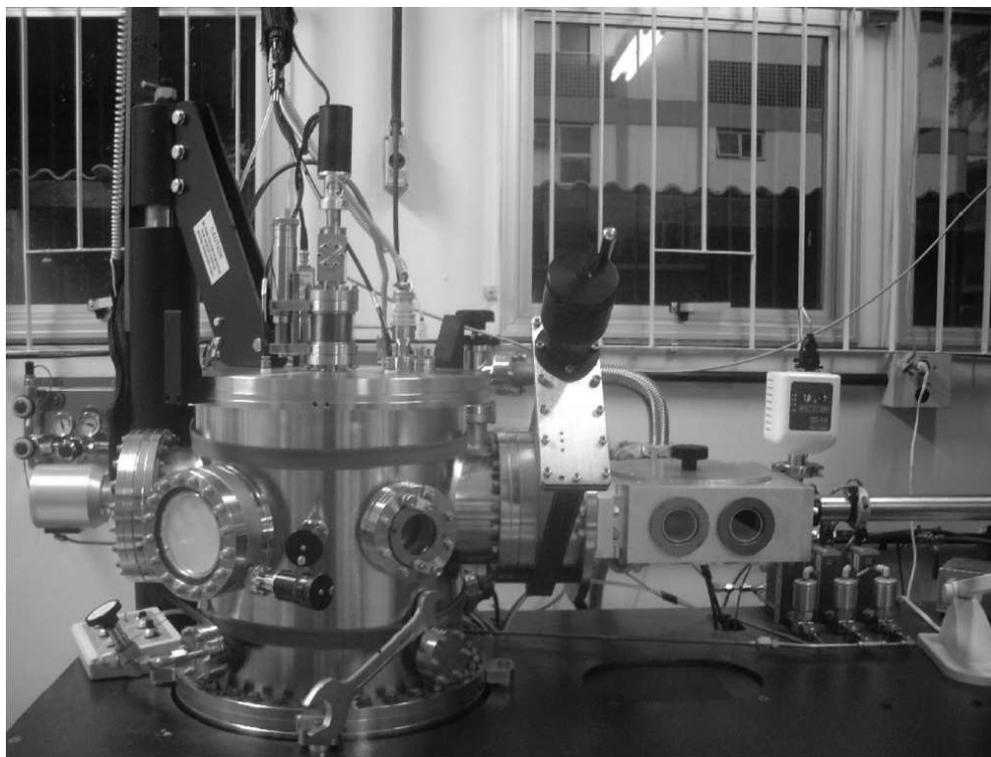


Figura 3.2: Equipamento *Magnetron Sputtering* instalado no LEMAG.

## Câmara Principal

Na câmara principal, também chamada de câmara de deposição, estão dispostos os *magnetrons* (canhões) que são envoltos por uma casca cilíndrica chamada *shield*, que impede a abertura do plasma em regiões onde o desbaste não é desejado (concentração da região do plasma). Sobre os canhões estão dispostos os materiais que serão depositados, chamados de alvos, e com dimensões e espessuras fornecidas pelos fabricantes (diâmetro de 2"). Esses *magnetrons* são ligados às fontes de potencial DC (ou RF segundo o tipo do material do alvo). As vezes é necessário utilizar um anel (alumínio) de suporte para fixar o alvo no *magnetron*, devido ao diâmetro do alvo ser menor do que a dimensão de 2", padrão nesse equipamento. Para alvos magnéticos colocou-se uma chapa de cobre para evitar o contacto direto com os imãs (vide Fig.3.3). No *sputtering*/LEMAG estão instalados 7 canhões (vide Fig.3.4), que possibilitam a deposição de 7 materiais diferentes simultaneamente. Estes alvos/*magnetrons* podem ser alimentados por três fontes de alimentação de corrente contínua (DC) e por três fontes de alimentação de rádio frequência (RF). As fontes DC são da Série DCXS-750-4 *Multiple Sputter Source DC Power Supply* da *AJA International* e, possuem 4 saídas não simultâneas. A voltagem entre o substrato e o alvo determina a energia com que os íons de  $\text{Ar}^+$  chegam ao alvo, de modo que esta voltagem está intimamente ligada a taxa de deposição [18]. Duas das três fontes RF instaladas no *sputtering*/LEMAG são da Série MC2-*Automatic Matching Network Controller* da *AJA International*, enquanto a terceira é manual da Série MM3X, usada tanto para a deposição como para gerar uma tensão de bias no substrato.

Além disso, uma célula resistiva encontra-se instalada na parte central da base entre os *magnetrons* (vide Fig.3.4). Esta célula de evaporação térmica serve para a deposição de materiais em forma de ligas metálicas não comerciais e metais enriquecidos com isótopos, por exemplo  $^{57}\text{Fe}$ .

O sistema instalado no LEMAG mantém os canhões (*gun*, em inglês) na configuração co-focal, apontado ao centro de um porta-substrato giratório que encontra-se na parte superior da câmara principal (vide Fig.3.3). O porta-substrato está conectado a um motor de passo que gira com uma velocidade constante de 0 a 40 rpm (utilizou-se 30 rpm),

durante o processo de deposição. Esta rotação é necessária para manter a homogeneidade lateral na espessura no filme. Manteve-se a distância do alvo ao substrato, sugerido pelos fabricantes do *sputtering*, de 38 cm para todas as deposições. Faz parte do porta-substrato um aquecedor resistivo PID-*Proportional Integral Differential Heater Controller* (*SHQ-15A*) da *AJA*, que permite que o substrato seja aquecido à temperatura desejada, podendo atingir até 850°C.

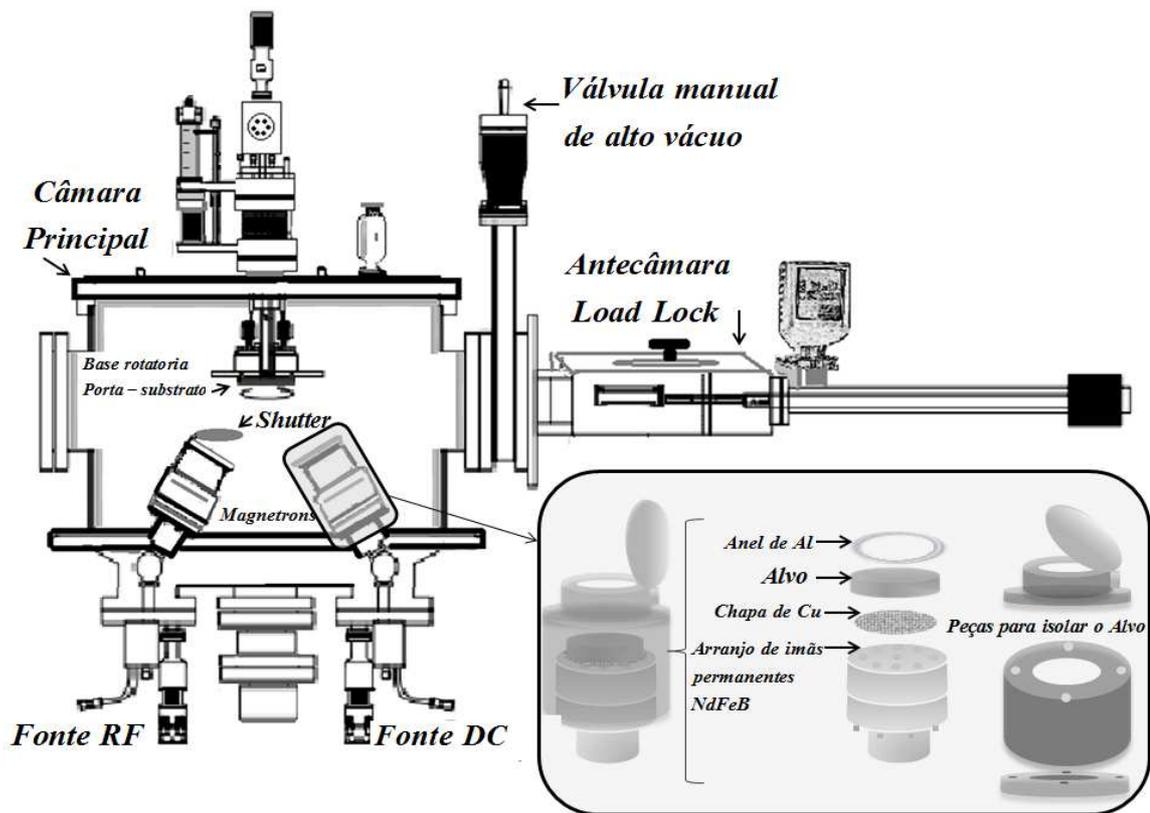


Figura 3.3: Representação esquemática do *Magnetron Sputtering* instalado no LEMAG.

A câmara de deposição tem uma bomba turbo-molecular de ultra-alto vácuo (UHV, do inglês, *Ultra-high vacuum*) da marca *Pfeiffer Vacuum* TMU521P, que está conectada a uma bomba mecânica (*Adixen Série ACP,15*) que, por sua vez, é responsável pelo pré-vácuo. O vácuo da câmara atinge pressão da ordem de  $2 \times 10^{-8}$  Torr (chamada de pressão de base). O conhecimento e a qualidade da pressão de base, que é a pressão interna da câmara antes da deposição, são de grande importância para a obtenção de filmes de boa qualidade. Substâncias da atmosfera residual tais como:  $N_2$ ,  $H_2O$ ,  $CO_2$ , entre outras podem estar presentes, dependendo das características de bombeamento da linha de vácuo, e influenciam diretamente nas propriedades dos filmes [18]. Suas existências, na atmosfera residual do equipamento *sputtering*/LEMAG, foram analisadas pelo RGA

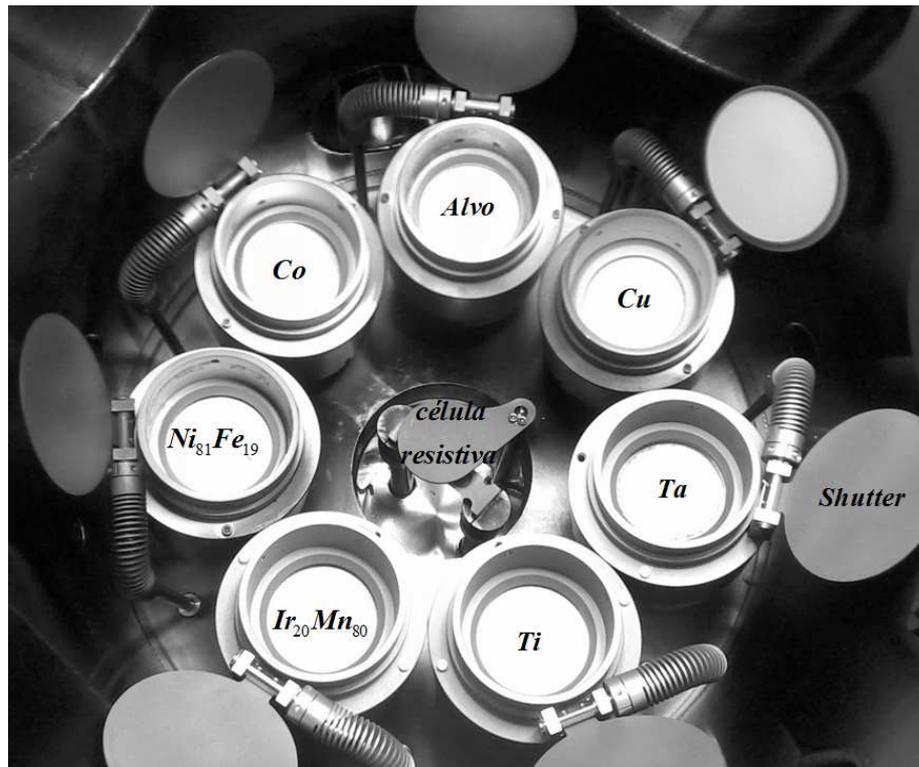


Figura 3.4: Imagem do interior da câmara principal, onde observar-se a disposição dos 7 alvos e da célula de evaporação térmica.

(*Residual Gas Analyzer*), da marca HORIBASTEC, que encontra-se instalado na câmara principal. O problema da qualidade e conhecimento no gás residual pode ser minimizado através de uma linha de vácuo controlada, e com o aquecimento das paredes da câmara durante a obtenção do vácuo. Nosso sistema apresenta uma cinta resistiva (*Heating Tape & Percentage Control*) da marca OMEGALUX, que ajuda a melhorar o vácuo durante o processo inicial de bombeamento. Esta fita resistiva, em geral, fica energizada durante a abertura rápida da câmara de deposição. Além disso, tem uma linha de gás que ajuda a manter a mesma atmosfera quando há necessidade da quebra de vácuo da câmara de evaporação.

O *sputtering*/LEMAG conta com 3 controladores de fluxo de gás (2 de Argônio e 1 de Oxigênio) na faixa de 0 a 100 sccm (*standard cubic centimeters per minute*). Como existe um aquecimento considerável durante o processo de *sputtering* no porta-substrato, e nos alvos, causado pelo choque contínuo de elétrons e íons energéticos, o sistema possui um sistema de refrigeração.

### ***Load-Lock***

A antecâmara, também chamada câmara de pré-vácuo (*Load Lock Chamber* - LLC, em inglês), está acoplada à câmara principal por uma válvula manual de UHV, que permite colocar e retirar o porta-substrato da câmara principal sem quebrar o vácuo da câmara principal. A antecâmara tem bombeamento independente da câmara principal, e o seu vácuo atinge até  $2 \times 10^{-7}$  Torr em poucos minutos.

Controla-se a deposição dos materiais por um computador através do sistema de controle *Phase II-J*. Este sistema permite ao usuário operar manualmente ou, no modo de processo automático. Neste último, o usuário consegue detalhar os parâmetros a serem utilizados durante a deposição, permitindo variar o tempo da deposição de cada camada, o acionamento da abertura e fechamento dos *shutters*, o controle da pressão de trabalho através da inserção constante do gás, o controle do motor de passo, a temperatura do substrato e acionamento do plasma por meio dos *magnetrons*, que estão ligados por meio das fontes DC e/ou RF, bastando para isto montar uma sequência de operação que será executada via PC. As sequências podem ser modificadas de acordo com as espessuras e, o número de repetições das multicamadas, entre outras características que se deseja durante a preparação dos filmes. O processo é abortado se o plasma não é detectado. O controle de posicionamento do porta-substrato é feito manualmente.

## **3.2 Detalhes da preparação e deposição das amostras por *Magnetron Sputtering***

### **Limpeza dos substratos**

Uma etapa decisiva no processo de crescimento dos filmes é a limpeza dos substratos. A presença de contaminantes na sua superfície pode provocar:

- (a) Uma baixa adesão da camada sobre o substrato;
- (b) A difusão de impurezas pela superfície e pelo interior da amostra e

(c) Outros problemas que prejudicam a qualidade do filme crescido.

Usa-se, neste trabalho, um procedimento e bastante utilizado para a limpeza dos substratos, o qual consiste na limpeza com solventes orgânicos na seguinte sequência:

- Cortam-se os substratos de um disco de Si(100) de diâmetro 10 cm em pedaços de dimensões adequadas para realizar as medidas de caracterização (marca-se em cada pedaço a orientação inicial do disco),
- Para limpeza inicial, inserem-se os substratos num *becker* preenchido com detergente neutro e água destilada e submetidos a um ultra-som por 10 minutos, com o intuito de retirar eventuais gorduras ou óleos superficiais no substrato. Após, este tempo, enxaguam-se os pedaços do substrato de Si com água destilada até a retirada total do detergente;
- Em seguida, submerge-se os substratos em acetona P.A. e novamente submetem-se ao ultra-som por mais 10 minutos. Em seguida, retira-se a acetona e;
- Do mesmo modo, fazem-se a imersão dos pedaços de Si em álcool isopropílico P.A. nas mesmas condições por mais 10 minutos [116].
- Depois, troca-se o álcool isopropílico P.A. do *becker* e deixam-se imersos os pedaços de Si. Cobre-se o *becker* com papel alumínio para reduzir a evaporação do álcool.

A secagem dos substratos se faz com um bico de nitrogênio ionizado da marca *Ion Tech* com a tecnologia *shockless* (sem choque) com quatro pontos de ionização (agulhas), para neutralização e limpeza de cargas simultaneamente (usa-se a pressão de trabalho de 100 psi). Utiliza-se esse procedimento para evitar a contaminação por poeira do ambiente sobre o substrato de Si.

### Preparação para deposição

Os alvos utilizados para a preparação das amostras têm acima de 99,95% de pureza (maiores detalhes encontram-se na Tabela 3.1). Estes são inseridos na câmara principal com o devido cuidado de que alvos magnéticos sejam colocados em *magnetrons* com

configuração para alvos magnéticos. Os substratos, por sua vez, são inseridos ou retirados pela antecâmara, sem quebrar o vácuo da câmara principal, conforme discutido acima.

Antes de iniciar a deposição, faz-se necessário realizar uma limpeza na superfície do alvo, de forma a remover suas primeiras camadas atômicas, as quais encontram-se contaminadas por impurezas nelas absorvidas ou óxidos. Como os óxidos diminuem a condutividade do material, a limpeza dos alvos é geralmente efetuada, utilizando a fonte RF [24]. Este procedimento é conhecido como pré-*sputtering*. Durante esta limpeza, o substrato deve estar protegido para evitar que estas partículas contaminantes, como óxidos, se depositem em sua superfície (ou usa-se os obturadores dos *magnetrons* ou mantem-se os substratos na antecâmara). O obturador (*shutter*) é uma placa delgada de aço inox com a forma de um setor de circunferência que se interpõe entre o alvo e o substrato, o qual possibilita que as partículas ejetadas do alvo se depositem ou não sobre o substrato.

Com ambiente de UHV na ordem de  $10^{-8}$  Torr, a câmara principal é preenchida com gás de Argônio (Ar) ultra-puro (99,999% - 5N) a uma pressão de  $2 \times 10^{-3}$  Torr, chamada pressão de trabalho. Através do controle do fluxo de Ar e da abertura da válvula gaveta semi-automática, obtém-se a pressão de trabalho desejada. A pressão de trabalho do gás de Ar é controlada de acordo com a taxa de deposição desejada; taxa que também depende do material do alvo. Com o aumento da pressão, aumenta-se também a taxa de deposição até certo limite; a partir deste, tem-se uma queda abrupta devido ao espalhamento do material ejetado de volta ao alvo e outros fatores [18]. Neste trabalho, usou-se a pressão de gás de Ar em 2 mTorr; já que nesta pressão a interdifusão nas interfaces é baixa [24].

### Alvos e cálculo das taxas de deposição

Para determinar com precisão a espessura do filme, a taxa de deposição é de crucial importância. Para um dado material, a taxa de deposição e a homogeneidade são influenciadas pelos seguintes fatores:

- A geometria - a distância do alvo ao substrato, ou tamanho do alvo para um sistema de geometria fixa;

- O gás de *sputtering* - influencia nas taxas de deposição da mesma maneira em que afeta o rendimento do *sputtering*;
- A potência - As taxas são linearmente proporcional à potência e, diminui com o aumento da separação alvo-substrato;
- A pressão de trabalho do gás;
- A voltagem, entre outros.

Uma vantagem do equipamento *sputtering* do LEMAG é possuir um cristal de quartzo instalado na câmara principal. Este, por sua vez, é posicionado na região próxima do porta-substrato, permitindo assim obter uma estimativa da taxa de deposição do material. Como ele é instalado em um braço móvel pode ser usado, após calibração, para acompanhar o processo de deposição dos filmes. O monitor do cristal de quartzo *McVac* modelo MCM-160 mede espessuras de cerca de uma única camada atômica com uma precisão relativamente alta. O programa do *McVac* precisa dos parâmetros de densidade, *Z-ratio* e *tooling factor* do material. A vida útil do cristal de quartzo depende da quantidade total de material depositado sobre ele, e portanto, deve ser substituído de tempo em tempo.

Em primeiro lugar, buscou-se obter as taxas e condições necessárias para cada material alvo com o cristal. Em um segundo momento, iniciou-se a preparação de filmes únicos de cada material (filmes de espessuras de aproximadamente 50 nm de espessura), que serviram para calibrar as taxas.

Uma técnica amplamente usada para o cálculo da espessura é a difração de Raios-X em ângulos rasantes, tipicamente,  $2\theta < 15^\circ$  (para Cu- $K_\alpha$  médio), conhecida como Refletividade de Raios-X (mais detalhe na Sec.3.3.1). Esta técnica serviu para obter a taxa de deposição de um filme com a espessura nominal estimada pelo cristal. Então, o que se fez foi a obtenção de uma curva de refletividade de Raios-X de filmes individuais de cada alvo. De maneira ilustrativa na Fig.(3.5) apresenta-se a curva de refletividade experimental obtida para uma camada única de IrMn depositada por *magnetron sputtering* DC sobre um substrato de Si(100). Da análise dos espaçamentos (separação angular)

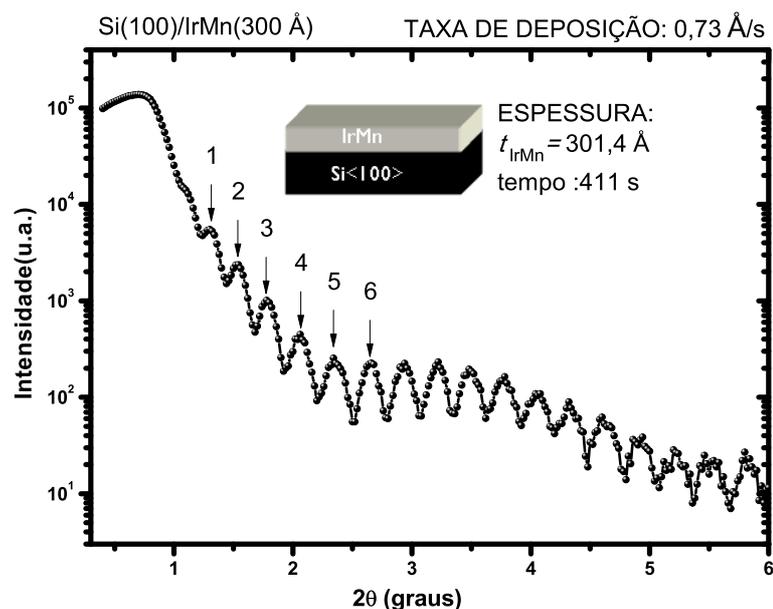


Figura 3.5: Refletividade de Raios-X do filme de IrMn depositado em substrato de Si(100) por *Magnetron Sputtering*. Os números 1-6 indicam os pontos usados para o cálculo da espessura final depositada.

das franjas de *Kiessig* das curvas de refletividade de Raios-X para cada camada única e, utilizando a Eq.(3.6) a ser discutida abaixo, obtiveram-se as espessuras. Conhecendo os tempos de deposição, determinaram-se as taxas para a produção dos filmes. Por exemplo, para a camada única de IrMn (imagem indexada na Fig.3.5), com o cristal de quartzo, encontrou-se a taxa de deposição de 0,07 nm/s, valor confirmado pelas medidas de refletividade. Os parâmetros e as condições otimizadas camadas únicas (individuais) aplicam-se para a deposição das amostras (tricamadas) desta tese.

As taxas de deposição, bem como as condições de ignição DC para a preparação dos filmes, apresentam-se na Tabela 3.1.

Tabela 3.1: Taxas de deposição dos alvos utilizadas na preparação dos filmes

Alvos	Pureza (%)	Corrente (mA)	Tensão(V)	Potência (W)	Taxa (nm/s)
Cu	99,995%	100	391	39	Tx=0,073
Ta	99,99%	512	415	213	Tx=0,145
Ni <sub>81</sub> Fe <sub>19</sub> (wt%)	99,95%	300	367	110	Tx=0,074
Ir <sub>20</sub> Mn <sub>80</sub> (at%)	99,95%	210	368	77	Tx=0,073
Co	99,95%	308	423	129	Tx=0,083

### 3.2.1 Amostras preparadas

Prepararam-se duas séries de amostras variando a camada semente com o intuito de modificar a textura do filme. Na Série-A, a camada semente é de Cu e, na Série-B é utilizado o Ta. Cresceram-se os filmes sobre substratos de Si(100) monocristalino. A camada semente é denotada por X (onde X é o Cu ou Ta) e possui espessura de  $t_{buffer} = 10$  nm. A camada  $FM_1$  é de  $Ni_{81}Fe_{19}$ , um material FM mole com espessura  $t_{NiFe} = 20$  nm. A camada AFM é do  $Ir_{20}Mn_{80}$  e sua espessura  $t_{IrMn}$  é variada. A camada  $FM_2$  é um FM duro, escolhido o Co com espessura de  $t_{Co} = 10$  nm. Para evitar a oxidação deste empilhamento é depositada a camada protetora, que é sempre do mesmo material usado na camada semente X(Cu ou Ta), mas com espessura  $t_{cap-layer} = 10$  nm. Então, a configuração resultante é:

$$Si(100)/buffer(t_{buffer})/FM_1(t_{FM1})/AFM(t_{AFM})/FM_2(t_{FM2})/Cap-layer(t_{cap-layer})$$

Onde a sequência de deposição das camadas esquematiza-se na Fig.(3.6).

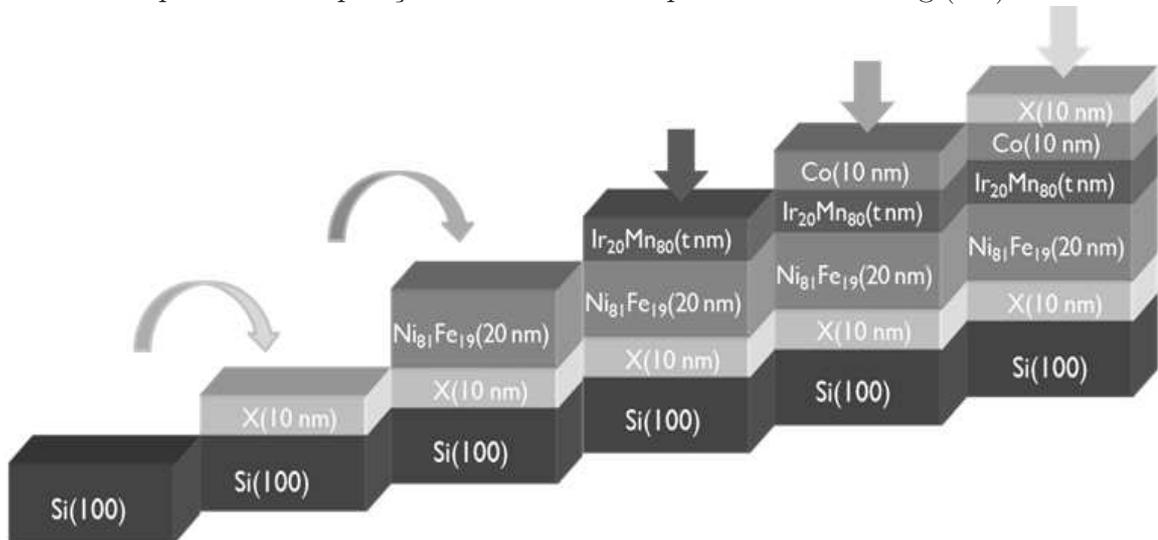


Figura 3.6: Representação esquemática das etapas de deposição dos filmes, onde X= Cu ou Ta são as camadas semente e protetora.

Apresentam-se, na Tabela 3.2, as duas séries de amostras preparadas, com espessura do AFM  $t_{IrMn}$  variada. Daqui em diante, representam-se as séries no texto, nas figuras e nas tabelas de acordo com a seguinte nomenclatura: Série-A por  $t_{IrMn}^{Cu}$ , e a Série-B por  $t_{IrMn}^{Ta}$ .

Tabela 3.2: Características e definições das tricamadas preparadas por *magnetron sputtering* DC para esta tese.

Substrato<orientação>/Camada Semente/FM <sub>1</sub> /AFM/FM <sub>2</sub> /Camada protetora					
Substrato	Semente ( <i>Buffer</i> )	Filme FM <sub>1</sub>	Filme AFM	Filme FM <sub>2</sub> ( <i>Cap-layer</i> )	Protetora
Série-A Si(100)	Cu $t_{Cu}=10$ nm	NiFe $t_{NiFe}=20$ nm	IrMn $t_{IrMn}=3, 4, 5, 6, 7, 8, 12, 15$ nm	Co $t_{Co}=10$ nm	Cu $t_{Cu}=10$ nm
Série-B Si(100)	Ta $t_{Ta}=10$ nm	NiFe $t_{NiFe}=20$ nm	IrMn $t_{IrMn}=4, 6, 8, 12, 15, 18, 20, 24, 30$ nm	Co $t_{Co}=10$ nm	Ta $t_{Ta}=10$ nm

Detalham-se, na Tabela 3.3, condições utilizadas para o crescimento dos filmes finos de tricamadas obtidos pela técnica de *magnetron sputtering* DC.

Tabela 3.3: Parâmetros utilizados durante a deposição dos filmes das séries A e B.

Pressão de Trabalho	$P_T=2,0 \times 10^{-3}$ Torr
Pressão de Base	$P_B=6 \times 10^{-7}$ - $2 \times 10^{-8}$ Torr
Tipo de Ignição	DC
Rotação	R=30 rpm
Distância alvo-substrato	d=38 cm

### 3.3 Caracterização Estrutural dos filmes

#### 3.3.1 Difração de Raios-X

Para a análise da estrutura cristalina, textura e a identificação das fases presentes nas amostras, realizaram-se medidas de difração de Raios-X. Nesta tese, foca-se a determinação da espessura das camadas individuais (Sec.3.2) por difração de Raios-X a ângulos rasantes (Refletividade) e o caráter estrutural das camadas por medidas de difração de Raios-X convencional.

Realizou-se a caracterização estrutural dos filmes pela técnica de difração de Raios-X (XRD: do inglês *X-Ray Diffraction*), num difratômetro da marca *RIGAKU* modelo Ultima IV. Este equipamento possui um goniômetro horizontal, um detector para medida da intensidade dos Raios-X, um tubo de Raios-X, que possui um anodo de cobre (Cu), que opera com a linha  $K\alpha$  de  $\lambda$  igual 0,15418 nm. A radiação  $K\beta$  do tubo de cobre é absorvida usando um filtro de níquel. Consegue-se fazer uma varredura angular na faixa de  $-3^\circ \leq 2\theta \leq 162^\circ$ . O Ultima IV inclui a tecnologia CBO (*Cross Beam Optics*), patentada pela *RIGAKU*, que utiliza uma montagem de componentes óticos alinhados simultaneamente para geometrias de feixe divergente (*Bragg-Brentano*) e de feixe paralelo (*Parallel Beam*), como ilustra-se na Fig.(3.7). Este acessório permite mudar de geometria, variando os tipos de fendas e fazendo um alinhamento simples.

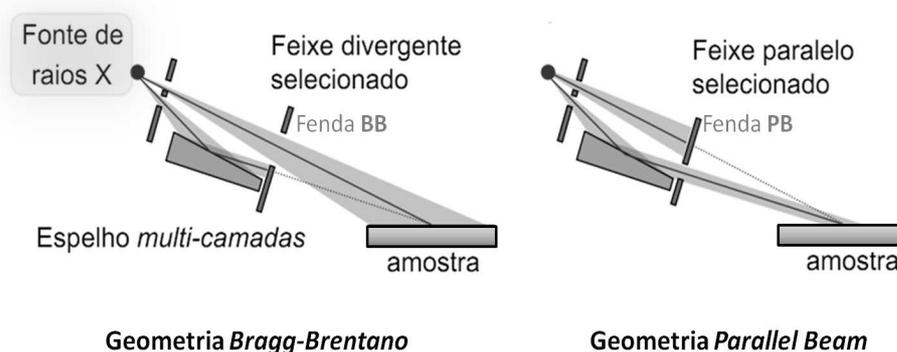


Figura 3.7: Geometrias disponíveis no Difratômetro RIGAKU, *Bragg Brentano* e *Parallel Beam* instalado no LEMAG/UFES.

### Difração Convencional

Usou-se a técnica de difração convencional ( $2\theta > 20^\circ$ ) para determinar a estrutura cristalográfica dos filmes. Esta medida é baseada na geometria de *Bragg-Brentano*, onde o tubo e o detector movem-se acoplados no intervalo de ângulos  $\theta$ - $2\theta$  desejados. Na Fig.(3.8) mostra-se o difratômetro *RIGAKU* e seus componentes usado neste trabalho para as medidas convencionais.

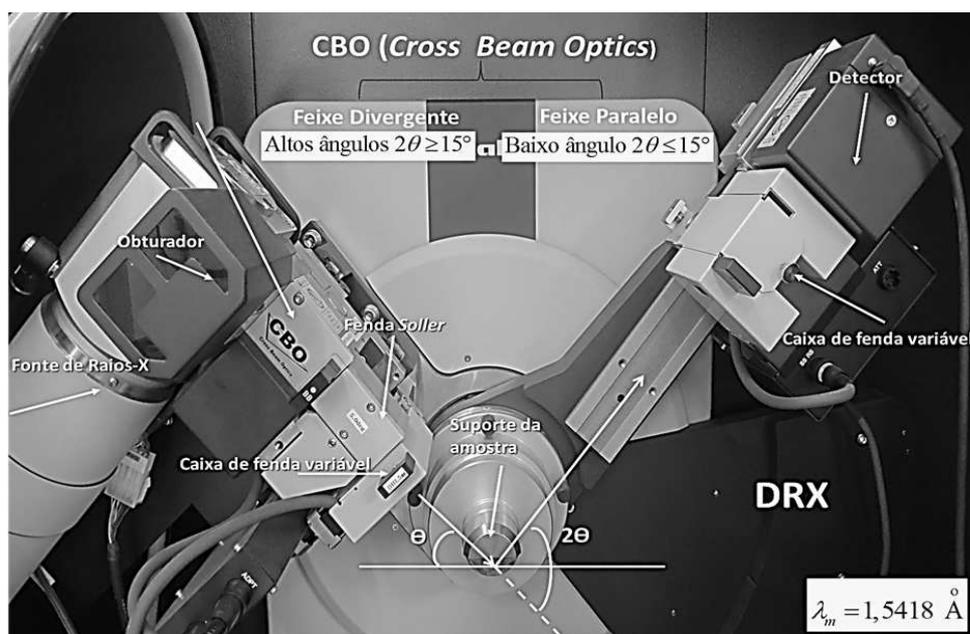


Figura 3.8: Difratômetro RIGAKU; sistema usado para medidas de Raios-X em filmes.

A estrutura de um filme fino satisfaz a lei de Bragg para todo ângulo  $\theta$  onde haja condição de interferência construtiva:

$$n\lambda = 2d \sin \theta. \quad (3.1)$$

sendo  $\theta$  é o ângulo entre a direção do feixe incidente e o plano da amostra,  $d$  a distância interplanar entre os planos cristalinos, que depende da orientação dos planos cristalinos da amostra identificadas pelos índices  $(hkl)$ ,  $\lambda$  o comprimento de onda da radiação e  $n$  a ordem da difração (em nosso caso,  $n=1$ ). Somente os planos cristalinos paralelos ao plano da amostra são observados. Esta lei só é satisfeita para a condição  $\lambda \leq 2d$ . Descrições detalhadas da técnica de difração de Raios-X encontram-se na literatura [117–120].

### Refletividade de Raios-X

Outra técnica amplamente usada é a difratometria de Raios-X a ângulos rasantes, tipicamente  $2\theta \leq 15^\circ$ , também chamada Refletividade de Raios-X (XRR, do inglês *X Ray Reflectivity*). De uma curva de refletividade determinam-se: (i) a espessura das camadas (vide a Sec.3.2), (ii) a rugosidade e (iii) o grau de interdifusão atômica nas interfaces das multicamadas, por exemplo. Quando um filme de densidade uniforme é depositado

sobre um substrato, a refletividade normal de Fresnel do substrato torna-se modulada por oscilações, devido às interferências entre as ondas refletidas na interface ar/superfície do filme e as ondas refletidas na interface do filme/substrato. Estas oscilações são chamadas de franjas de *Kiessig*. O período das franjas é aproximadamente inversamente proporcional à espessura da camada: quanto mais grosso o filme, menor é o período de oscilação, e vice-versa [121].

O ângulo que o raio incidente faz com o substrato do filme não é mais simplesmente  $\theta$  e sim um ângulo de incidência corrigido  $\theta_c$ , que sofreu refração ao passar do ar para o filme e pode ser obtido através da lei de *Snell* [121]:

$$n \cos(\theta_c) = \cos(\theta). \quad (3.2)$$

onde  $n$  é o índice de refração do filme dado pela relação  $n=1-\delta-i\beta$ .  $\delta$  e  $\beta$  representam os coeficientes de espalhamento e absorção do material, respetivamente. A lei de Bragg modificada é escrita como [24]:

$$k\lambda = 2t \sin(\theta_c). \quad (3.3)$$

onde  $t$  é a espessura do filme,  $k$  é a ordem da reflexão. Considerando só a parte real de  $n$ , temos:

$$\sin^2(\theta) = \left(\frac{n\lambda}{2t}\right)^2 + 2\delta. \quad (3.4)$$

Para  $\lambda=1,5418$ , os valores típicos de  $\delta$  ( $3 \times 10^{-5}$ ) somente causam variações significativas no valor de  $t$  para ângulos  $2\theta < 3^\circ$  [122]. A partir da construção de um gráfico de  $\sin^2(\theta)$  contra  $n$ , obtém-se uma curva com característica de parábola que, por sua vez, quando ajustada se extrai o coeficiente angular  $a$ , definido na Eq.(3.5):

$$a = \left(\frac{\lambda}{2t}\right)^2. \quad (3.5)$$

Finalmente, se obtém o valor da espessura  $t$  da camada individual pela expressão:

$$t = \frac{\lambda}{2\sqrt{a}}. \quad (3.6)$$

Portanto, para estimar as espessuras das camadas únicas depositadas por *Magnetron Sputtering* por DC, analisaram-se os espaçamentos das franjas de *Kiessig* das curvas de refletividade obtidas no difratômetro *RIGAKU*, utilizando a geometria de feixe paralelo (*Parallel Beam*) para  $\lambda=0,15418$  nm. Além disso, ajustaram-se as curvas de refletividade usando o programa *WINGIXA* da *Phillips* versão V1.102(1998), modelo baseado no formalismo de *Parratt* [123].

### 3.4 Caracterização Magnética dos filmes

Das curvas de histerese em função do campo magnético (laços  $M(H)$ ) dos filmes é possível obter informações como: o campo coercivo ( $H_C$ ); o campo *Exchange Bias* ( $H_{EB}$ ); a magnetização de saturação ( $M_S$ ), a magnetização remanente ( $M_R$ ), entre outras propriedades magnéticas.

#### 3.4.1 Magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM)

O Magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM<sup>1</sup> do inglês *Vibrating-Sample Magnetometer*), foi desenvolvido por Simon Foner [124–126] em 1955. O seu princípio de funcionamento baseia-se na lei de indução de Faraday, que relaciona a variação temporal do fluxo magnético em uma dada superfície com a produção de um sinal elétrico numa bobina captadora. Em outras palavras, ao colocar a amostra a ser medida presa em uma haste (não magnética e não condutora) vibrando a uma frequência (geralmente entre 40-80 Hz) e sob a influência de um campo magnético constante, a variação (vibração) da posição da amostra magnética produz um sinal elétrico, proporcional à magnetização, em bobinas sensoras posicionadas em torno da amostra.

Realizaram-se as medidas de magnetização dos filmes no equipamento denominado: Sistema de Medidas de Propriedades Físicas (PPMS, do inglês *Physical Properties Measurements System*) fabricado pela empresa *Quantum Design* (QD). O PPMS é capaz de

---

<sup>1</sup>VSM para designar o Magnetômetro de Amostra Vibrante por ser mais conhecida que a sigla MAV

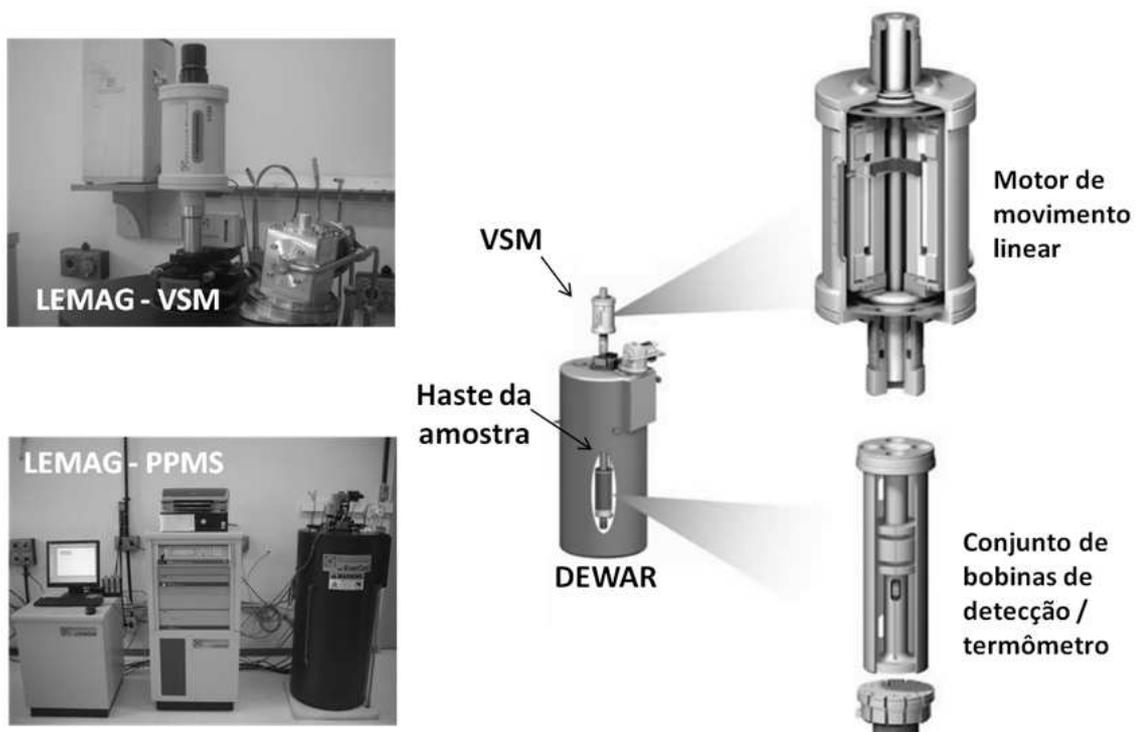


Figura 3.9: Fotos e diagramas esquemáticos do sistema PPMS instalado no LEMAG, contendo a opção VSM.

realizar medidas de diferentes propriedades físicas da matéria, tais como magnetização, susceptibilidade magnética, resistividade elétrica, calor específico na presença de campos magnéticos de até 7 T e num amplo intervalo de temperatura, em geral, de 1,8 K - 400 K. As medidas de magnetização podem ou ser realizadas utilizando o módulo ACMS (Magnetômetro a Extração) (1,8 K - 400 K) ou o módulo de VSM (1,8 K - 1000 K). As amostras podem estar em forma de pó, filmes finos, monocristal, etc. A aquisição de dados é feita por um software *MultiVu* (fornecido pelo fabricante) via interface GPIB. Na Fig.(3.9), apresentam-se os componentes principais do sistema PPMS com a opção VSM.

### 3.4.2 Ressonância Ferromagnética (FMR)

A Ressonância Ferromagnética (RFM), ou do inglês *Ferromagnetic Resonance* (FMR<sup>2</sup>), é uma técnica espectroscópica de alta precisão que serve para determinar e estudar as propriedades magnéticas de sistemas ferromagnéticos [127], tais como fases magnéticas,

<sup>2</sup>FMR para designar à Ressonância Ferromagnética

anisotropia magnética [128, 129], magnetização efetiva, fator  $g$  em sólidos, parâmetros magnéticos de amortecimento. Devido à sua sensibilidade, a FMR foi aplicada com sucesso em filmes ultrafinos metálicos, e pode também ser usada para estudar o acoplamento em sistemas compostos por filmes FM separados por camadas não-magnéticas chamadas de espaçadoras, que podem ser metálicos ou não metálicos [128]. Fornece também informações sobre as superfícies e interfaces das camadas magnéticas.

A FMR foi descoberta por V. K. Arkad'yev em 1911 [130] quando observou a absorção de radiação UHF (*Ultra High Frequency*) por materiais ferromagnéticos (em fios de Ni e Fe). Em 1923, Ya. G. Dorfman [131] deu uma explicação qualitativa do fenômeno, sugerindo que as transições óticas devido à separação Zeeman poderiam fornecer uma maneira de estudar a estrutura ferromagnética. Griffiths [132] foi o primeiro em descrever experimentalmente o fenômeno de ressonância em materiais ferromagnéticos provocado pelo processo de interação de elétrons com um campo magnético em frequência de micro-ondas, confirmado posteriormente por Yager e Bozorth [133]. A teoria inicial deste fenômeno da ressonância foi dada por Kittel (1947) [134, 135]. Desde então, uma enorme quantidade de trabalhos tem sido publicada descrevendo a FMR em diferentes geometrias e em diferentes classes de materiais. A FMR pode ser considerada como uma técnica clássica, bem estabelecida, com uma base teórica sólida para a interpretação dos espectros experimentais [136].

Entende-se por FMR à absorção de radiação eletromagnética por um material ferromagnético na presença de um campo magnético em torno do qual o momento magnético total do material precessiona. A absorção ressonante ocorre quando a frequência desta precessão coincide com a frequência do campo de radiação eletromagnética. Esta frequência, por sua vez, se localiza na região de micro-ondas.

Em um experimento de FMR, um material FM, é inserido em uma cavidade ressonante acoplada a uma guia de onda, e submetido a um campo magnético alternado de baixa amplitude  $h(t)$  com frequência na região das micro-ondas [137]. Um campo magnético constante  $H_0$  é aplicado em altos ângulos ( $\sim 90^\circ$ ) relativamente a direção do campo

$h(t)$  [134]. Esta disposição leva o material a um estado coerente de magnetização, onde a estrutura de domínios é quebrada e toda a amostra comporta-se como um monodomínio, assim  $\mu \rightarrow M$ . A magnetização  $M$  precessiona em fase em torno do campo  $H_0$  (modo uniforme), como ilustra a Fig.(3.10).

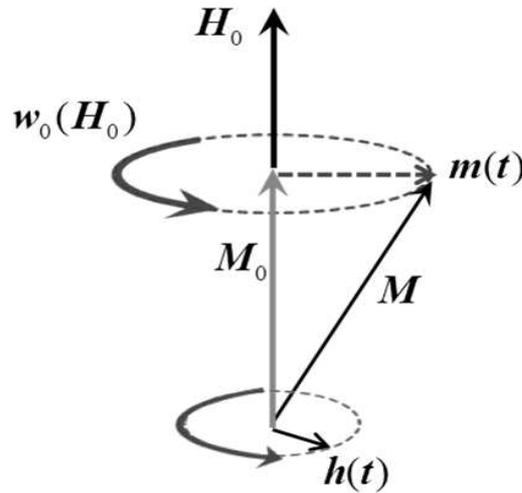


Figura 3.10: Esboço da precessão uniforme da  $M$  sobre o campo magnético externo  $H_0$ .

Neste caso, a frequência de precessão pode ser expressa como a frequência de Larmor,  $\omega_0 = g\mu_B H_0 / \hbar$ , onde  $\mu_B$  é o magneton de Bohr e  $g$  é o fator de separação espectroscópica (fator giromagnético do material). Devido a presença do campo alternado, a magnetização total do sistema terá a componente adicional alternada dependente do tempo  $m(t)$ . A componente da magnetização, devido ao campo magnético aplicado, é  $M_0$ . A magnetização total será dada por  $M = M_0 + m(t)$ . Os materiais ferromagnéticos possuem um campo magnético interno  $H_{int}$ , que contém as contribuições do campo de desmagnetização, campo de anisotropia cristalina, etc. Assim, os *spins*, responsáveis pelo ferromagnetismo, precessionam com uma frequência  $\omega_0$  não em torno do campo externo  $H_0$ , mas sim em torno de um campo efetivo  $H_{eff} = H_0 + H_{int}$ , conforme foi mostrado por L. D. Landau e E. M. Lifshitz [138]. Experimentalmente é mais fácil fixar  $\omega_0$  e variar  $H_{eff}$  através do controle de sua componente externa  $H_0$ . Faz-se variar o campo magnético enquanto se detecta a intensidade das micro-ondas. A ressonância ocorre quando a frequência do  $h(t)$  for igual à frequência de precessão de Larmor  $\omega_0$ . O  $h(t)$  causará transições entre os subníveis Zeeman adjacentes do sistema ferromagnético separados pela energia  $g\mu_B H_{eff}$ . Assim, a frequência de precessão e a frequência da cavidade de ressonância são as mesmas, a absorção ressonante da energia do campo  $h(t)$  pelo ma-

terial ferromagnético leva a uma alteração na intensidade da ressonância de cavidade, que pode ser determinada experimentalmente. Uma abordagem completa e detalhada da técnica de ressonância ferromagnética pode ser encontrada nas Refs. [137,139].

No caso de filmes finos é possível usar sistemas de coordenadas com ângulos pré-definidos para determinar, por exemplo, a direção do campo externo relativo a uma direção cristalográfica. Então, o sistema de coordenadas mostrado na Fig.(3.11), onde a superfície do filme encontra-se no plano  $xy$ , serve de referência para as varreduras angulares do campo magnético no plano e fora do plano do filme.

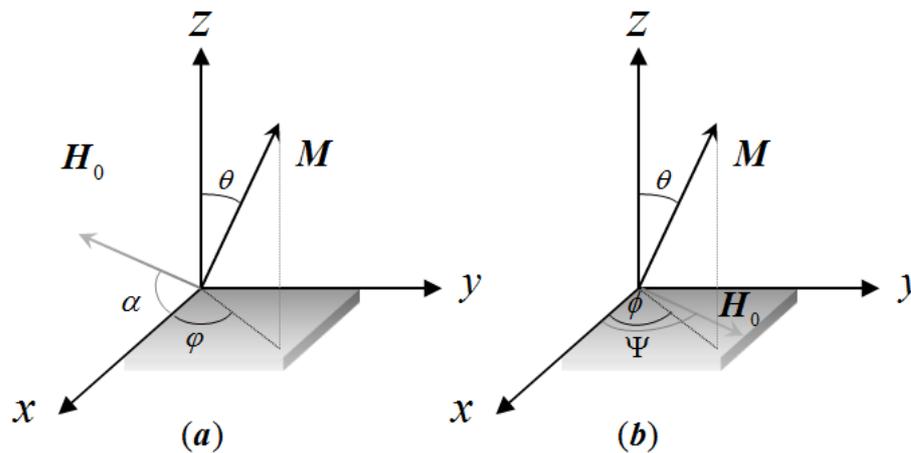


Figura 3.11: Orientação do campo magnético  $H_0$  e da magnetização  $M$  com respeito ao sistema de coordenadas, onde o filme está no plano  $xy$ . Com (a)  $H_0$  fora do plano do filme e (b)  $H_0$  no plano do filme.

Na configuração perpendicular ao plano do filme o campo magnético é definido pelo ângulo  $\alpha$ , e magnetização pelos ângulos  $\theta$  e  $\varphi$  (Fig.3.11-a)). Enquanto, para a configuração paralela ao plano do filme, a posição da magnetização é definida pelos ângulos  $\theta$  e  $\phi$ , e o campo magnético externo é definido pelo ângulo  $\Psi$  (Fig.3.11-b)).

### Energia Livre do Sistema

Para saber a frequência de ressonância é necessário ter uma expressão para a energia livre do sistema com seus termos e suas dependências com relação à orientação da magnetização. A energia livre total para um material ferromagnético submetido a um campo magnético externo pode ser obtida considerando as contribuições da interação

da magnetização do material com o campo externo e a energia associada à anisotropia magnética, que depende da orientação da magnetização em relação ao sistema de coordenadas escolhido. Os seguintes termos devem ser levados em conta:

- Energia Zeeman ( $E_Z$ ) - Quando um campo magnético é aplicado ao sistema, a magnetização sofre um torque e tende a se alinhar com o campo externo (direção da magnetização em relação ao campo). A energia Zeeman surge da interação entre a magnetização e o campo externo, e é descrita por:

$$E_Z = -\mathbf{M} \cdot \mathbf{H} = -M_S H_0 (\cos\alpha \cdot \sin\theta \cdot \cos\varphi + \sin\alpha \cdot \cos\theta),$$

- Energia Desmagnetizante (algumas vezes também referido como Anisotropia de Forma) - Proveniente da indução de polos magnéticos na superfície do material ferromagnético. A energia proveniente desta anisotropia é de particular importância em filmes finos, sendo a energia que mais contribui para que a magnetização permaneça no plano do filme. No caso dos filmes pode ser escrita como [140]:

$$E_D = -2\pi M_S^2 \cdot \cos^2\theta,$$

- Energia de anisotropia associada à anisotropia magnética, que depende da orientação da magnetização em relação ao sistema de coordenadas do material, contribuições magneto-cristalina e magnetoelástica. Para um sistema com simetria uniaxial pode-se escrever:  $E_K = K_u \sin^2\theta$ , sendo que em  $K_u$  estão incluídas as constantes relativas às anisotropias magneto-cristalina de primeira ordem e a magnetoelástica.

Das equações da energia desmagnetizante e de anisotropia, pode-se obter:  $E_a = (K_u - 2\pi M_S^2) \sin^2\theta$ , onde o termo constante é definido como a anisotropia efetiva  $K_{eff} = K_u - 2\pi M_S^2$ . Desta relação, pode-se ver que há uma competição entre as energias que favorecem um eixo fácil de magnetização perpendicular ao plano do filme  $K_u$ , e a energia desmagnetizante que favorece um eixo fácil no plano. Quando  $K_{eff}$  for positivo, o eixo de magnetização fácil é perpendicular ao plano do filme.

### Variação Angular fora do plano do filme

Para estudar a anisotropia perpendicular, o campo magnético é varrido na configuração do plano para fora do plano do filme até a posição perpendicular, como ilustra a Fig.(3.11-a), onde a direção do campo  $H_0$  é definido pela variável  $\alpha$ .

Das diferentes contribuições para a energia magnética total do sistema, tem-se:

$$E = -M_S H_0(\cos \alpha \sin \theta \cos \varphi + \sin \alpha \cos \theta) + (K_u - 2\pi M_S^2) \sin^2 \theta. \quad (3.7)$$

A orientação de equilíbrio da magnetização  $(\theta_0, \varphi_0)$  é obtida minimizando a energia total segundo estas variáveis. Este processo de minimização de energia leva as seguintes equações [141]:

$$\left( \frac{\partial E}{\partial \varphi} \right) = 0 \rightarrow \varphi_0 = 0. \quad (3.8)$$

$$\left( \frac{\partial E}{\partial \theta} \right) = 0 \rightarrow 2H_0 \cos(\alpha + \theta_0) = \left( \frac{2K_u}{M_S} - 4\pi M_S \right) \sin 2\theta_0. \quad (3.9)$$

O resultado para  $\varphi_0$  se deve ao fato de que se assume que não há anisotropias no plano do filme e, portanto a magnetização deve permanecer no mesmo plano de  $H_0$ , o plano  $xz$ . Na Eq.(3.9), o termo  $\left( \frac{2K_u}{M_S} - 4\pi M_S \right)$  pode ser definido como magnetização efetiva  $4\pi M_{eff}$ . Assim, a posição de equilíbrio dependerá da intensidade do campo externo, de sua posição definida pelo ângulo  $\alpha$ , e da magnetização efetiva, onde estão incluídas as anisotropias desmagnetizantes, magneto-cristalina, magnetoelástica, de superfície e ainda a magnetização de saturação.

A equação da frequência de ressonância é definida por [141]:

$$\omega_{res} = \frac{\gamma \sqrt{1 + \beta^2}}{\sin \theta_0} \left( \frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} \frac{\partial^2 E}{\partial \varphi^2} - \left( \frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \varphi} \right)^2 \right)^{1/2}. \quad (3.10)$$

Aqui  $\beta$  é o parâmetro de amortecimento que, por sua vez, considera-se, em geral, desprezível relativo à frequência de ressonância. Efetuando as derivadas de segunda ordem e substituindo-as na Eq.(3.10), obtém-se a condição de ressonância:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_0 \sin(\alpha + \theta_0) - 4\pi M_{eff} \cos^2 \theta_0) \times (H_0 \sin(\alpha + \theta_0) - 4\pi M_{eff} \cos 2\theta_0) \quad (3.11)$$

Considerando o campo de ressonância para a posição paralela quando  $\alpha=0^\circ$  ( $H_0 \rightarrow H_{//}$ ), tem-se:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_{//}(H_{//} + 4\pi H_{eff}). \quad (3.12)$$

E quando o campo de ressonância está na posição perpendicular, quer dizer,  $\alpha=90^\circ$  ( $H_0 \rightarrow H_{\perp}$ ) tem-se da Eq.(3.11):

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_{\perp} - 4\pi M_{eff}. \quad (3.13)$$

Considerando as condições de ressonância. Tomando as equações angulares do campo de ressonância, elevando ao quadrado a Eq.(3.13) e igualando com a Eq.(3.12), chega-se a uma expressão que determina a magnetização efetiva:

$$4\pi M_{eff} = -\frac{2K_{eff}}{M_S} = H_{\perp} + \frac{1}{2}H_{//} - \left[ H_{//} \left( H_{\perp} + \frac{5}{4}H_{//} \right) \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (3.14)$$

Assim, medindo os campos de ressonância ( $H_{res}$ ) na configuração paralelo  $H_{//}$  e na configuração perpendicular  $H_{\perp}$  e conhecendo-se a frequência  $\omega$  e a magnetização de saturação da amostra, determina-se sua constante de anisotropia efetiva  $K_{eff}$ . A partir das Eq.(3.13) e Eq.(3.12) obtém-se a razão giromagnética  $\gamma$  e conseqüentemente o fator- $g$ . Estas equações demonstram claramente que a partir das medidas dos campos de ressonância nas geometrias de campo aplicado perpendicular  $H_{\perp}$  e paralelo  $H_{//}$  obtém-se a magnetização efetiva e o fator- $g$  de filmes finos magnéticos.

### Variação Angular no plano do filme

Nesta situação, considera-se um campo magnético  $H_0$  aplicado ao longo do plano do filme ( $xy$ ) e uma anisotropia uniaxial  $K_u$  no plano do filme, tal como visto na Fig.(3.11-b). O  $H_0$  é definido pelo ângulo  $\Psi$ , e a energia livre total agora pode ser escrita da seguinte forma:

$$E = -M_S H(\sin \theta \cos(\Psi - \phi) + \cos \theta) + 2\pi M_S^2 \cos^2 \theta + K_u(1 - \sin^2 \theta \cos^2 \phi). \quad (3.15)$$

As condições de equilíbrio para a magnetização e para a ressonância, supondo que a  $M_S$  e  $H_0$  fiquem confinados ao plano  $xy$ , são:

$$\frac{\sin \Psi}{\sin \phi} = \frac{\cos \Psi}{\cos \phi} = \frac{4\pi M_{eff}}{H_0}. \quad (3.16)$$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = [H_0 \cos(\Psi - \phi_0) + 4\pi M_S + H_K \cos^2 \phi_0] \times (H_0 \cos(\Psi - \phi_0) + H_K \cos 2\phi_0). \quad (3.17)$$

$H_K$  é o campo de anisotropia causado pela anisotropia uniaxial no plano do filme.

Realizaram-se as medidas de ressonância ferromagnética à temperatura ambiente no espectrômetro da marca BRUKER, modelo ESP-300C do Laboratório de Ressonância Magnética da Universidade Federal de Goiás (UFG), sob a responsabilidade do Prof. Fernando Pelegrini, utilizando uma cavidade cilíndrica ressonante de micro-ondas. Obtiveram-se os espectros de FMR utilizando uma fonte de micro-ondas Klystron, operando na frequência de 9,79 GHz (banda X). Posicionou-se a amostra num goniômetro no centro da cavidade ressonante e entre os eletroímãs (Fig.3.12), em uma configuração onde há maior homogeneidade possível do campo magnético, cujo valor máximo é de 20 kOe.

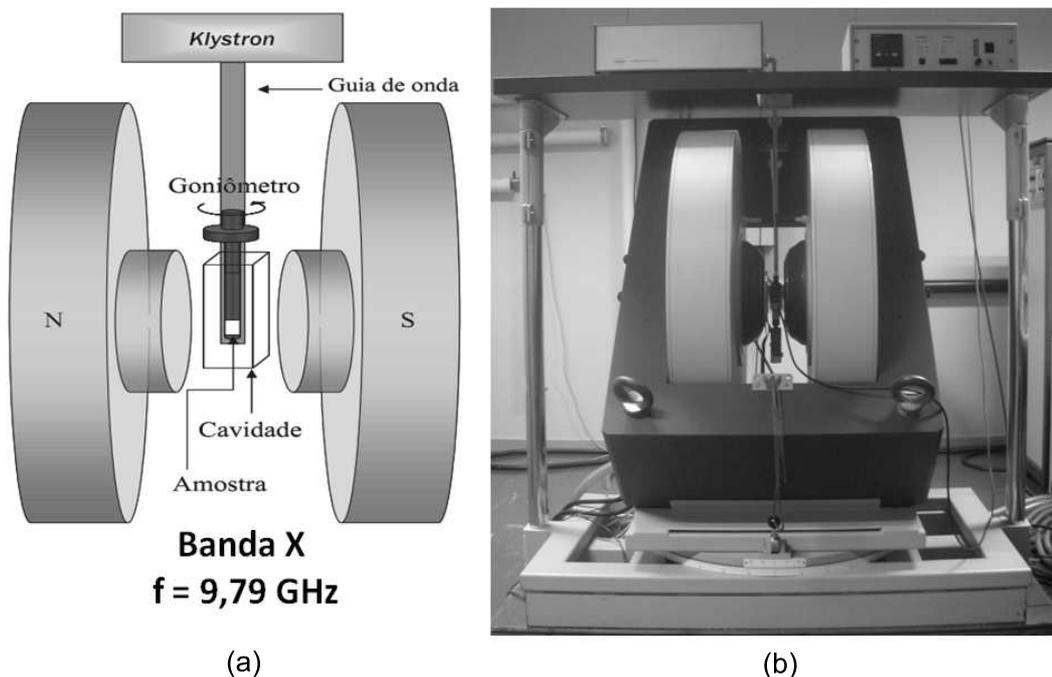


Figura 3.12: (a) Representação esquemática da montagem experimental para as medidas de FMR instalado LRM/UFG [142], (b) Foto do equipamento.

### 3.4.3 Espalhamento magnético Ressonante de Raios-X (XRMS)

O Espalhamento Magnético Ressonante de Raios-X (XRMS - *X-Ray Resonant Magnetic Scattering*) [143] oferece a vantagem de medidas com seletividade química através da escolha da energia do fóton incidente, já que as bordas são únicas para cada elemento químico. Assim, sintonizando a energia do fóton nas vizinhanças da energia da borda de absorção do elemento químico específico, onde o sinal magnético é máximo, seu comportamento magnético pode ser sondado, em diferentes profundidades da camada, sem a influência do sinal de outras espécies magnéticas presentes no sistema.

O trabalho pioneiro de refletividade de Raios-X moles foi realizado por Kao e col. [144] que observaram efeitos magnéticos nas bordas  $L_{2,3}$  do Fe, usando luz linearmente polarizada. Mais tarde, com luz circularmente polarizada, constataram uma grande assimetria em refletividade magnética de multicamadas de Co, até superior (80%) à taxa de polarização da luz incidente (75%) [145]. Sacchi e col. [146,147] realizaram medidas de refletividade magnética, tanto com polarização linear como circular, para um monocristal de Ni(110), a ângulos de incidência fixo e varrendo a energia nas bordas  $L_{2,3}$ . Este grupo

foi capaz de medir o ciclo de histerese na borda  $L_3$  do Ni, o qual estava de acordo com os dados obtidos por efeito Kerr, e mostraram também que a refletividade ressonante, com dependência angular, é útil para reforçar linhas espectroscópicas finas, aumentando as informações experimentais relacionadas às propriedades do estado fundamental desses sistemas. Tonnerre e col. [148] provaram a possibilidade de usar o XRMS para obter o XMCD (*X-Ray Magnetic Circular Dichroism*). De fato, a expressão do XMCD é rapidamente identificada com a parte imaginária do XRMS [149], quando se fixa o ângulo e varre-se em energia, em torno das bordas de absorção.

Para entender, resumidamente, como acontece o XMRS, apresenta-se uma breve discussão sobre a teoria de espalhamento atômico, iniciando pela descrição do espalhamento sem a contribuição magnética, para, posteriormente, incluí-la. O fator de espalhamento total de Raios-X por um átomo dá-se pelo fator de forma atômico  $f_0(\vec{q})$ , que independe da energia, e das correções de dispersão real  $f'(\omega)$  e imaginária  $f''(\omega)$  para o fator de espalhamento atômico.

$$f(\vec{q}, \omega) = f_0(\vec{q}) + f'(\omega) + i f''(\omega). \quad (3.18)$$

Considerando que a interação de cada elétron com o núcleo atômico pode ser descrita pelo comportamento de um oscilador harmônico forçado pelo campo oscilante  $E(\vec{r}, t)$  da radiação monocromática incidente de frequência  $\omega$  e polarização linear, escrevem-se as correções de dispersão real e imaginária para o átomo como um todo por:

$$f'(\omega) = \sum_j f_j \frac{\omega_{0j}^2 (\omega^2 - \omega_{0j}^2)}{(\omega^2 - \omega_{0j}^2) - (\gamma_j \omega)^2}, \quad (3.19)$$

$$f''(\omega) = - \sum_j f_j \frac{\omega_{0j}^2 (\gamma_j \omega)}{(\omega^2 - \omega_{0j}^2) - (\gamma_j \omega)^2}. \quad (3.20)$$

onde  $\gamma$  é o coeficiente de amortecimento,  $\omega_0$  é a frequência natural do oscilador e  $f_j$  é um peso referente à força de oscilador de cada elétron. A constante dielétrica também pode ser dividida em uma parte real e outra imaginária:

$$\text{Re}\left(\frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_0}\right) = 1 + \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \sum_j f_j \frac{\omega_{0j}^2 - \omega^2}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2)^2 + (\gamma_j\omega)^2}. \quad (3.21)$$

$$\text{Im}\left(\frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_0}\right) = \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \sum_j f_j \frac{\gamma_j\omega}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2)^2 + (\gamma_j\omega)^2}. \quad (3.22)$$

onde  $\varepsilon(\omega)$  é a constante dielétrica do material,  $\varepsilon_0$  é a constante dielétrica do vácuo,  $N$  é a densidade de moléculas do meio,  $m$  é a massa do elétron e  $e$  a carga do elétron.

Para frequências baixas,  $\varepsilon(\omega)$  é maior do que 1 e aumenta conforme se aumenta a frequência da luz até valores abaixo da frequência natural do átomo. Neste caso, temos a chamada dispersão normal. Quando  $\omega \sim \omega_0$ , a dispersão é dita anômala ou ressonante, onde  $\text{Re}(\varepsilon(\omega))$  se torna praticamente nulo e  $\text{Im}(\varepsilon(\omega))$  domina a interação, indicando forte absorção da radiação incidente.

Escrevem-se as partes real e imaginária das constante dielétrica através das relações de Kramers-Kronig [150]:

$$\text{Re}\left(\frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_0}\right) = 1 + \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\text{Im}(\varepsilon(\omega')/\varepsilon_0)}{\omega' - \omega}. \quad (3.23)$$

$$\text{Im}\left(\frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_0}\right) = -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\text{Re}(\varepsilon(\omega')/\varepsilon_0) - 1}{\omega' - \omega}. \quad (3.24)$$

onde  $P$  é a parte principal da integral de Cauchy. Em medidas de absorção ressonante, onde se possui o valor de  $f''$  associada à  $\text{Im}(\varepsilon(\omega)/\varepsilon_0)$ , pode-se utilizar as relações acima para obter  $f'$ . Para medidas de espalhamento anômalo, onde se conheça  $f'$  ( $\text{Re}(\varepsilon(\omega)/\varepsilon_0)$ ), pode-se utilizar a relação para obter  $f''$  (absorção).

Relacionam-se  $f'$ ,  $f''$  e a constante dielétrica através do índice de refração do meio  $n(\omega)$ :  $\varepsilon(\omega)/\varepsilon_0 = n^2(\omega) = 1 - 2\delta - i2\beta$ . Onde  $\delta$  e  $\beta$ , são os coeficientes de espalhamento

e absorção, respectivamente, e estão representados, a seguir, em função das correções de dispersão [151]:

$$\delta = r_0(\lambda^2/2\pi)N(f_0(\vec{q} = 0) + f'(\omega)) \quad (3.25)$$

$$\beta = \mu\lambda/4\pi = r_0(\lambda^2/2\pi)Nf''(\omega) \quad (3.26)$$

Quando o material é magnético e uma radiação incidente circularmente polarizada coincide com a borda de absorção do elemento, surge uma contribuição magnética ressonante para o fator de espalhamento total atômico, dando origem ao chamado espalhamento ressonante magnético por Raios-X (XRMS). Neste caso, escreve-se o fator de espalhamento total de Raios-X por [148]:

$$f = -(\hat{e}_f^* \cdot \hat{e}_f)(f_0 + f' - if'') + f_{mag}^{res}. \quad (3.27)$$

onde  $f_{mag}^{res}$  é o fator de espalhamento magnético ressonante; este é oriundo de uma transição eletrônica de uma camada interna para um estado disponível. Para um material ferromagnético  $3d$  por exemplo, a sensibilidade à magnetização surge do efeito de interação *spin*-órbita no nível de caroço ( $2p$ ) e da polarização de *spin* da banda de condução ( $3d$ ). Essa discussão será detalhada mais adiante durante a explicação do modelo de dois passos. A amplitude do espalhamento magnético ressonante depende da direção do momento magnético local  $\hat{z}_j$  no sítio  $j$  e da polarização  $\hat{e}_f$  e  $\hat{e}_i$  dos feixes espalhados e incidentes, respectivamente, e pode ser escrita em unidades do comprimento de espalhamento de Thomson  $r_0$ , como:

$$f_{mag}^{res} = -i(\hat{e}_f^* \times \hat{e}_i) \cdot \hat{z}_f n_m \frac{x + i}{1 + x^2} \quad (3.28)$$

onde o desvio relativo de energia  $x = [(E_f - E_i) - \hbar\omega]/(\Gamma/2)$  possui uma dependência lorentziana.  $(E_f - E_i)$  é a energia da transição,  $\hbar\omega$  é a energia do fóton incidente,  $n_m$  é a amplitude magnética e  $\Gamma$  é a largura total do estado excitado. Para separar a contribuição de carga dos espectros, e obter o sinal puramente magnético, faz-se uso da razão de assimetria ( $R_A$ ), que fornece a variação percentual do sinal magnético total:

$$R_A = \frac{H^+ - H^-}{H^+ + H^-}. \quad (3.29)$$

onde  $H^+$  e  $H^-$  são as refletividades especulares medidas para dois sentidos opostos do campo magnético aplicado paralelo a ambos ao plano da amostra e ao plano de difração.

A  $R_A$  apresenta a vantagem de ser independente de qualquer constante multiplicativa de normalização, além de ser proporcional ao momento magnético para um dado elemento constituinte da amostra em estudo. Kao e col. [144] reportaram resultados de um estudo de espalhamento ressonante magnético de Raios-X moles com polarização circular de uma multicamada magnética com Co. Observou-se uma alta razão de assimetria de 80% na refletividade especular perto das bordas  $L_{2,3}$  do Co. Esta razão de assimetria não é apenas maior que o efeito XMCD da mesma amostra, é ainda maior do que o grau de polarização circular da luz incidente. Muitas vezes, o máximo do sinal magnético não coincide exatamente com a borda, localizando-se 1 a 2 eV acima ou abaixo da mesma. A energia para as medidas de XMRS é aquela para a qual o sinal magnético é máximo (maior razão de assimetria).

Tonnerre e col. [148], para uma configuração da difração no plano vertical (com feixe de polarização circular), definiram a  $R_A$  como:

$$R_A = \frac{4 \cos^3(\theta) \tau^{1/2} (F_r M_r - F_i M_i)}{[1 + \tau \cos^2(2\theta)] |F^2| + \cos^2(\theta) (1 + \tau) |M|^2}. \quad (3.30)$$

Onde  $\tau$  é a razão das intensidades da polarização horizontal e vertical,  $\theta$  é o ângulo de Bragg,  $F$  e  $M$  são os fatores de estruturas complexos de carga e magnética das multicamadas estudadas, respetivamente. Pode-se observar na Fig.(3.13-a) que a linha tracejada mostra uma concordância razoável entre a quantidade  $R_A$  usando a calculada Eq.(3.30) e os dados experimentais obtidos por Tonnerre e col. para a multicamada Ag/Ni [148].

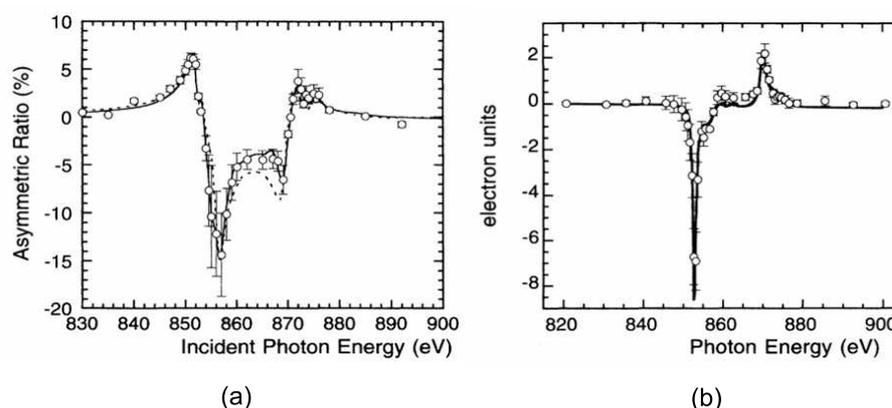


Figura 3.13: (a) A razão de assimetria da modulação química do pico de difração na vizinhança das bordas  $L_3$  e  $L_2$  para uma multicamada de Ag/Ni. Realizou-se o experimento de difração na geometria vertical usando feixe de polarização circular. A curva tracejada é uma simulação assumindo lorentzianas para ressonância magnética, enquanto a curva sólida calcula-se do ajuste dos fatores de estrutura magnéticos  $M_r$  e  $M_i$ , (b) Observa-se a parte imaginária dos espectros XRMS (círculos abertos) e MCD (linha sólida) para o Ni em unidades de elétron [148].

Define-se o fator de espalhamento ressonante magnético, devido à transição eletrônica de um elétron na camada interna para os estados eletrônicos vazios disponíveis, é definido por [148]:

$$f_{mag}^{res} = \frac{x + i}{1 + x^2} n_m(L_3) + \frac{y + i}{1 + y^2} n_m(L_2). \quad (3.31)$$

onde  $x$  e  $y$  representam os desvios relativos das bordas de ressonância  $L_3$  e  $L_2$ , respectivamente e,  $n_m$  novamente é a amplitude magnética.

A análise do XRMS permite extrair as partes real e a imaginária da amplitude de ressonância magnética ( $f_{mag}^{res}$ ) dada pela Eq.(3.31). Existem algumas maneiras de se fazer essa separação, mas todas elas envolvem cálculos pesados, e em alguns casos, o uso de softwares [148]. Uma opção é o método interativo proposto por Tonnerre e col. [148], que consideraram inicialmente  $M_i = 0$  e obtiveram  $M_r$ , e conseqüentemente a parte real de  $f_{mag}^{res}$ , utilizando a Eq.(3.30). Em seguida, aplicaram as transformadas de Kramers-Kronig [152] para extrair a parte imaginária de  $f_{mag}^{res}$ . Após uma sequência de interações, obtiveram um valor refinado para a parte imaginária de  $f_{mag}^{res}$ , que encontra-se em boa concordância com o sinal dicróico usual, como se mostra na Fig.(3.13-b).

Em resumo, a parte imaginária de  $f_{mag}^{res}$  é comparável ao sinal dicróico, de forma que as regras de soma podem ser aplicadas similarmente ao que se faz com o espectro de dicroísmo para separar as contribuições orbitais e de *spin*. Descrever-se-á a seguir uma descrição do efeito de dicroísmo e de como as regras de soma podem ser aplicadas.

## Dicroísmo

Alguns materiais podem apresentar uma grande diferença na absorção da radiação da luz, dependendo da polarização dessa luz, ou mesmo da orientação do vetor polarização com relação a um eixo escolhido da amostra. A existência de diferentes coeficientes de absorção para distintos estados de polarização da radiação incidente, poder ser causada, por exemplo, por direcionalidade de ligações químicas, campos cristalinos, orientação molecular, entre outras razões. Dependendo da assimetria local apresentada pelo material, pode-se criar uma dependência da absorção com os estados de polarização linear ou circular (direita e esquerda) da radiação. Este efeito é conhecido como dicroísmo e, atualmente é uma poderosa ferramenta no estudo da caracterização eletrônica e magnética dos materiais. Com o dicroísmo, obtém-se informações sobre a simetria, os momentos magnéticos e os estados inicial e final do átomo absorvedor. Existem outras técnicas além do dicroísmo, que fornecem informação direta sobre os momentos magnéticos da amostra, mas é importante ressaltar que o dicroísmo apresenta características particulares como sensibilidade tanto à superfície quanto ao volume do material analisado, seletividade atômica (isto é possível escolhendo-se a energia dos fótons incidentes) e o caráter local da medida. O dicroísmo é observado em uma larga gama de materiais, onde a faixa de energia se estende desde radiação de micro-ondas até os Raios-X duros ( $> 5$  keV). No caso do Raios-X, o dicroísmo só é significativo próximo às bordas de absorção, onde os fotoelétrons são bastante afetados por assimetrias internas (exemplo campos moleculares) do átomo absorvedor.

O dicroísmo origina-se da quebra de simetria da nuvem eletrônica do átomo absorvedor, provocando a separação em energia dos níveis atômicos provenientes do mesmo momento angular total  $J$ . Isto pode ser conseguido através da aplicação de um campo magnético na amostra (Dicroísmo magnético) ou pelo próprio campo cristalino definido pelo ambiente

atômico. No Dicroísmo Circular Magnético (do inglês *Magnetic Circular Dichroism* - MCD) ocorre uma diferença na absorção pela luz circularmente polarizada à direita e à esquerda, para um dado sentido do campo magnético aplicado, o qual é paralelo à propagação da luz. Na prática, é mais fácil fixar-se a polarização e inverter-se o sentido da magnetização, o que em nada modifica os resultados. O Dicroísmo circular magnético é sensível ao sinal do momento magnético do elemento absorvedor. Por exemplo, um material FM ou AFM pode apresentar diferentes coeficientes de absorção, no caso da polarização do fóton incidente ser linearmente paralela ou perpendicular à direção à qual os *spins* estão orientados. Este é o chamado dicroísmo linear magnético (XMLD - *X-Ray Magnetic Linear Dichroism*). No caso de compostos que apresentam FM ou FI, pode ser ainda observado o dicroísmo circular magnético de Raios-X (XMCD), onde ocorre uma diferença entre os coeficientes de absorção, quando o feixe incidente tem polarização circular à direita ou à esquerda.

A primeira previsão de MCD foi feita em 1975 por Erskine e Stern [153], que observaram um pequeno efeito nas bordas  $M_{2,3}$  do Ni. Mais tarde, Thole e col. determinaram teoricamente [154] e depois comprovaram experimentalmente [155] um forte efeito de dicroísmo magnético de Raios-X considerando-se as bordas  $M_{4,5}$  das terras-raras (transições  $3d$  para  $4f$ ). Este grupo também fez uma contribuição valiosa com a introdução de regras de soma, as quais possibilitam a separação do momento angular orbital e de *spin* referentes ao estado fundamental [156]. A primeira observação experimental de XMCD na borda K do Fe só aconteceu em 1987, com o trabalho de Schütz e col. [157]. Este avanço, impulsionado em parte pelo melhor desempenho das fontes de luz síncrotron, tornou o dicroísmo de Raios-X uma importante técnica para o estudo da estrutura eletrônica e magnética de superfícies, filmes finos, multicamadas e sistemas fortemente correlacionados em geral.

### **XMCD em metais de transição $3d$**

As propriedades magnéticas dos metais de transição  $3d$  são determinadas principalmente pelo seus elétrons de valência  $d$  [158, 159]. Nos ferromagnetos Fe, Co e Ni, a camada  $d$  torna-se cada vez mais preenchida, o que resulta numa diminuição do nú-

mero de buracos ( $n_h$ ) na banda  $d$ . O momento magnético de *spin* devido à interação de troca é simplesmente a diferença entre o número de buracos do *spin-up* ( $n_\uparrow$ ) e *spin-down* ( $n_\downarrow$ ),  $m_s = -2\langle S_z \rangle \mu_B / \hbar = (n_\uparrow - n_\downarrow) \mu_B$ . O momento orbital surge da interação *spin*-órbita  $m_o = -\langle L_z \rangle \mu_B / \hbar$ , o que é significativamente menor ( $\sim 50$  meV) do que a interação de troca ( $\sim 1$  eV) e a largura de banda  $3d$  (alguns eV). Por conseguinte, o momento orbital (por exemplo,  $m_o = 0.14 \mu_B$  para o Co) é muito menor do que o momento de *spin* (por exemplo,  $m_s = 1.64 \mu_B$  para o Co), mais é fundamental para o entendimento da anisotropia magneto-cristalina [160]. Nos casos dos metais Fe e Ni, a contribuição orbital é considerada nula ("quenched") devido a simetria cúbica destes materiais. As propriedades dos elétrons  $3d$  podem ser melhor comprovadas em experimentos de absorção de Raios-X, excitando os elétrons do caroço  $2p$  para preencher estados vazios  $3d$ .

Os espectros de absorção de Raios-X na borda  $L$  contêm contribuições de ambas as transições  $p \rightarrow d$  e  $p \rightarrow s$ , mas, na prática,  $p \rightarrow d$  domina por um fator  $> 20$  [161]. A utilização da polarização circular de Raios-X abre a porta para estudos magnéticos. A física fundamental é mais facilmente entendida nas duas etapas descritas a seguir.

### Modelo de dois Passos

Este modelo foi estabelecido por Schütz e col. [157] para descrever a borda  $K$  dos metais de transição. O modelo foi dividido em dois estágios para facilitar a análise do processo, dando origem ao nome.

No primeiro passo (absorção), um fóton de polarização circular à direita ou à esquerda (com momento angular,  $\hbar$  e  $-\hbar$ , respectivamente) é absorvido por um elétron do caroço  $2p$ , o qual está inicialmente sem qualquer tipo de polarização. Este caroço  $2p$  está dividido em dois sub-níveis,  $2p_{3/2}$  (borda  $L_3$ ) e  $2p_{1/2}$  (borda  $L_2$ ) pela interação *spin*-órbita. O momento angular do fóton pode ser transferido em parte ao *spin* através do acoplamento *spin*-órbita, quer dizer, o fotoelétron carrega consigo uma polarização de *spin*. Como os níveis  $2p_{3/2}$  ( $L_3$ ) e  $2p_{1/2}$  ( $L_2$ ) têm acoplamento *spin*-órbita opostos (l+s e l-s, respectivamente), a polarização do *spin* será oposta nas duas bordas. Se o fotoelétron origina-se do sub-nível  $2p_{3/2}$  ( $L_3$ ), por exemplo, seu momento angular pode ser transferido

em parte para o *spin* através do acoplamento *spin*-órbita. Se o fotoelétron, por sua vez, origina-se do sub-nível  $2p_{1/2}$  ( $L_2$ ), que possui acoplamento *spin*-órbita oposto, então possuirá um *spin* com polarização oposta ao originado do sub-nível  $2p_{3/2}$  [160]. Nesta primeira parte do processo, a absorção do fóton pelo elétron pode ser vista como uma fonte de elétrons *spin* polarizados.

No segundo passo (excitação), os fotoelétrons são capturados (excitados) nos estados vazios das sub-bandas  $d$  de *spin-up* (*down*), quer dizer, as sub-bandas de energia da banda de valência  $3d$  funcionam como detectores de *spin* dos fotoelétrons excitados. Nos metais magnéticos, o número de estados desocupados com *spin-up* e *spin-down* é diferente, serão também diferentes as taxas de transição de fotoelétrons com *spin-up* e com *spin-down*. O eixo de quantização do detector é dado pela direção de magnetização que, para efeito de dicroísmo máximo, têm que ser alinhado com a direção do *spin* do fóton. Assim, este segundo passo pode ser assumido como um detector com resolução em *spin* polarizado. Em materiais magnéticos, a interação de troca entre os *spins* eletrônicos causa uma diferença de energia entre as duas bandas fazendo com que uma banda esteja mais cheia que a outra, ou melhor, fazendo surgir um momento magnético resultante. O *spin* do fotoelétron é governado pela helicidade da radiação, desta forma, a absorção da radiação com polarização circular direita ou esquerda são diferentes. A polarização do fotoelétron ocorre somente em virtude do acoplamento *spin*-órbita, senão as probabilidades de ser criado um fotoelétron com *spin-up* ou *down* nas bordas  $L_2$  ou  $L_3$  seriam iguais. Conforme ilustrado na Fig.(3.14), subtraindo-se os espectros de absorção da borda  $L$ , adquiridos com luz polarizada à direita e à esquerda, obtemos o sinal XMCD através da determinação das áreas A ( $L_3$ ) e B ( $L_2$ ), respectivamente, como pode ser observado de um espectro XMCD, para um material FM (Co) da Fig.(3.15). Repare que A e B possuem sinais contrários, refletindo os acoplamentos *spin*-órbita opostos, relativos aos sub-níveis  $2p_{3/2}(1+s)$  e  $2p_{1/2}(1-s)$ . Na regra de soma, o momento de *spin* é diretamente proporcional a  $A - 2B$ .

Similarmente, se a camada de valência  $d$  possui um momento orbital como mostrado na Fig.(3.14), agirá como um detector de momento orbital para os fotoelétrons excitados. Somando todas as intensidades  $L_3(1+s)$  e  $L_2(1-s)$ , o momento de *spin* é eliminado e o momento orbital da camada de valência pode ser medido como mostrado na Fig.(3.14).

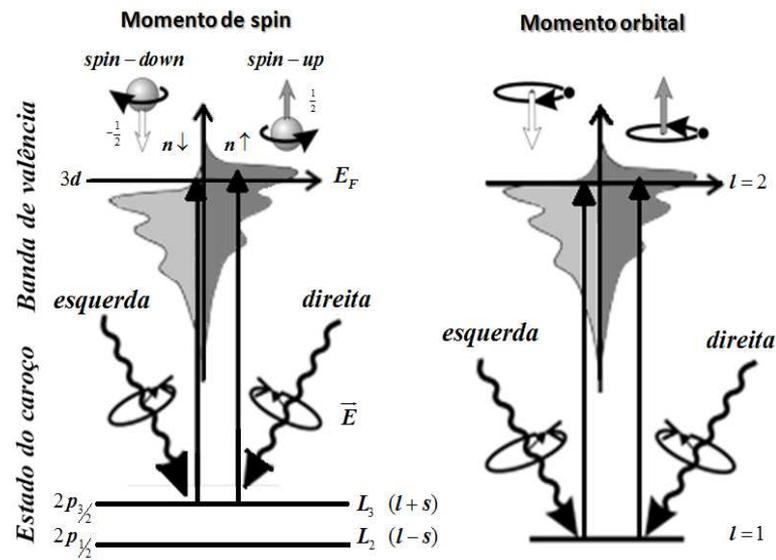


Figura 3.14: Representação do modelo de dois passos contendo somente (a) Momento de *spin*, (b) Momento orbital. Adaptado de [160].

Isto é expressado pela regra de soma [156], o momento orbital é proporcional a  $A+B$  [160].

O modelo de dois passos, qualitativamente é capaz de mostrar como o dicroísmo circular magnético de Raio-X se relaciona com o acoplamento *spin*-órbita quanto com o deslocamento relativo entre as bandas de valência com *spin-up* e *spin-down* [163].

### Regra de soma

As regras de soma podem ser aplicadas para obter o valor dos momentos magnéticos  $m_s^{eff}$  e  $m_o$ . Para isto, é necessário conhecer os valores das áreas integradas do espectro XMCD e da área isotrópica [156, 164, 165]:

$$m_s^{eff} = -2n_h \frac{A - 2B}{A_{iso}}, \quad (3.32)$$

$$m_o = -\frac{4n_h}{3} \frac{A + B}{A_{iso}}, \quad (3.33)$$

$$\frac{m_o}{m_s^{eff}} = -\frac{2}{3} \frac{A + B}{A - 2B} \quad (3.34)$$

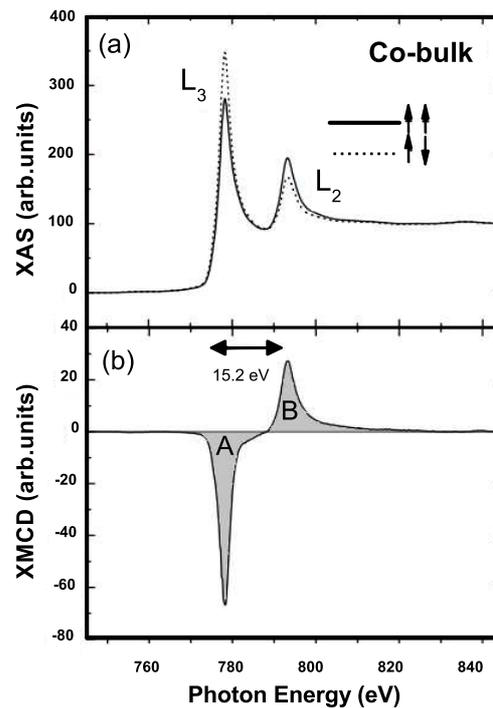


Figura 3.15: (a) Espectros de absorção de Raios-X para a magnetização na direção paralela e antiparalela com respeito ao vetor do fóton incidente e (b) Espectro de XMCD nas bordas  $L_{2,3}$  do *Co-bulk* [162].

### Histerese Magnética por Elemento específico

A característica fundamental de um material magnético é a magnetização, que varia quando aplica-se campos magnéticos. Esta grandeza não só fornece o valor do momento magnético, como também fornece valiosa informação sobre a anisotropia magnética e o acoplamento entre os elementos magnéticos do material. Das medidas de histerese magnéticas, pode-se extrair importantes propriedades, por exemplo, campo coercitivo ( $H_C$ ) e magnetização remanente ( $M_R$ ), que dependem da formação e reversão dos domínios. Obtêm-se comumente curvas de histerese magnéticas por meio de técnicas, que sondam o comportamento magnético global da amostra, tal como diversos magnetômetros (Sec.3.4.1), efeito Kerr, entre outros. Para sistemas magnéticos contendo mais de um elemento magneticamente ativo (sistemas hetero-magnéticos) medidas de histerese magnéticas [166,167] de elementos específicos devem fornecer adicionais informações que não se obtêm por medidas convencionais de curvas de histerese. Usando Dicroísmo Circular Magnético com radiação circularmente polarizada, pode-se obter estes ciclos de histerese de elementos específicos [157,168,169].

Chen e col. [166] demonstraram a viabilidade das medidas das curvas de histerese magnéticas individuais do Fe e Co, utilizando a técnica de Dicroísmo Circular Magnético de Raios-X moles, na borda  $L_3$  dos elementos para o sistema de tricamada Fe/Cu/Co. Características "imperceptíveis" nas medidas convencionais (ex: VSM), observaram-se nas curvas de histerese magnéticas do elemento específico Co, por exemplo, proporcionando "impressões digitais" das possíveis interações entre camadas magnéticas de Fe e Co deste sistema, como mostra-se na Fig.(3.16). As curvas de histerese convencionais, obtidas com a técnica de VSM, interpretou-se como uma combinação linear de duas curvas de histerese dos elementos Fe e Co [166].

Pela técnica de XRMS, também se obtém os ciclos de histerese seletivamente. Neste caso, fixa-se a energia do fóton num valor onde a razão de assimetria, entre os difratogramas obtidos com campos magnéticos opostos, é máxima (sinal magnético). Ou seja, escolhe-se um dos ângulos de incidência em relação ao plano da amostra, onde ocorrem assimetrias, e varre-se o campo magnético ciclicamente para obter o laço de histerese. Com esta técnica e ajuda de um tratamento teórico, pode-se obter informações magnéticas de diferentes profundidades da amostra. Entretanto, devem ser tomados alguns cuidados. Primeiramente, a parte imaginária do fator de espalhamento pode deformar e até inverter o ciclo de histerese, tornando a determinação de valores como campo coercitivo e ângulos de acoplamento imprecisos. Assim, para que sejam obtidos esses valores, costuma-se obter o ciclo em ângulos em torno do ângulo crítico, onde se tem um sinal puramente real. No entanto, este sinal muitas vezes é ruidoso e não possibilita o perfil em profundidade. Usualmente, pode-se utilizar ângulos de incidência maiores do que o ângulo crítico, para uma análise qualitativa, comparando com o sinal antes do ângulo crítico para saber se o ciclo está invertido ou não. Nesta análise qualitativa, pode-se determinar, por exemplo para cada elemento de camadas magnéticas de filmes finos, a existência ou não do efeito de EB. Para esta tese, por exemplo, os valores de EB obtidos por XRMS encontram-se bastante próximos dos adquiridos por VSM.

Realizaram-se as medidas de Reflectividade Magnética no Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS), em Campinas-SP, na linha *D08A – SGM*. O Laboratório Nacional

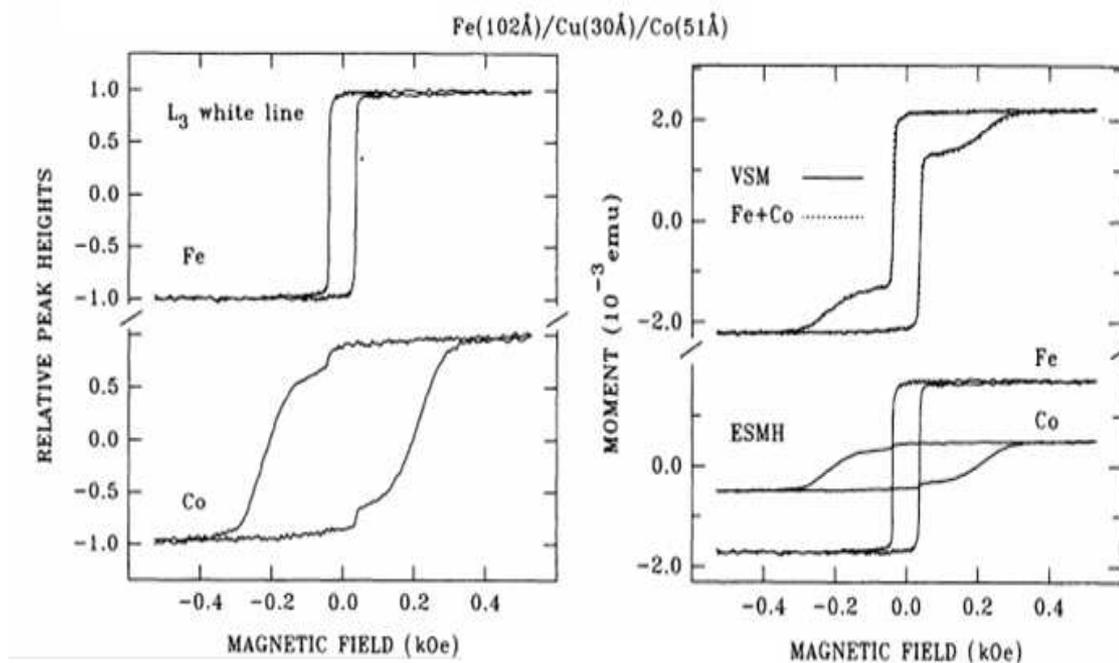


Figura 3.16: Laços de histerese magnéticos de elementos específicos Fe e Co (lado-esquerdo) e aqueles obtidos por VSM (lado direito-superior) para a tricamada Fe/Cu/Co [166].

de Luz Síncrotron é constituído por um anel de segunda geração de comprimento total de órbita de confinamento do feixe de 92,2 m. Produzem-se os elétrons por um canhão de elétrons que, por sua vez, imprime-se aceleração pelo acelerador linear (LINAC), alcançando energias de 120 MeV. No anel injetor *Booster*, aumenta-se a velocidade dos elétrons até atingirem energias de 500 MeV. Finalmente, injeta-se este feixe no anel de armazenamento, acelerando-os até a energia de 1,37 GeV. Uma vez confinados neste anel, os elétrons emitem radiação *síncrotron*, quando o feixe viajando em linha reta desvia-se por um campo magnético intenso, ou então, atravessam regiões de campos magnéticos alternados, colocados ao longo das sessões retas do anel denominados por elementos de inserção (os mais comuns os do tipo onduladores e *wigglers*). A maior parte das aplicações utilizando a radiação *síncrotron* requer sua monocromatização e focalização por componentes óticos constituindo as chamadas linhas de luz.

A linha D08A-SGM possui um monocromador de grade de difração de tipo esférica (SGM - *Spherical Grating Monochromator*) montada na saída de luz D08A ( $4^\circ$ ) e divergência  $\alpha_y=0,26$  mm com uma dimensão de foco na câmara de amostra correspondente a  $(0,5 \times 0,5)$  mm<sup>2</sup>. Esta linha permite selecionar fótons de energia na faixa de 250-

1000 eV, que se estende até 1500 eV em modo de baixa resolução. Esta região de energia corresponde a região de Raios-X moles e encontra-se próximo às bordas ressonantes magnéticas dos metais de transição  $3d$ . O detector, nesta faixa de energia, é comumente um fotodiodo, que capta fótons desde o ultravioleta (UV) até os Raios-X moles. Em baixas energias, é crucial fazer vácuo em todo o caminho ótico para evitar perdas consideráveis de fluxo devido à interação da radiação com o ar. A resolução e geometria da linha D08A-SGM permite estudar problemas relacionados ao Dicroísmo Circular, pois possui um sistema de fendas na entrada do monocromador. Este, por sua vez, possibilita alterar a polarização da luz, de linearmente polarizada, que é o caso da luz no plano da órbita dos elétrons, para circularmente polarizada. Na câmara de difração magnética com ultra-alto vácuo da estação experimental da linha D08A-SGM, a pressão de base chega a  $10^{-8}$  mbar ( $7,5 \times 10^{-9}$  Torr) para minimizar a forte absorção do Raios-X moles no ar. Esta câmara (vide Fig.3.17) possui um goniômetro de 4 círculos, que permite um alinhamento apropriado da amostra e a variação do ângulo  $\theta$ . A câmara também possui um eletroímã adequado à sistemas de vácuo, que possui campos remanentes desprezíveis. Campos magnéticos de até  $\pm 500$  Oe geram-se no plano da amostra, quando a fonte de corrente, que alimenta o eletroímã, fornece uma corrente de -10 A até + 10 A (mais detalhe Ref. [170]).

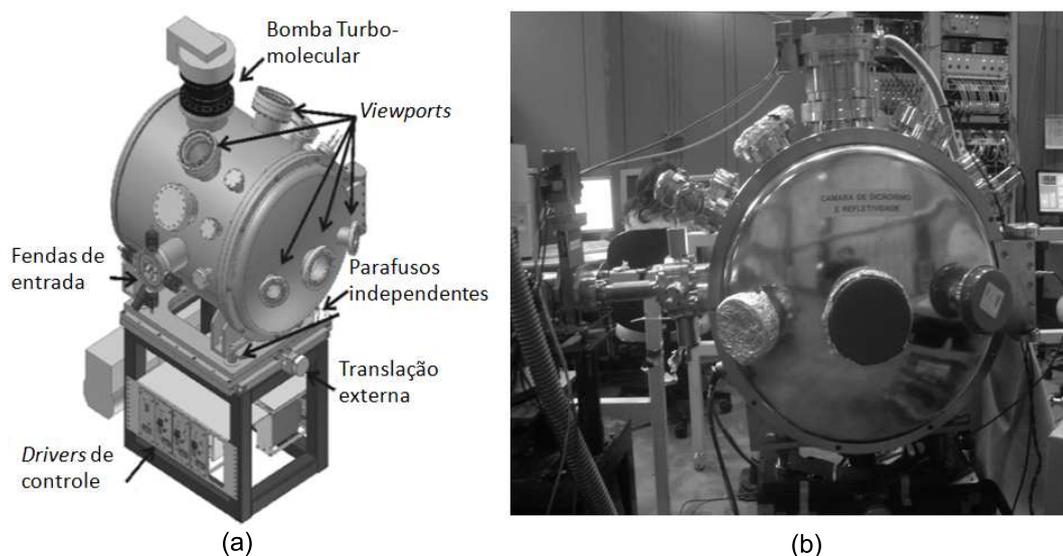


Figura 3.17: (a) Representação esquemática da montagem experimental para as medidas de XRMS [170], (b) Foto do equipamento.

Para o estudo deste trabalho, realizaram-se 3 tipos de medidas utilizando a técnica de XRMS:

1. **Refletividade magnética mantendo a energia constante e variando o ângulo incidente ( $\theta$ - $2\theta$ );**

Neste caso, seleciona-se a energia do fóton incidente para obter o sinal magnético máximo (razão de assimetria em energia máxima). Obtém-se então um difratograma  $\theta$ - $2\theta$  acoplados, onde a amostra encontra-se submetida a um campo magnético de 500 Oe, capaz de saturar a amostra, aplicado paralelo a ambos o plano da amostra e o plano de difração ( $H^+$ ). Em seguida, obtém-se outro difratograma, onde a amostra está sob ação de um campo magnético aplicado no sentido oposto ( $H^-$ ). Utilizando-se a Eq.(3.29), obtém-se a  $R_A$  em ângulos. A inferência sobre o perfil em profundidade do micromagnetismo dessa amostra obtém-se pela modelagem teórica dessa  $R_A$ .

Para modelar os difratogramas e  $R_A$ 's em ângulos, existem vários formalismos teóricos disponíveis, por exemplo, o método da matriz generalizada [171] e, o formalismo de Zak [172]. A análise quantitativa das medições de refletividade especular realiza-se normalmente por meio de simulações numéricas, onde os espectros experimentais são comparados com os teóricos. Dessa forma, determinam-se as propriedades das amostras, que podem ser obtidas por um bom ajuste dos dados experimentais. Para o caso das amostras deste trabalho, tentou-se ajustar os dados de refletividade magnética utilizando o programa *Pythonic Programming for Multilayers* (PPM) [173], que serve para ajustar a estrutura da multicamada, fatores de espalhamento, a magnetização e sua distribuição na interface, entre outras opções. Só que este programa apresenta algumas limitações, por exemplo, não considera os efeitos de anisotropia unidirecional, que estão presentes nas amostras deste trabalho. Pretende-se fazer, no futuro, uma adaptação nesse programa para analisar amostras que apresentem EB, como as nossas. Procedeu-se, então, com a análise qualitativa dessas amostras.

## 2. Refletividade magnética varrendo em energia (mantendo o ângulo incidente constante);

A partir das medidas de refletividade magnética em função do ângulo (energia fixa), obtidas com campos magnéticos em sentidos opostos ( $H^+$  e  $H^-$ ), definem-se os ângulos, onde existem assimetrias magnéticas claras e para os quais serão obtidas as varreduras em função da energia. Estes pontos coincidem geralmente com o pico de uma das franjas do difratograma. Em seguida, varre-se em energia atravessando as bordas  $L_2$  e  $L_3$  de cada elemento com o campo magnético em um sentido ( $H^+$ ) e depois no sentido oposto ( $H^-$ ). Lembrando-se de iniciar a varredura em torno de 15 eV antes da borda  $L_3$  e terminar após 15 eV da borda  $L_2$ . Utilizando-se a Eq.(3.29), obtém-se a  $R_A$  em energia. Aplicando-se o método iterativo proposto por Tonnerre e col. [148] ou usando um software específico, pode-se obter a parte imaginária da razão de assimetria (absorção), e conseqüentemente o espectro de dicroísmo. Essa análise será feita em trabalhos futuros e não constará neste trabalho de tese.

## 3. Histerese magnética.

Fixando a energia referente a cada elemento nos valores utilizados para obter as curvas de refletividade magnética em função do ângulo e os mesmos valores de ângulos utilizados para obter as curvas de refletividade em função da energia, varia-se o campo magnético aplicado de -500 Oe a +500 Oe (suficiente para saturar a amostra) para obter os ciclos de histerese.

## Capítulo 4

# Resultados Experimentais e Discussões

Neste capítulo, discutem-se as propriedades estruturais e magnéticas das duas séries de amostras preparadas por *magnetron sputtering* e cujas composições nominais são: Si(100)/*buffer layer* ( $t_B = 10$  nm)/Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> ( $t_{NiFe} = 20$  nm)/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub> ( $t_{IrMn}$ )/Co ( $t_{Co} = 10$  nm)/*Capping layer* ( $t_C = 10$  nm). Denomina-se como Série-A, as tricamadas crescidas sobre a camada semente de Cu, com notação  $t_{IrMn}^{Cu}$  e, com as espessuras da camada AFM  $t_{IrMn} = 3, 4, 5, 6, 7, 8, 12$  ou  $15$  nm. Do mesmo modo, para o sistema de tricamadas crescidas sobre a camada semente de Ta, como Série-B, com notação  $t_{IrMn}^{Ta}$  e nas espessuras  $t_{IrMn} = 4, 6, 8, 12, 15, 18, 20$  ou  $30$  nm.

### 4.1 Caracterização Estrutural por Difração de Raios-X

Utilizou-se a técnica de difração de Raios-X convencional para a caracterização estrutural das tricamadas, com o intuito de determinar o tipo de estrutura formada e a textura cristalográfica dos filmes. Realizaram-se as medidas de difração, com o difratômetro RIGAKU modelo Ultima IV, com o goniômetro operando na geometria focalizada *Bragg-Brentano* configuração  $\theta$ - $2\theta$  (vide a Sec.3.3.1) em  $20^\circ \leq 2\theta \leq 60^\circ$ , com passos angulares de  $0,01^\circ/5s$  ou  $0,02^\circ/2s$ , varreduras fora deste intervalo angular mostraram inexistências

de picos de Bragg relativo aos materiais das amostras. Usaram-se as seguintes condições para a obtenção dos difratogramas: radiação  $\text{Cu K}\alpha_{med}$  com  $\lambda = 0,15418$  nm e com filtro de Ni, uma corrente de 30 mA e voltagem de 40 kV. Assumiram-se as mesmas condições para todas as medidas de difração de Raios-X, incluído as medidas de curvas de *Rocking*.

Analísaram-se os picos de difração de Raios-X comparativamente com os valores da ficha padrão difratométrica das fases extraídas do *PDXL Software (RIGAKU Corporation* versão 1.3.0 - 2007) e também pelo *PCPDFWIN* (Versão 1.20 - 1996). Com base nessa análise, identificou-se que os filmes possuem textura cristalina. Com a identificação da textura nos padrões de difração, estima-se o parâmetro de rede  $a$  dos materiais depositados, utilizando a equação seguinte (todas as fases depositadas possuem simetria cúbica):

$$a = d\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}, \quad (4.1)$$

onde  $d$  é a distância interplanar estimada utilizando a Eq.(3.1),  $h, k, l$  são os índices de Miller referente ao pico de Bragg. Outro dado importante que se pode extrair dos padrões de difração de Raios-X convencional é o tamanho de grão cristalino  $L$  ou comprimento de coerência fora do plano. Geralmente filmes depositados pela técnica de *sputtering* apresentam estruturas policristalinas. No entanto, no sentido normal ao plano do filme, cada camada se forma por basicamente um grão, excluindo-se a interdifusão atômica e, a possível discordância dos parâmetros de rede na interface. A Eq.(4.2) é a fórmula de Scherrer [15] que sugere haver uma relação inversa entre o tamanho de grão e a largura de linha a meia altura do pico difratado.

$$L = \frac{K\lambda}{\Delta'(2\theta) \cos \theta}, \quad (4.2)$$

onde  $\lambda$  é o comprimento de onda do raio incidente,  $\Delta'(2\theta)$  é a largura de linha a meia altura do pico,  $K$  é o fator de forma (assume-se  $K = 0,9$  para grãos cilindros) e  $\theta$  é o ângulo de incidência em radianos.

### 4.1.1 Difração de Raios-X convencional para a Série-A

Inicia-se a discussão com os padrões de difração de Raios-X das amostras da Série-A, com espessuras da camada de IrMn  $t_{IrMn} = 4, 6, 8, 12$  e  $15$  nm. Apresentam-se na Fig.(4.1) os difratogramas de Raios-X da Série-A, com destaque para a região de interesse  $2\theta = 34^\circ - 54^\circ$ . Para efeito de comparação, a escala no eixo da amplitude para as Séries A e B é similar, porém devido ao fato dos picos de difração da Série-A serem menos intensos, multiplicam-se os difratogramas desta Série por um fator 20.

Observam-se nos DRX, principalmente para grandes espessuras ( $>8$  nm) do AFM, três picos de baixa intensidade (1000 contagens aproximadamente). O primeiro pico relativamente alargado, observado com maior clareza nas amostras  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  e  $15$  nm, possui posição angular  $2\theta = 41,2^\circ$  e atribui-se à fase cúbica de face centrada (fcc) do IrMn, texturizada na direção [111], como reportado na literatura [42]. O segundo pico, assimétrico em torno da posição angular  $2\theta = 44,2^\circ$  associa-se à superposição das fases fcc do NiFe e do Co,  $2\theta = 44,1^\circ$  e  $2\theta = 44,4^\circ$ , respectivamente. Ambas as camadas de NiFe e Co também possuem textura cristalina [111]. Não observa-se o pico relacionado à camada semente de Cu ( $2\theta = 43,5^\circ$ ) nos difratogramas. Sugere-se que o alargamento dos picos de Bragg nos DRX da Série-A pode também ser devido a efeitos de tensões internas geradas durante o crescimento do tamanho de grão cristalino.

O pico estreito exibido nos difratogramas para as amostras  $t_{IrMn}^{Cu} = 6, 8$  e  $15$  nm, na posição angular  $2\theta = 47,8^\circ$  refere-se a uma fase minoritária do substrato de Si(100). Além disso, ampliando uma região da amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm (figura anexada), permite observar a existência de um pico relacionado à orientação [200] ( $2\theta = 48,2^\circ$ ) do IrMn sobreposta ao pico do Si (vide linha Gaussiana usada para ajustar o pico relativo à orientação [200]). Enfatiza-se que a razão entre as duas orientações do IrMn no caso dos filmes de IrMn orientados  $\frac{I_{[111]}}{I_{[200]}} \sim 3,4$  é maior do que na fase policristalina (sem orientação preferencial), onde  $\frac{I_{[111]}}{I_{[200]}} \sim 2,4$ . Assim, as amostras da Série-A apresentam uma quantidade de grãos cristalinos com diferentes orientações cristalinas, ou seja, [200], [220] e assim por diante (os picos de Bragg seriam mascarados pelo *background*). Isto pode

explicar às baixas intensidades observadas nos picos de Bragg das amostras crescidas sobre a camada semente de Cu (Série-A). Ressalta-se que os padrões de difração na Fig.(4.1) foram multiplicadas por um fator 20 a fim de visualizar o pico [111] do IrMn.

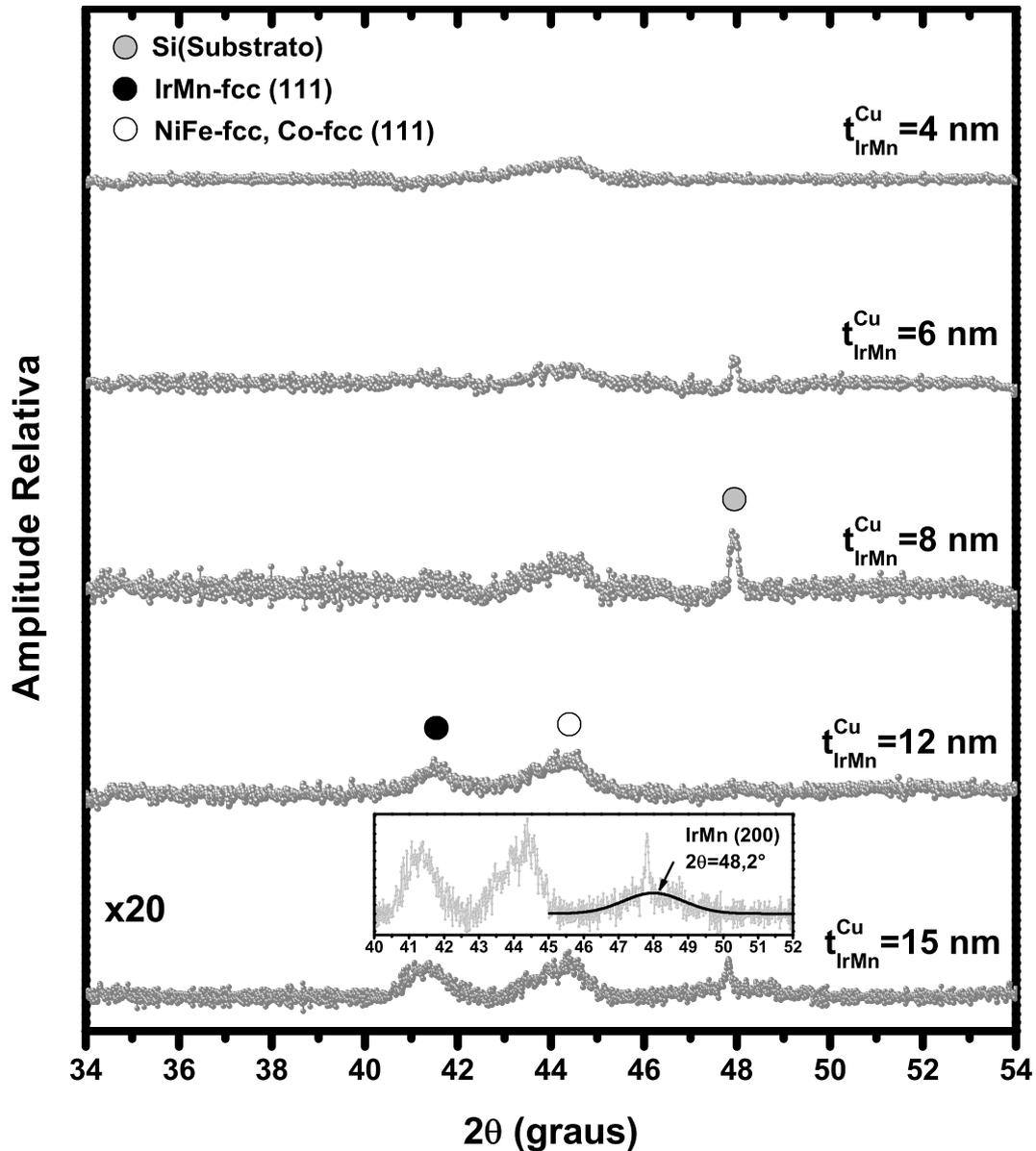


Figura 4.1: Difratomogramas convencionais de Raios-X extraídos à temperatura ambiente para a Série-A com  $t_{IrMn}^{Cu} = 4, 6, 8, 12$  e  $15$  nm. Multiplicaram-se os difratogramas por um fator 20, para que a escala seja similar para ambas as Séries A e B. Figura inserida corresponde a uma amplificação maior do que 20 para a região angular de  $40^\circ$  até  $52^\circ$ .

Estimou-se também os valores de parâmetro de rede  $a$  e tamanho de grão  $L$  da camada de IrMn nas amostras  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  e  $15$  nm. Para obter estes valores, utilizou-se uma linha Gaussiana para o ajuste do pico entorno da posição angular  $2\theta = 41,2^\circ$ , do qual se retirou os dados necessários para os cálculos descritos nas Eq.(4.1) e Eq.(4.2). Os

resultados obtidos encontram-se na Tabela 4.1.

Tabela 4.1: Valores dos parâmetro de rede  $a$  e do tamanho de grão  $L$  obtidos dos difratogramas relativo ao pico [111] do IrMn nas amostras da Série-A, com espessuras  $t_{IrMn}$  indicadas.

Amostra (nm)	Parâmetro de rede (nm)	Tamanho de grão (nm)
	$a$	$L$
$t_{IrMn}^{Cu}=12$	$0,3767\pm 0,0001$	$12,1\pm 0,5$
$t_{IrMn}^{Cu}=15$	$0,3783\pm 0,0002$	$9,9\pm 0,3$

Para as amostras com espessuras na faixa de  $4 \text{ nm} \leq t_{IrMn} \leq 8 \text{ nm}$ , não determinou-se, com precisão, o parâmetro de rede da camada de IrMn, devido à intensidade baixa e à linha alargada desse pico de Bragg. No entanto, para as amostras com espessura  $t_{IrMn}^{Cu} = 6$  e  $8 \text{ nm}$ , estimou-se aproximadamente o valor de  $a = (0,378\pm 0,001) \text{ nm}$ , um valor próximo ao valor do parâmetro de rede encontrado para a fase massiva (*bulk*) do IrMn<sub>3</sub> com estrutura tipo L1<sub>2</sub> ( $a = 0,37778 \text{ nm}$ ) [35].

#### 4.1.2 Difração de Raios-X convencional para a Série-B

Apresentam-se na Fig.(4.2) as medidas de difração de Raios-X das tricamadas da Série-B com espessuras de  $t_{IrMn} = 4, 6, 8, 12, 15, 18, 20, 24$  e  $30 \text{ nm}$ . Os três picos referentes às fases fcc do IrMn ( $2\theta = 41,2^\circ$ ), NiFe e Co encontram-se também presentes nesses difratogramas; porém com intensidades relativas bem superiores àquelas para os difratogramas da Série-A. Este crescimento da intensidade dos picos de Bragg [111] sugere que o grau de textura [111] é superior para a Série-B quando comparado com as amostras da Série-A.

Os picos de Bragg em posição angular  $2\theta = 44,2^\circ$  são bastante assimétricos, sugerindo a presença de duas fases cristalinas distintas, conseqüentemente foram ajustados com duas linhas Gaussianas (vide Fig.4.2 para  $t_{IrMn}^{Ta} = 12 \text{ nm}$ ). Desse ajuste, associa-se a linha sólida ao NiFe-fcc em  $2\theta = 44,1^\circ$ , enquanto os círculos vazios refere-se à estrutura do Co-fcc em  $2\theta = 44,4^\circ$  (vide figura ampliada no lado direito do DRX da amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 12 \text{ nm}$ ).

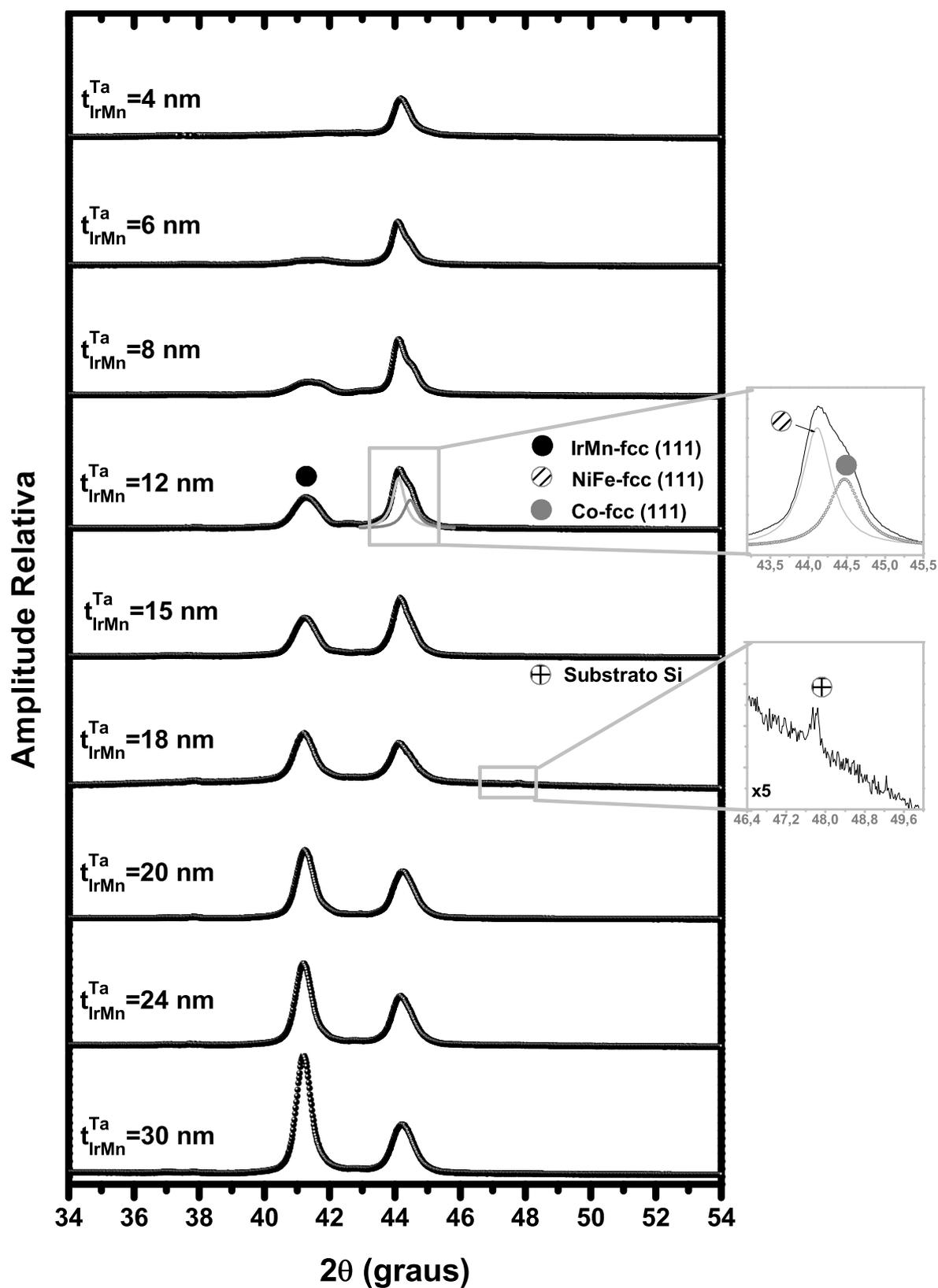


Figura 4.2: Difratogramas convencionais de Raios-X extraídos à temperatura ambiente para a Série-B com  $t_{IrMn} = 4, 6, 8, 12, 15, 18, 20, 24$  e  $30$  nm. Ao lado mostram-se duas ampliações, para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 12$  nm e para  $t_{IrMn}^{Ta} = 18$  nm (padrão de difração multiplicado pelo fator 5).

Observa-se que a qualidade cristalina das amostras não altera significativamente a medida que a espessura da camada de IrMn aumenta, mas a intensidade dos picos de Bragg correlaciona-se com o aumento da espessura do AFM  $t_{IrMn}$  para esta série. Deve-se ressaltar que as intensidades dos picos de Bragg do IrMn encontram-se na faixa de 10000-40000 contagens para o pico do IrMn. Por outro lado, os picos do NiFe e Co apresentam também intensidades altas (13000-19000 contagens). Frisa-se que o aumento da espessura  $t_{IrMn}$  melhora as contribuições dos padrões de Raios-X das camadas de IrMn, NiFe e Co. O pico de difração da camada semente de Ta não é observado ( $2\theta = 38,6^\circ$ ), o que poderia ser explicado provavelmente por formação de nanocristalitos ou de camada amorfa no Ta [35].

Ajustando-se os DRX da Fig.(4.2), observa-se que o aumento da espessura do IrMn nas tricamadas da Série-B sugere um deslocamento nas posições angulares dos picos de difração para ângulos menores, o que indica um aumento do parâmetro de rede (vide valores dispostos na Tabela 4.2).

Tabela 4.2: Valores dos parâmetro de rede  $a$  e do tamanho de grão  $L$  obtidos de ajustes dos difratogramas de raios-X da Série-B relativo a camada de IrMn texturizada [111].

Amostra (nm)	Parâmetro de rede (nm)	Tamanho de grão (nm)
	$a$	$L$
$t_{IrMn}^a = 6$	$0,3764 \pm 0,0001$	$6,4 \pm 0,2$
$t_{IrMn}^a = 8$	$0,3777 \pm 0,0001$	$8,3 \pm 0,1$
$t_{IrMn}^a = 12$	$0,3786 \pm 0,0001$	$11,0 \pm 0,1$
$t_{IrMn}^a = 15$	$0,3789 \pm 0,0002$	$12,7 \pm 0,1$
$t_{IrMn}^a = 18$	$0,3793 \pm 0,0001$	$13,1 \pm 0,2$
$t_{IrMn}^a = 20$	$0,3790 \pm 0,0002$	$15,3 \pm 0,2$
$t_{IrMn}^a = 24$	$0,3794 \pm 0,0002$	$16,6 \pm 0,2$
$t_{IrMn}^a = 30$	$0,3794 \pm 0,0002$	$18,1 \pm 0,2$

### 4.1.3 Difração de Raios-X a ângulos rasantes

Através de medidas de difração de Raios-X em ângulos rasante também chamada de refletividade, podem-se obter informações sobre as espessuras individuais das camadas e as rugosidades interfaciais. Na Fig.(4.3), apresentam-se as curvas de refletividade obtidas à temperatura ambiente para as amostras  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  nm e  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm, no intervalo angular  $0,4^\circ \leq 2\theta \leq 9^\circ$ , com o difratômetro RIGAKU operando na geometria *Parallel Beam* e as condições assumidas na difração convencional. A linha preta é o dado experimental, enquanto a linha cinza representa o ajuste da respectiva curva, obtida usando o programa WINGIXA - Phillips, utilizado para determinar as espessuras e rugosidades das camadas depositadas.

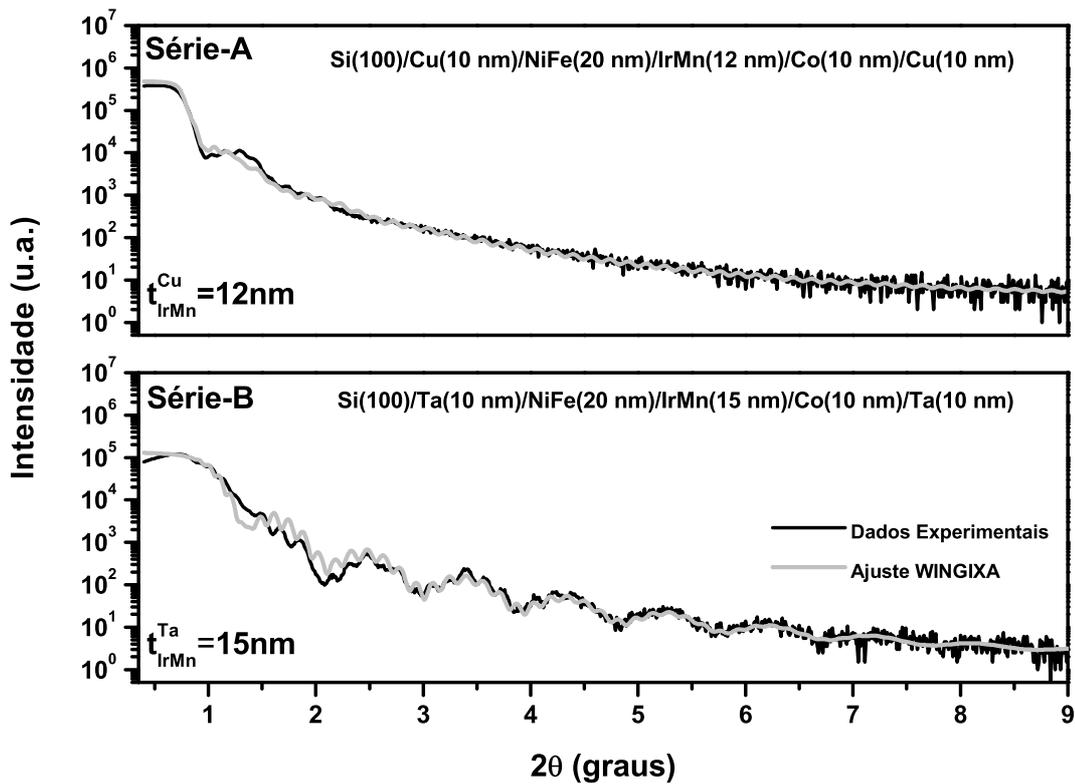


Figura 4.3: Curvas de refletividades das tricamadas  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  nm e  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm (em linha preta) e os ajustes teóricos obtidos com o programa WINGIXA dispostos em cinza.

A curva da amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  nm é característica de uma amostra rugosa. No entanto, para o caso da amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm, pode-se atribuir a uma multicamada com interfaces planas. A ausência de franjas na curva de refletividade da amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  nm torna a análise difícil e talvez não muito confiável. Considerando os ajustes dessas

curvas, infere-se que enquanto a rugosidade na interface Si/*buffer* é  $\sigma = 0,2$  nm para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm, para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  nm  $\sigma = 2,8$  nm. Assim, provavelmente deve haver uma quantidade extra de interdifusão atômica entre o substrato e a camada *buffer* no sistema com Cu, já que a curva de refletividade pode estar fortemente influenciada pela rugosidade e a interdifusão atômica nas interfaces.

Na Tabela 4.3, dispõem-se os resultados dos ajustes das curvas de refletividade (Fig.4.3) das amostras Si(100)/X(10 nm)/NiFe(20 nm)/IrMn( $t_{IrMn}$ )/Co(10 nm)/X(10 nm) (para X, Cu ( $t_{IrMn} = 12$  nm) ou Ta ( $t_{IrMn} = 15$  nm)), onde visualiza-se os valores das espessuras das camadas individuais e as rugosidades de cada interface particular obtidas dos ajustes.

Tabela 4.3: Valores teóricos das espessuras e as rugosidades interfaciais das tricamadas X( $t_X=10$  nm)/NiFe( $t_{NiFe}=20$  nm)/IrMn( $t_{IrMn}$ )/Co( $t_{Co} =10$  nm)/X( $t_X=10$  nm), onde X é o Cu ou Ta. Dados obtidos pelos ajustes das curvas de refletividade utilizando o WINGIXA.

$t_{IrMn}^X$	$\sigma$	<i>Buffer</i>	$\sigma$	NiFe	$\sigma$	IrMn	$\sigma$	Co	$\sigma$	<i>Capping</i>	$\sigma$
nm	nm	$t_X$ nm	nm	$t_{NiFe}$ nm	nm	$t_{IrMn}$ nm	nm	$t_{Co}$ nm	nm	$t_X$ nm	nm
$t_{IrMn}^{Cu}=12$	2,8	10,0	0,2	19,6	1,0	12,5	1,5	10,0	1,0	9,3	0,0
$t_{IrMn}^{Ta}=15$	0,2	8,9	0,5	20,4	1,0	14,7	1,2	10,6	0,3	9,1	0,1

Enfatiza-se que os valores calculados das espessuras de cada camada estão muito próximos aos correspondentes valores nominais considerando o erro experimental ( $\pm 0,2$  nm).

#### 4.1.4 Medidas de curvas de *Rocking*

Usam-se as medidas de curvas de *Rocking* (RC) para o estudo de defeitos dos filmes finos e cristais *bulk*, tais como: o grau de , curvatura da amostra, a inhomogeneidade, entre outros. Este método é realizado efetuando uma varredura angular (ou balanço) na amostra, enquanto o detector é mantido fixo no ângulo  $2\theta$  no centro da reflexão de Bragg ( $2\theta$  ao qual corresponde o pico de difração da fase pretendida). Registra-se então a intensidade difratada dos planos preferencialmente orientados. Essa medida permite

quantificar o grau de alinhamento dos grãos da área irradiada da amostra. Assim, estima-se o grau de orientação preferencial através da medida da largura de linha a meia altura do pico de difração obtido nesta condição de varredura (FWHM do inglês *full width at half maximum*). Teoricamente, prevê-se que um monocristal perfeito tenha uma FWHM =  $0,003^\circ$ , mas, na prática, ocorrem valores 10 a 100 vezes maiores [117]. Quanto menor for o valor do FWHM, melhor será a qualidade cristalográfica da amostra.

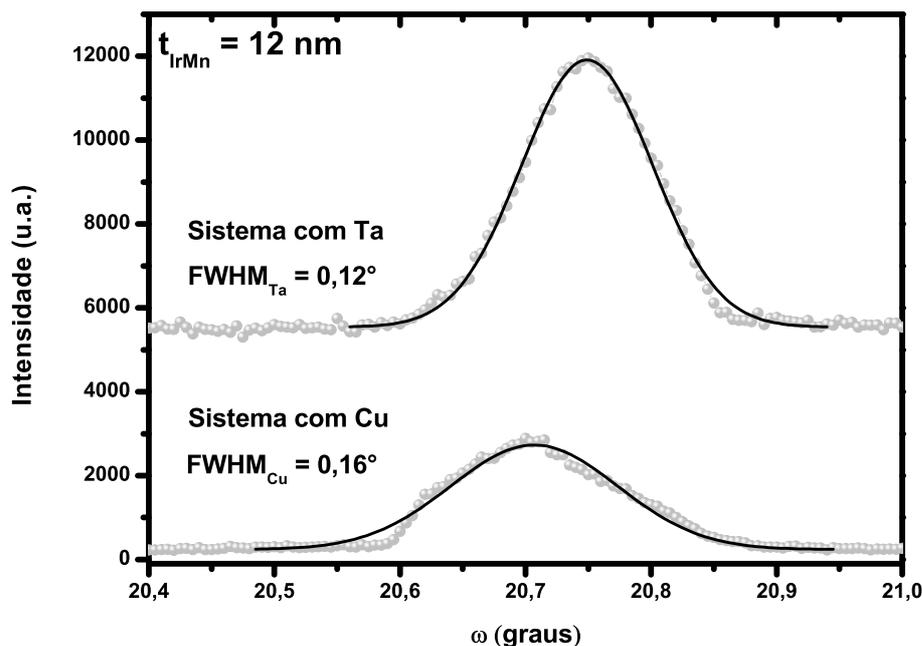


Figura 4.4: Curvas de *Rocking* para as amostras  $t_{IrMn}^{Cu}$  e  $t_{IrMn}^{Ta}$  com  $t_{IrMn} = 12$  nm para a reflexão [111] do IrMn.

Utilizou-se o difratômetro RIGAKU para as medidas de RC com a montagem seguinte: O detector é movimentado à posição angular  $2\theta = 41,2^\circ$  (reflexão [111] do IrMn), a amostra permanece fixa e o tubo de Raios-X ( $\theta$ ) varre no intervalo angular  $20^\circ \leq \theta \leq 21^\circ$  com passos de  $0,005^\circ/s$ . Apresentam-se na Fig.(4.4) as medidas de curvas de RC para as amostras  $t_{IrMn}^{Cu}$  e  $t_{IrMn}^{Ta}$  com  $t_{IrMn} = 12$  nm. Ajustaram-se estas curvas de *Rocking* usando uma linha Gaussiana (vide Fig.4.4 - linha sólida), onde os valores das FWHM's de ambas as amostras das Séries A e B mostraram que são semelhantes, cerca de  $0,16^\circ$  e  $0,12^\circ$ , respectivamente. Este resultado indica que ambas as séries apresentam o mesmo baixo grau de mosaicidade, considerando o erro experimental. Utilizando os resultados de refletividade, se a rugosidade da interface Si/Cu houvesse propagado para as camadas superiores, seria de esperar um maior grau de mosaicidade para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  nm. Contudo, a rugosidade na interface do IrMn na amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  nm não é significativamente diferente a observada na amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm (a suposição da

interdifusão entre o Si e Cu pode ser realmente a origem da alta rugosidade observada pelas medidas de refletividade).

Algumas conclusões preliminares inferem-se dos resultados acima apresentadas:

- Um ponto que se destacou dos difratogramas de ambas as Séries A e B é a grande diferença na intensidade dos picos das estruturas cristalinas fcc do IrMn, NiFe e Co. Por esta razão, multiplicam-se os padrões de difração da Série-A (Fig.4.1) por um fator 20 para que ambos os gráficos (Fig.4.1 e 4.2) ficassem na mesma escala. A intensidade integral (área) e a altura do pico do IrMn da amostra da Série-B ( $t_{IrMn} = 15$  nm) é 50 e 63 vezes, respectivamente, maior que aquela para a amostra da Série-A ( $t_{IrMn} = 15$  nm). Nota-se também este efeito se usarmos por exemplo, as intensidades relativas entre os picos do IrMn e do Si (pico mostrado no difratograma) para a Série-A. As alturas dos picos de Si e IrMn são da mesma ordem na amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm, porém na amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm, a altura do pico do Si é imperceptível, mesmo com uma ampliação x5 do padrão de difração, vide ampliação na Fig.(4.2).
- Observa-se também, que somente para duas amostras específicas ( $t_{IrMn}^{Cu} = 6$  ou 8 nm e  $t_{IrMn}^{Ta} = 8$  nm) a fase L1<sub>2</sub> de IrMn [35] sem tensão é estabilizada. Para outros valores de  $t_{IrMn}$ , haverá na interface uma tensão intrínseca causada pela não relaxação na estrutura tipo fcc. Esta suposição será confirmada pelos resultados magnéticos, uma vez que as características do *Exchange Bias* e *Exchange Spring* são diretamente afetadas pelo efeito de tensão intrínseca de acoplamento entre as camadas.
- As amostras da Série-B apresentam maior grau de textura [111]-fcc que as da Série-A. Este efeito de textura definitivamente influenciará nas propriedades magnéticas das tricamadas, como será discutido mais adiante.
- Os valores de  $L$  são semelhantes aos valores nominais  $t_{IrMn}$  (até  $t_{IrMn} = 20$  nm), considerando as incertezas calculadas. Assim, este resultado sugere que a camada de IrMn, com  $t_{IrMn} < 20$  nm, é composta basicamente por um grão ao longo da direção de crescimento.

## 4.2 Caracterização Magnética

### 4.2.1 Curvas de $M(H)$ obtidas por Magnetometria

Antes de discutir os principais resultados de magnetização das tricamadas NiFe/IrMn/Co para ambas as Séries, apresenta-se o estudo da anisotropia magnética obtido a partir de curvas de  $M(H)$  com o campo aplicado no plano dos filmes. Com este procedimento, buscou-se definir as direções de fácil magnetização e a camada de magnetismo dominante, para depois realizar o procedimento de resfriamento (*Field Cooling* - FC) com campo aplicado, conseqüentemente induzindo assim o efeito de EB nas interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co.

Em primeiro lugar, menciona-se que na fase inferior do substrato existe uma marca indicando a orientação [110] do substrato de Si(100). O substrato é colocado no porta-amostra do VSM, de forma que a marca faça um ângulo  $\theta$  com relação à direção do campo magnético aplicado. Assim, quando o ângulo  $\theta = 0^\circ$ , a direção do campo magnético aplicado e a direção [110] do substrato estão paralelas.

Em segundo lugar, na sequência de medida  $M(H)$ , assume-se dois Protocolos de medida para a obtenção dos laços de histereses das tricamadas de ambas as Séries, conforme detalhamento a seguir:

- Protocolo 1 (para a amostra no estado de recém depositada): Procede-se uma medida  $M(H)$ , à temperatura ambiente, onde o campo magnético é variado de -500 Oe a + 500 Oe para obter o ciclo de histerese da amostra virgem.
- Protocolo 2 (FC): A amostra encontra-se a 300 K depois de realizado o Protocolo 1. Realiza-se o aquecimento da amostra até à temperatura de 400 K, com posterior resfriamento sob campo magnético externo  $H_{FC}$  de 10 ou 500 Oe aplicado paralelo à superfície do filme até à temperatura de 300 K. Em seguida, constrói-se o laço  $M(H)$  com campo de varredura de  $\pm 500$  Oe. Esse procedimento é suficiente para

estabilizar o EB em regiões locais onde os valores da  $T_B$  são inferiores a 400 K [174,175], resultando no travamento dos *spins* nas interfaces; isto facilita o estudo proposto do acoplamento entre as camadas magnéticas com a presença do EB.

Em terceiro lugar, escolheu-se a magnitude do campo de resfriamento  $H_{FC}$ . Utilizou-se, como referência, os dados reportados na literatura por Yang e col. [30] para o sistema NiFe/FeMn/Co. Os autores observaram em medidas de  $M(H)$ , à temperatura de 400 K para a amostra como depositada ( $t_{FeMn} = 15$  nm), que as magnetizações das camadas de Co e do NiFe encontravam-se antiparalelas em um campo  $H = -9$  Oe. Escolheu-se então, para nosso estudo, um campo magnético de resfriamento  $H_{FC} = 10$  Oe. Antecipa-se que para este valor de campo (10 Oe), as camadas de NiFe e Co encontram-se também antiparalelamente acopladas, para as amostras no estado como depositadas quando a espessura do IrMn favorecer um estado AFM estabilizado. Enfatiza-se que tomaram-se também curvas de  $M(H)$  para um campo  $H_{FC}$  de 500 Oe. Ressalta-se que os laços  $M(H)$  obtidos para ambos valores de campo  $H_{FC}$  (10 ou 500 Oe) e para ambas as Séries de filmes (A e B), como se mostra na Fig.(4.5-a) para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 5$  nm, são idênticos. Discute-se mais adiante, quando forem apresentados os resultados de dependência de  $H_{EB}$  e  $H_C$  em função da espessura do IrMn. Realizou-se também medidas  $M(H)$  com campos de  $H_{FC}$  opostos (+10 Oe e -10 Oe). Na Fig.(4.5-b) ilustra-se as medidas considerando ambos sentidos do campo aplicado para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 6$  nm, resultando num laço superposto ao outro. Conclui-se, usando os dados apresentados na Fig.(4.5), que nem o sentido e nem a magnitude do campo de resfriamento  $H_{FC}$  neste intervalo de valores são relevantes para a determinação das propriedades magnéticas dos filmes das Séries-A e B do sistema NiFe/IrMn/Co. Sendo assim, assumiu-se o valor de  $H_{FC} = 10$  Oe para a realização deste estudo.

Em quarto lugar, realizou-se o estudo da anisotropia planar do  $H_{FC}$  através de medidas de obtenção de curvas  $M(H)$  com campo aplicado em diferentes direções (no plano) durante o Protocolo 2. Em resumo, roda-se a marca da amostra ( $\theta = 0^\circ$ ) em ângulos de  $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $70^\circ$  e  $90^\circ$ , com relação à direção do campo aplicado. Aplica-se o Protocolo 2 e obtém-se um laço de histerese para cada posição de  $\theta$ . É importante frisar que, para

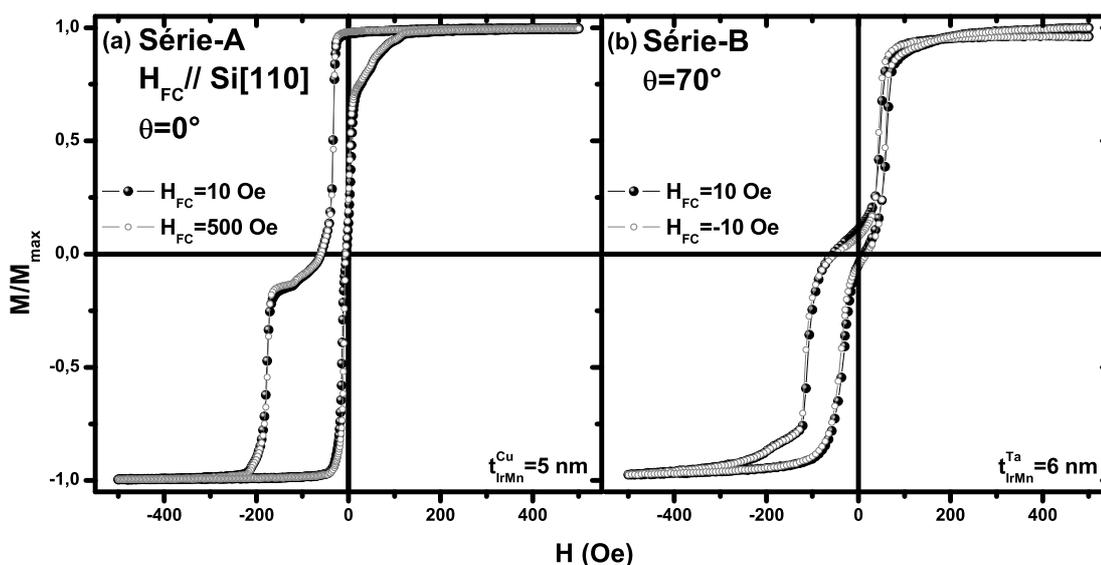


Figura 4.5: Laços de histereses normalizados  $M(H)$  para a amostra (a)  $t_{IrMn}^{Cu} = 5$  nm da Série-A com  $H_{FC} = 10$  Oe ( $\bullet$ ) e  $H_{FC} = 500$  Oe ( $\circ$ ), e para a amostra (b)  $t_{IrMn}^{Ta} = 6$  nm da Série-B medidas com campo de resfriamento de  $H_{FC} = 10$  Oe ( $\bullet$ ) e  $H_{FC} = -10$  Oe ( $\circ$ ).

cada nova direção assumida, utilizou-se um pedaço virgem da amostra, antes de aplicar o Protocolo 2. Deste modo, a condição inicial é sempre a mesma, diferente do caso, onde a memória magnética pode ser armazenada nas amostras, uma vez que a temperatura inicial no Protocolo 2 é relativamente baixa (400 K). Além disso, tem sido reportado [176], que o Protocolo 2, aplicado à bicamada FM/AFM, pode reorientar a anisotropia efetiva da camada FM devido à presença da camada AFM que induz um termo magnético não-colinear na camada FM. É relevante mencionar que este efeito afeta particularmente a camada de baixa anisotropia magnética uniaxial  $K_U$ , como por exemplo, o NiFe. Para esta tese, as amostras são tricamadas formadas com dois materiais FM's de anisotropias  $K_U$  diferentes (o filme de Co é usualmente um magneto duro quando comparado com o filme de NiFe).

Inicialmente, realiza-se uma análise detalhada dos resultados que podem ser obtidos tomando os dados experimentais apresentados na Fig.(4.6).

- Fig.(4.6-a): Para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 6$  nm, observa-se que os laços de histereses relacionados compõem-se da superposição de dois laços: um do NiFe (2 quadrante) e o outro do Co (3 quadrante) que, por sua vez, apresenta-se tendo uma forma relativamente quadrada, independente da direção do campo magnético  $H_{FC}$  com

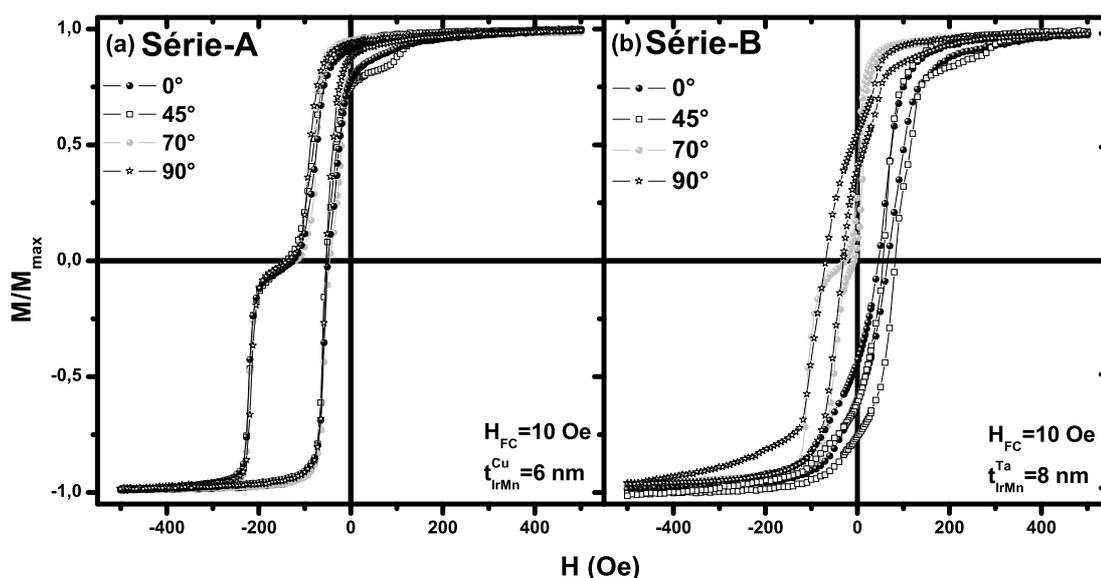


Figura 4.6: Laços de histereses normalizados tomados à temperatura ambiente para as amostras (a)  $t_{IrMn}^{Cu} = 6$  nm e (b)  $t_{IrMn}^{Ta} = 8$  nm após ser resfriadas com  $H_{FC} = 10$  Oe (Protocolo 2). O  $H_{FC}$  para cada laço está a  $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $70^\circ$  e  $90^\circ$  com relação à direção  $[110]$  do substrato de Si.

respeito à direção  $[110]$  do Si ( $\theta = 0^\circ$  a  $90^\circ$ ). Isto sugere que a camada de Co, na Série-A, apresenta uma anisotropia magneto-cristalina efetiva  $K_{eff}^{Co}$  relativamente baixa. Observa-se também que o laço da camada de Co não sofre alterações, mesmo a diferentes direções. Assim, espera-se que domínios magnéticos sejam formados dentro da camada de Co durante o processo de resfriamento, ou então, deveria haver diferenças na forma do laço de histerese quando o campo fosse aplicado nos eixos de magnetização fácil ou médio. Por outro lado, o laço referente ao NiFe sofre pequenas alterações, dependendo da direção do  $H_{FC}$ . Este efeito pode ser atribuído à ação da  $K_{eff}^{NiFe}$  que, por sua vez, depende dos termos uniaxiais e não-colineares de acoplamento entre as camadas do sistema NiFe/IrMn/Co (esses efeitos podem ser distinguidos devido ao baixo  $K_{eff}^{Co}$  comparado ao encontrado mais adiante para a Série-B). Particularmente para esta amostra, o laço de histerese, tomado usando o Protocolo 2, sugere um acoplamento magnético paralelo entre as camadas FM's;

- Fig.(4.6-b): Para as amostras da Série-B, observa-se que os laços de histereses apresentam um comportamento oposto ao da Série-A. A rotação da amostra relativo à direção do campo  $H_{FC}$ , levou a 4 curvas  $M(H)$  distintas. Quando a direção do campo magnético for aplicado fora da direção da magnetização fácil ( $\theta = 70^\circ$ ), os laços de histereses  $M(H)$ , obtidos para a amostra com  $t_{IrMn}^{Ta} = 8$  nm (vide Apêndice A), mostraram formas relativamente complexas, principalmente para  $\theta = 0^\circ$ ,

45° e 90°. Consequentemente, as contribuições das camadas de Co e NiFe para estes laços  $M(H)$  não permitem a separação independente das contribuições das camadas de NiFe e Co como realizou-se para a amostra da Série-A que se discutiu acima. Neste caso, a camada de Co apresenta um alto valor de anisotropia magneto-cristalina  $K_{eff}^{Co}$  em comparação com o obtido para a camada do Co da Série-A.

Após concluir estes estudos prévios, pôs-se as seguintes condições para as medidas  $M(H)$  de ambas as Séries:

- Usa-se o valor  $H_{FC} = + 10$  Oe para o processo de resfriamento das amostras na presença de campo, pois este valor é suficiente para induzir um campo de troca/polarização nas interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co, consequentemente favorece um estudo do ângulo de acoplamento magnético entre as camadas FM's (devido a condição de mola magnética gerada pela estrutura de *spins* da fase AFM do IrMn);
- Para as medidas  $M(H)$  da Série-A, usa-se a direção de aplicação do campo de resfriamento como sendo  $\theta = 0^\circ$  (vide Fig.4.7);
- Para a Série-B, tomam-se as curvas  $M(H)$  quando o plano da amostra formava um ângulo  $\theta = 70^\circ$  com a direção do campo de resfriamento ( $H_{FC}$  formando  $70^\circ$  com [110] do Si e [100] do Co), pois nesta condição (direção de fácil, já que o laço é praticamente quadrado e com baixos campos para atingir a saturação da magnetização) pode-se buscar a separação das contribuições das camadas de Co e NiFe, e obter uma melhor estimativa dos parâmetros de EB.

Assumindo as condições ditas acima, investigaram-se as propriedades magnéticas das tricamadas, objetivando-se entender o comportamento do campo de *Exchange Bias*  $H_{EB}$  e, do campo coercitivo  $H_C$  em função da espessura do espaçador de IrMn, para as interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co de ambas as séries, consequentemente sua influência sob a estrutura de *spins* da camada AFM IrMn (estudo do ângulo de acoplamento entre as camadas FM's dos filmes).

Deve-se frisar que a escolha da espessura da camada de NiFe ser maior que a da camada de Co, deve-se ao fato da magnetização do Co ser praticamente o dobro da do NiFe, senão a contribuição do Co dominaria o laço magnético mascarando as contribuições da camada de NiFe. Assim, assumiu-se a relação 2 para 1 entre as espessuras de NiFe e Co, respectivamente, para estudar o comportamento do ângulo de acoplamento magnético entre as camadas FM's

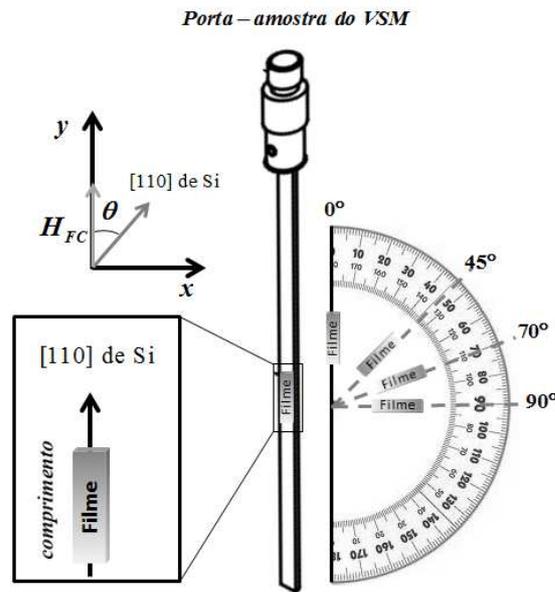


Figura 4.7: Representação esquemática da posição das amostras na haste do VSM em relação à direção do campo magnético. Mede-se, com transferidor, o ângulo  $\theta$  entre a direção [110] do Si e o campo aplicado. Usou-se os seguintes valores para  $\theta = 0^\circ, 45^\circ, 70^\circ$  e  $90^\circ$ .

#### 4.2.2 Resultados de curvas $M(H)$ usando os Protocolos 1 e 2 para a Série-A

Inicia-se a discussão sobre as medidas de magnetização em função do campo para as tricamadas da Série-A. Apresentam-se na Fig.(4.8) os laços  $M(H)$  normalizados ao valor máximo da magnetização e obtidos com campo magnético aplicado paralelo ao eixo de magnetização fácil da camada de Co para as amostras com espessuras de  $t_{IrMn}^{Cu} = 5, 6, 7, 8, 12$  e  $15$  nm. Os círculos vazados na figura referem-se aos dados experimentais obtidos pelo Protocolo 1, os laços que apresentam círculos cheios correspondem aos dados obtidos usando o Protocolo 2. As linhas sólidas são guias para os olhos.

Considerando os resultados das amostras obtidos pelo Protocolo 1, infere-se que o acoplamento entre as camadas desempenha o seu papel, mesmo na ausência da indução do efeito de EB. Nas amostras  $t_{IrMn}^{Cu} = 5$  e 6 nm, não é difícil de ver que o laço de histerese é constituído por dois laços centrados próximo de campo nulo, indicando um baixo ângulo de acoplamento  $\Delta\Psi$  entre as camadas magnéticas.

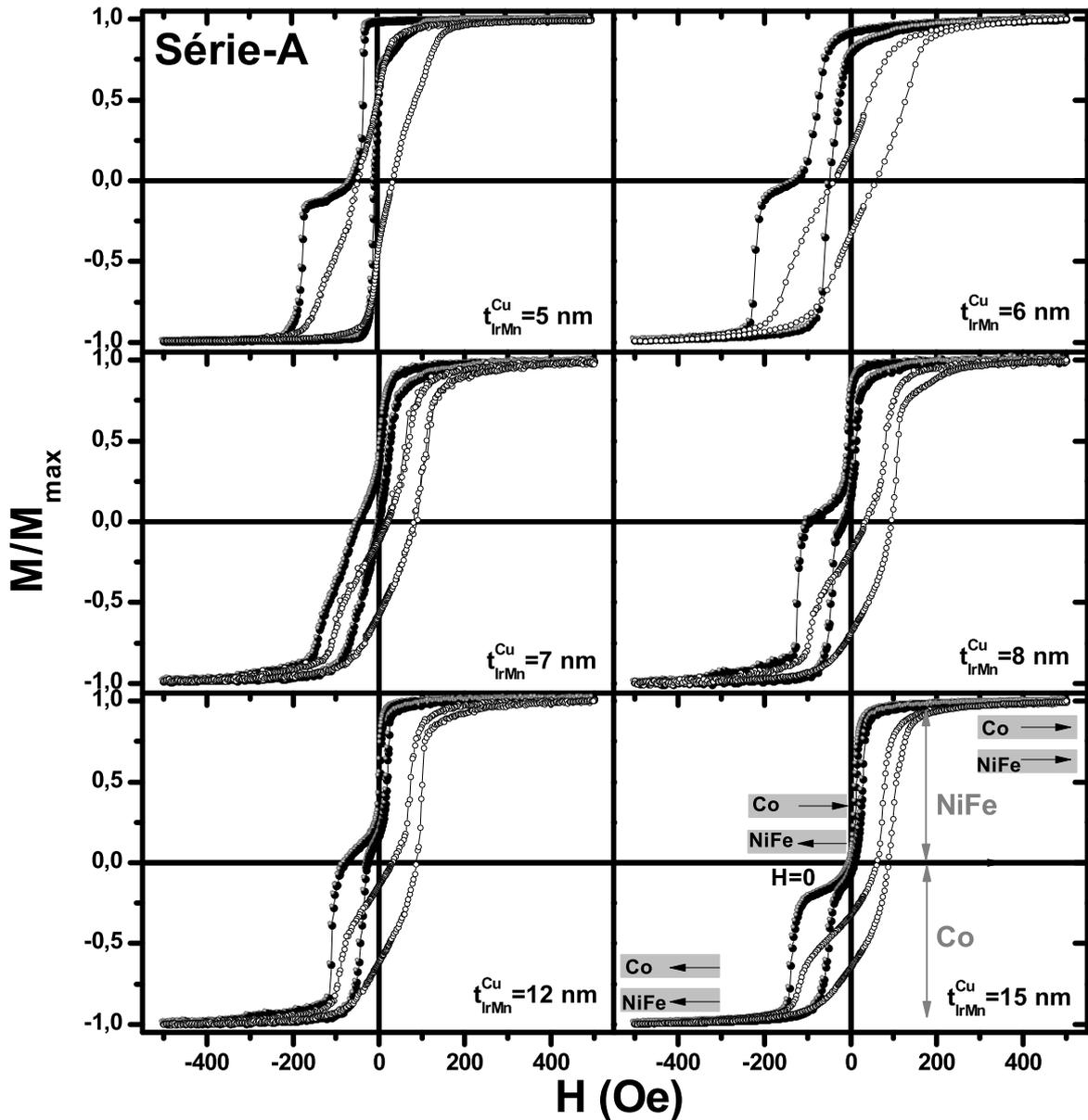


Figura 4.8: Laços de histerese normalizados da Série-A obtidos pelo Protocolo 1 (○) e Protocolo 2 (●) com campo  $H_{FC} = 10$  Oe para as amostras com espessura  $t_{IrMn} = 5, 6, 7, 8, 12$  e 15 nm. O campo magnético é paralelo à direção [110] do substrato de Si. As linhas são guias aos olhos e normalizaram-se as escalas em todos os gráficos tomando o valor máximo da magnetização em cada caso.

Observa-se das medidas no Protocolo 2, dois laços diferenciados, correspondentes as camadas FM's. O primeiro laço com baixo valor de  $H_C$  é característico de um material magneticamente mole, portanto pode ser atribuído a contribuição da camada NiFe. O segundo laço, com sua forma praticamente quadrada e campo coercitivo maior, atribui-se à camada de Co. Assim, as distintas constantes de anisotropias magnéticas intrínsecas das camadas de NiFe e Co contribuem principalmente para a diferença na largura observada nos laços de histereses. Além disso, estes laços de histereses apresentam-se com uma certa assimetria devido às anisotropias unidirecionais induzidas nas interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co.

Outra observação da contribuição da camada de Co para os laços  $M(H)$  é o deslocamento ao longo do eixo do campo magnético para valores negativos, devido ao efeito de *Exchange Bias* originado pela interação na interface entre as camadas de IrMn e Co. Nesta interface IrMn/Co, o comportamento dos *spins* do Co tenderão a seguir a inversão do campo. Como a anisotropia do AFM é menor do que a camada de Co, arrastam-se os *spins* interfaciais do AFM pelos da camada de Co resultando em uma rotação conjunta. A energia associada a esta mudança irreversível na camada do AFM traduz, então, em um aumento da coercividade como observado na Fig.(4.8). Para o caso, da camada de NiFe, o laço desloca-se para campos magnéticos positivos devido ao efeito de EB na interface NiFe/IrMn.

As setas verticais mostradas na Fig.(4.8) para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm, indicam as regiões dos laços resultantes das contribuições das camadas ferromagnéticas de NiFe e Co. Para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm, apresenta-se as direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co em três distintas regiões: saturação em campos positivos e negativos e quando o campo é praticamente nulo. Além disso, para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm, constroem-se esquematicamente representações das magnetizações em três regiões distintas, ou seja, as setas representam a direção da magnetização de cada camada magnética (NiFe e Co) e, indicam as condições de saturação em dois sentidos opostos do campo magnético, onde as magnetizações das camadas FM's tem um acoplamento paralelo. Para o caso quando o campo  $H = 0$ , as magnetizações das camadas de Co e NiFe apresentam um acoplamento antiparalelo.

### 4.2.3 Resultados de curvas $M(H)$ usando os Protocolos 1 e 2 para a Série-B

Para o processo de caracterização magnética na série de amostras com forte crescimento na direção [111] da camada de IrMn, usou-se o ângulo definido entre o campo magnético estático e o eixo de magnetização fácil da camada de Co de  $\theta = 70^\circ$  (vide discussão no início desta Seção). Na Fig.(4.9), apresentam-se as curvas  $M(H)$  normalizadas ao valor de magnetização máxima, similar aos dados da Série-A, para as tricamadas com  $t_{IrMn} = 6, 8, 12, 15, 18, 20, 24$  e  $30$  nm. Os laços de histereses representados com círculos vazados referem-se às amostras obtidas pelo Protocolo 1, enquanto que os tomados com o Protocolo 2 correspondem aos círculos cheios. As linhas conectando os pontos experimentais servem para guia aos olhos.

Para o caso das medidas  $M(H)$  no Protocolo 2, observa-se sempre um laço relativamente estreito na região de campos positivos devido aos momentos da camada NiFe serem facilmente alinhados ao campo aplicado. De maneira similar ao observado nos laços das amostras da Série-A, na região de campos magnéticos aplicados negativos, tem-se a contribuição de um laço proveniente de um material com maior anisotropia magnética do que a do NiFe e que se atribui a contribuição magnética proveniente da camada de Co. Em geral, para as amostras desta série, os laços de histereses apresentam características de um acoplamento antiferromagnético entre as camadas FM's, similarmente ao observado para as tricamadas NiFe/FeMn/Co [30].

De uma análise comparativa dos resultados de  $M(H)$  para ambas as séries (A e B), observa-se dos resultados da Série-B que tanto  $M(H)$  das amostras no estado como depositadas (Protocolo 1), como em medidas com anisotropia unidirecional induzidas (Protocolo 2), apresentam laços mais finos para ambas as camadas FM's. Discutir-se-á este efeito tomando como base os comportamentos de  $H_{EB}$  e  $H_C$  em função da espessura de IrMn.

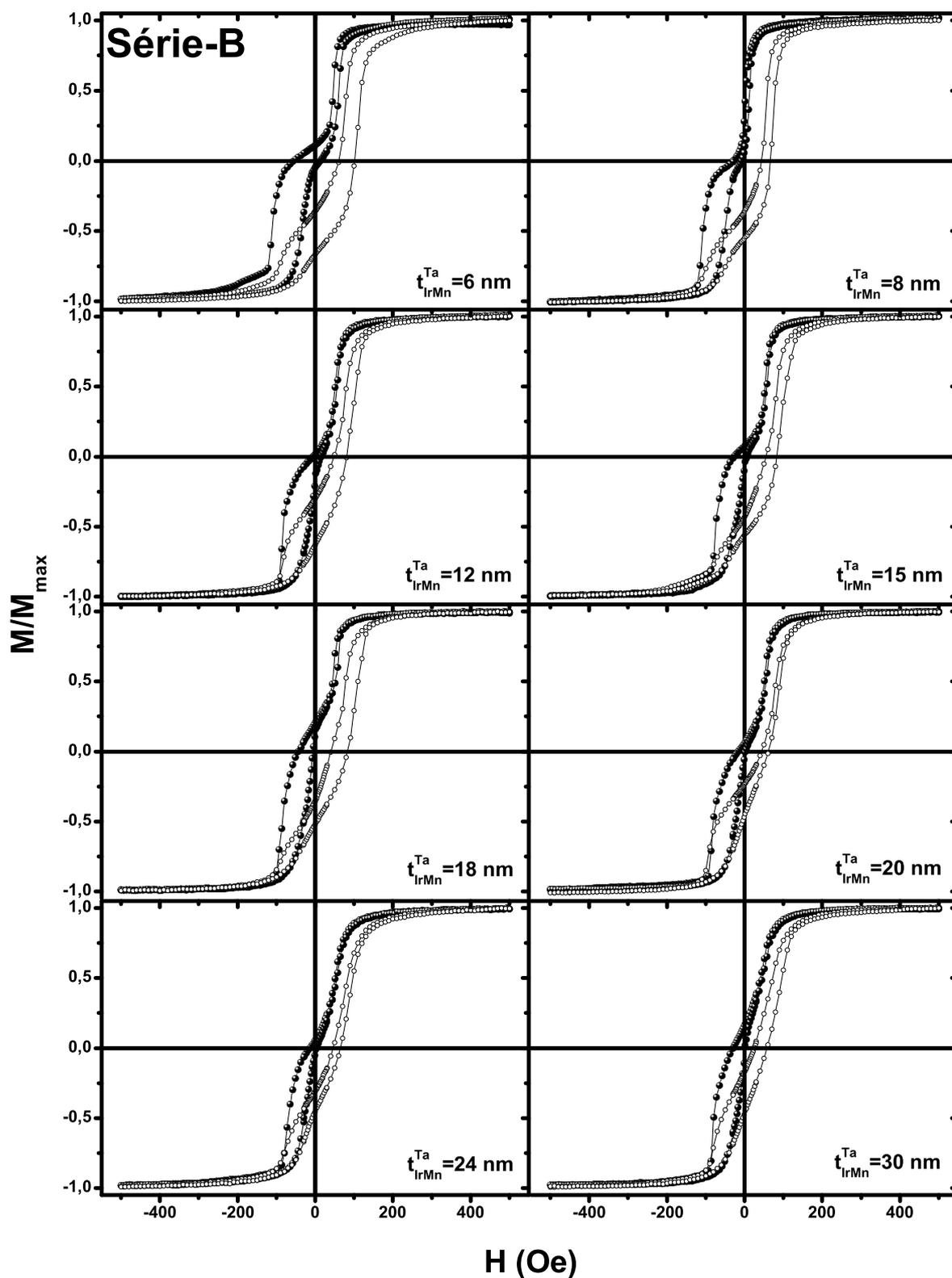


Figura 4.9: Laços de histereses normalizados da Série-B obtidos no Protocolo 1 ( $\circ$ ) e no Protocolo 2 ( $\bullet$ ). Obtiveram-se estes laços com o campo aplicado fazendo um ângulo de  $70^\circ$  com relação a direção  $[110]$  do Si. Usaram-se as seguintes espessuras de IrMn para a Série-B  $t_{\text{IrMn}} = 6, 8, 12, 15, 18, 20, 24$  e  $30$  nm. As linhas são guias aos olhos e as escalas em todos os gráficos encontram-se normalizadas aos máximos valores de magnetização experimentalmente obtidos.

Adicionalmente, usando-se ainda as Figs.(4.8) e (4.9), nota-se que a contribuição relativa a camada de Co para o laço  $M(H)$  encontra-se centrado próximo a campos nulos, mas a contribuição magnética atribuída à camada NiFe encontra-se deslocada para campos positivos devido ao efeito de *Exchange Spring* (ES). Esta observação sugere que a magnetização da camada de NiFe é reorientada pela ação da camada de Co através da interação mediada pela camada (estrutura de *spins*) do IrMn (Para a Série-B, os ângulos de acoplamento  $\Delta\Psi$  entre as magnetizações do Co e NiFe é de aproximadamente  $180^\circ$ ). Deve-se mencionar que em alguns sistemas [177,178], os *spins* não-compensados em diferentes interfaces FM/AFM são independentes uns dos outros. No entanto, nas condições aplicadas a este estudo, o efeito global produzido por estes *spins* não-compensados parece estar acoplado.

Além disso, observa-se para ambas as Séries, que ainda antes do Protocolo 2, existe um acoplamento de troca entre as camadas NiFe e Co, sugerido pelos laços de histerese extraídos das amostras no estado como depositadas (vide Figs.4.8 e 4.9). Mesmo considerando a reorientação devido ao efeito de EB, o termo relacionado com o acoplamento entre as camadas (ES) irá regular a reorientação do eixo fácil do NiFe efetivo como discutir-se-á mais adiante. Assim, uma vez que as camadas estejam acopladas a anisotropia efetiva da multicamada será principalmente devido à anisotropia magnética efetiva da camada de Co ( $K_{eff}^{Co}$ ). Conforme reportado na literatura [177], a direção da  $K_{eff}^{Co}$  pode ser, de fato, um pouco inclinada para a direção da  $K_U^{Co}$  devido aos termos não-colineares que vêm da interação FM/AFM. Então, considerou-se que, quando o campo de medida é aplicado ao longo do  $K_{eff}^{Co}$ , o laço de histerese irá gerar baixa distorção da forma quadrada.

#### 4.2.4 Dependência do $H_{EB}$ e $H_C$ com a espessura $t_{IrMn}$

Antes da interpretação dos dados, introduziram-se algumas definições básicas e nomenclaturas para a descrição do fenômeno de *Exchange Bias* e as propriedades do deslocamento do laço. Por convenção, definem-se o deslocamento do laço  $H_{EB}$  e a coercividade  $H_C$  por:  $H_{EB} = \frac{(H_{C1} + H_{C2})}{2}$  e  $H_C = \frac{(H_{C2} - H_{C1})}{2}$ , onde  $H_{C1}$  e  $H_{C2}$  são campos onde são nulas

as magnetizações referentes a cada contribuição das camadas de NiFe e Co (vide também Fig.2.5).

Obtiveram-se as quantidades  $H_{EB}$  e  $H_C$  considerando os efeitos do deslocamento dos laços  $M(H)$  das camadas de NiFe e Co para as Séries A e B usando o Protocolo 2 e com o campo aplicado no eixo de fácil da camada de Co.

Apresentam-se na Fig.(4.10) os valores de  $H_{EB}$  e  $H_C$  para ambas as camadas FM's; os círculos cheios referem-se à camada de Co e os círculos vazados à camada de NiFe com as suas respectivas incertezas ( $\pm 3$  Oe para ambos os campos). As linhas sólidas servem de guias para os olhos. No lado esquerdo desta figura, mostra-se o comportamento do campo  $H_{EB}$  em função da espessura  $t_{IrMn}$ , na parte superior, os dados de  $H_{EB}$  para a Série-A, e na parte inferior os dados da Série-B. Do lado direito da Fig.(4.10), apresentam-se os valores do campo  $H_C$  para a Série-A parte superior e, na parte inferior os valores de  $H_C$  para a Série-B.

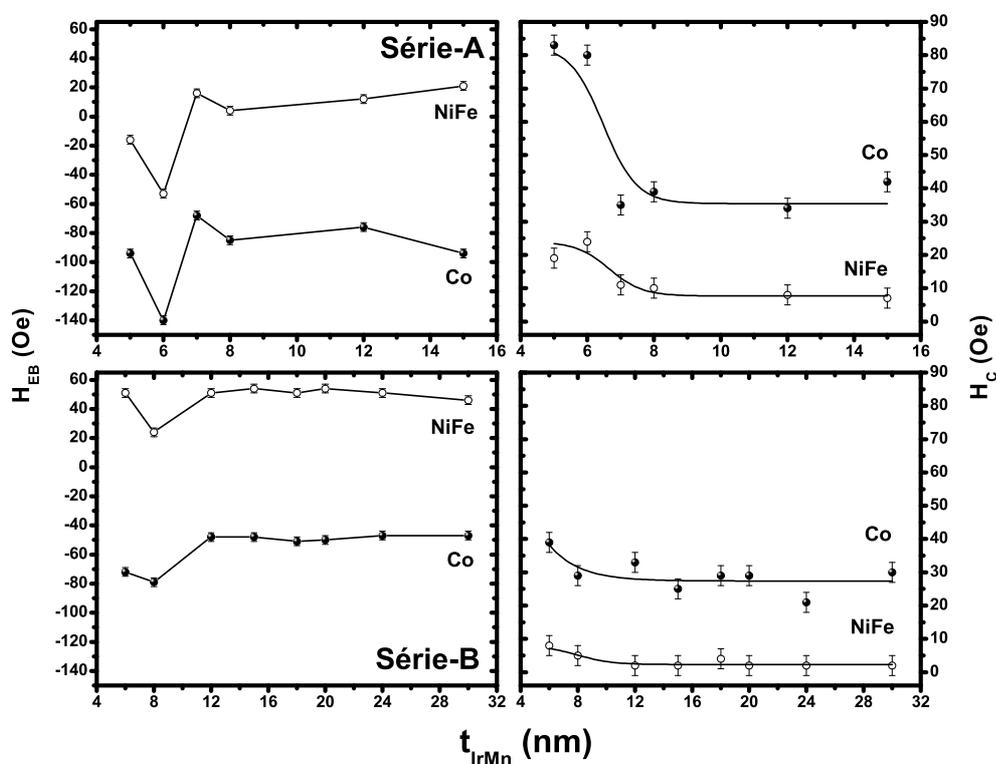


Figura 4.10: Comportamentos dos campos  $H_{EB}$  e  $H_C$  em função da espessura do espaçador ativo  $t_{IrMn}$ , obtidos das curvas  $M(H)$  com campo magnético aplicado paralelo ao plano do filme para as Séries-A e B. Os símbolos ( $\bullet$ ) referem-se aos valores obtidos da contribuição da camada de Co e ( $\circ$ ) correspondem aos valores relativos a contribuição da camada de NiFe. As linhas sólidas servem de guias para os olhos.

Nos dados da Série-A, os campos  $H_{EB}^{NiFe}$  (campo *Exchange Bias* induzido na interface NiFe/IrMn) sugerem uma tendência de aumento (valores mais positivos), enquanto que os campos  $H_{EB}^{Co}$  (campo *Exchange Bias* induzido na interface IrMn/Co) tendem a ficar mais negativos à medida que a espessura  $t_{IrMn}$  aumenta. Opostamente, para as amostras na Série-B, os campos  $H_{EB}^{Co}$  permanecem praticamente constantes, enquanto que os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  lentamente diminuem (excetuando os valores  $t_{IrMn}$  no intervalo de 6 a 8 nm, que discutir-se-á separadamente).

Como se demonstrará na próxima Seção, com dados de FMR, a camada de NiFe apresenta uma constante de anisotropia magnética efetiva ( $K_{eff}^{NiFe}$ ) menor em comparação com a camada de Co ( $K_{eff}^{Co}$ ). Logo, assume-se que os momentos magnéticos do NiFe podem ser rodados pela ação do acoplamento entre as camadas magnéticas através da camada mediadora de IrMn. Consequentemente,  $H_{EB}^{NiFe}$  positivo, que faz deslocar o laço magnético do NiFe ao longo do eixo positivo do campo magnético, tem basicamente duas contribuições principais que são:

- *Exchange Bias* - EB;
- *Exchange Spring* - ES.

Pode-se ainda descrever o acoplamento do tipo ES usando o modelo de Slonczewski para interfaces rugosas [69,179]. Por outro lado, ressalta-se também que os modelos denominados de casca de laranja (*orange-peel*) [72] e de interação tipo RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida) [79] também contribuem para as propriedades magnéticas observadas, mas, sabe-se da literatura que estes modelos apresentam maiores contribuições quando a espessura é baixa ( $< 5$  nm). Consequentemente, as contribuições desses modelos não determinam as propriedades magnéticas observadas nas amostras deste trabalho, pois na sua maioria, a espessura do AFM é maior do que 5 nm. Enquanto, para a camada de Co somente o efeito de EB determina o deslocamento negativo  $H_{EB}$  para as tricamadas (*spins* do Co determinam a direção dos *spins* do IrMn).

Para uma discussão mais aprofundada e didática dos dados da Fig.(4.10), assumi-se as seguintes relações matemáticas baseadas na discussão acima:

$$H_{EB}^{NiFe} = H_{EB}^{NiFe/IrMn} + H_{ES}, \quad (4.3)$$

$$H_{EB}^{Co} = H_{EB}^{IrMn/Co}. \quad (4.4)$$

onde  $H_{EB}^{NiFe/IrMn}$  e  $H_{EB}^{IrMn/Co}$  são os campos de EB nas interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co, respectivamente e,  $H_{ES}$  é o campo *Exchange Spring* (ES). Consideram-se primeiramente que: (i) em ambas as interfaces,  $H_{EB}^{NiFe/IrMn}$  e  $H_{EB}^{IrMn/Co}$  são geralmente negativos nas bicamadas NiFe/IrMn e Co/IrMn para baixos campos aplicados durante o resfriamento [33,34] e, (ii) que  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  comportam-se similarmente para ambas as Séries (A e B). Então, o forte campo  $H_{ES}$  obriga o  $H_{EB}^{NiFe}$  a seguir o comportamento de  $H_{EB}^{Co}$ . Por exemplo, este resultado é diferente do encontrado no sistema Si(111)/Cu(10 nm)/NiFe( $t$ )/IrMn(10 nm)/Co(3 nm)/Ru(3 nm) para  $t < 7$  nm depositado sob campo magnético [180]. Os autores mostraram que os laços das camadas de Co e NiFe têm valores negativos de  $H_{EB}^{Co}$  e  $H_{EB}^{NiFe}$  e assumiu-se que  $H_{EB}^{Co}$  segue  $H_{EB}^{NiFe}$ . Portanto, a diferença observada nesta tese relativamente aos dados do sistema Cu/NiFe( $t$ )/IrMn(10 nm)/Co(3 nm), atribui-se aos seguintes fatos:(a) substratos diferentes podem induzir diferentes anisotropias no AFM, (b)  $t_{NiFe}$  foi variado e não  $t_{IrMn}$  e (c) o depósito das camadas sob um campo magnético externo pode imprimir configurações de *spins* nas interfaces diferentes daquelas estabelecidas quando se faz um FC posterior, provocando os diferentes comportamentos magnéticos.

Além disso, observa-se que para ambas as Séries, A e B, deste trabalho há um mínimo local (valor mais negativo de  $H_{EB}^{Co}$  para as amostras amostras  $t_{IrMn}^{Cu} = 6$  nm e  $t_{IrMn}^{Ta} = 8$  nm) no comportamento de  $H_{EB}$  (Fig.4.10). De acordo com os dados de difração de Raios-X, estabiliza-se a estrutura  $L1_2$  IrMn<sub>3</sub> [35] sem tensão para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 8$  nm e, nesta condição, a camada IrMn deverá ter o valor mais elevado de  $K_{AFM}$  [35]. Por conseguinte, espera-se o maior efeito de EB, conforme experimentalmente observado com o valor mais negativo  $H_{EB}^{Co}$ . Mesmo não sendo possível determinar o valor do

parâmetro de rede da camada IrMn na amostra da Série-A com  $t_{IrMn} = 6$  nm, devido a observação também do mínimo no comportamento da  $H_{EB}^{Co}(t_{IrMn})$ , infere-se que a fase IrMn estabiliza-se também sem tensão interna e com máximo valor da constante de anisotropia do AFM ( $K_{AFM}$ ). Portanto, os demais filmes apresentam-se com a camada AFM sob tensão de compressão ( $t_{IrMn} < 8$  (6) nm) ou de tração ( $t_{IrMn} > 8$  (6) nm).

Ainda da Fig.(4.10), observa-se que os valores de  $H_C$  decrescem com a espessura  $t_{IrMn}$  em ambas as Séries, confirmando a previsão da literatura que  $H_C$  é inversamente proporcional ao aumento da espessura do AFM. Explica-se esta observação assumindo-se que ocorre uma redução do acoplamento magnético entre as camadas de NiFe e Co com o aumento do  $t_{IrMn}$ ; assim o momento líquido das camadas pode ser mais facilmente rodado pela aplicação de um campo. Especificamente, enfatiza-se que os valores dos campos  $H_{EB}^{Co}$  e  $H_C$  nas amostras da Série-A são maiores que os encontrados para a Série-B; um resultado que aparentemente está em desacordo com os resultados obtidos na literatura para um sistema similar Ta/NiFe/IrMn/CoFe/Ta [35]. A origem física para este aparente desacordo ainda precisa ser investigada.

Em resumo, para estudar o acoplamento ES, obteve-se o efeito EB para um campo de prova de +10 Oe porque possibilita, no caso de ângulos de acoplamento maiores, a definição de configurações antiparalelas das magnetizações entre as camadas FM's, como reportado na literatura para o sistema de NiFe/FeMn/Co [30]. Para o acoplamento paralelo, esse valor de campo também é forte o suficiente para definir o efeito de EB nas interfaces. Menciona-se ainda que aplicou-se o Protocolo 2 depois de registrar os laços  $M(H)$  usando o Protocolo 1 (varredura de campo  $\pm 500$  Oe). De fato, o efeito de EB é induzido na interface do Co por sua remanência (valor suficiente para deslocar o laço relativo ao Co para valores de campos negativos durante o Protocolo 2). Por um lado, em relação à camada de NiFe, quando aplica-se o Protocolo 2 com  $H_{FC} = +10$  Oe ou -10 Oe (Fig.4.5-b), observam-se pequenas diferenças nos valores de  $H_{EB}$  na região relativa à camada de NiFe, mostrando que 10 Oe é o suficientemente forte para estabelecer o EB na interface de NiFe. Por outro lado, sob essas condições (FC, +10 Oe ou -10 Oe), o campo  $H_{EB}$  da interface de Co permanece inalterado. Deve-se enfatizar que os laços são mais

ou menos semelhantes em suas formas se for considerado um campo de resfriamento de 500 Oe ou 10 Oe. O efeito de ES, no ângulo de acoplamento ( $\Delta\Psi$ ), é mais forte do que o induzido pelo EB e possíveis reorientações na interface NiFe/IrMn. Caso contrário, os laços  $M(H)$  das Figs.(4.8) e (4.9) seriam completamente deslocados para campos negativos no caso do Protocolo 2 com  $H_{FC} = 500$  Oe. Considera-se então que o campo de 500 Oe satura as magnetizações do Co e NiFe e uma reorientação da magnetização de NiFe de  $180^\circ$ , devido a uma anisotropia não-colinear, que não está prevista [176].

Além disso, observa-se que os campos  $H_{EB}^{Co}$  são sempre negativos e os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  para as amostras da Série-A começam em valores negativos mudando para positivos, sob a ação do  $H_{ES}$  quando aumenta-se a espessura  $t_{IrMn}$ . Por outro lado,  $H_{EB}^{NiFe}$  é sempre positivo para as amostras da Série-B e,  $H_{EB}^{Co}$  apresenta o mesmo comportamento da Série-A. Estes resultados descrevem comportamentos diferentes do ES para ambas as Séries.

Dos resultados das análises das curvas de  $M(H)$  dos filmes deste trabalho, conclui-se que há uma transição de acoplamento FM para AFM entre as camadas ferromagnéticas de NiFe e Co quando  $t_{IrMn}$  é incrementado na Série-A, enquanto, nas amostras da Série-B mantém-se o acoplamento AFM ou próximo de disso para espessuras  $t_{IrMn}$  maiores. Porém, o ângulo exato entre as magnetizações das camadas de NiFe e Co não é facilmente determinadá por ajustes dos laços  $M(H)$ , onde vários fatores contribuem para a energia magnética total do sistema (a energia para formar a parede de domínio no interior do AFM, a energia de troca em cada interface, as energias magneto-cristalinas das camadas, a energia Zeeman, os efeitos de reorientação devido a anisotropias não-colineares, entre outras). Portanto, buscou-se uma técnica para investigar de forma independente os comportamentos magnéticos das camadas de Co e NiFe. A técnica FMR serve para este propósito e apresentam-se os resultados na próxima seção.

### 4.3 Medidas de Ressonância Ferromagnética

Realizaram-se medidas de Ressonância Ferromagnética (FMR) nas tricamadas NiFe/IrMn/Co, usando o espectrômetro da marca Bruker ESP-300C na banda X ( $\omega=9,79$  GHz, maiores detalhes na Sec.3.4.2). Devido à presença de um goniômetro no centro da cavidade ressonante, realizaram-se varreduras angulares de  $0^\circ$  até  $360^\circ$ . Assim, obtiveram-se espectros à temperatura ambiente nas seguintes configurações: (i) varredura angular no plano da amostra (campo magnético estático ( $H_0^{//}$ ) aplicado paralelo ao plano da amostra) e, (ii) varredura angular fora do plano da amostra (campo magnético estático ( $H_0^\perp$ ) aplicado perpendicular ao plano da amostra).

Utilizou-se o programa WINEPR para o tratamento dos dados experimentais de FMR. Para se obter as informações contidas nestes espectros, usaram-se as condições de equilíbrio e de ressonância descritas na Sec.(3.4.2). Um dos parâmetros mais importantes a ser determinado nesta análise, é o campo de ressonância  $H_{res}$ , que corresponde ao máximo da curva de absorção. Outro parâmetro característico, é a largura de linha  $\Delta H$  do espectro de absorção, que corresponde à distância entre os picos máximo e mínimo na derivada da curva de absorção. A largura de linha de absorção nos espectros de FMR é determinada por processos de relaxação, os quais, por sua vez, estão relacionados à inhomogeneidade, defeitos, difusão nas interfaces, e ainda ao acoplamento entre as camadas magnéticas. Então, determina-se a homogeneidade magnética dos filmes pelo comportamento da largura de linha em função do ângulo de varredura [181].

Em experimentos de FMR obtidos em multicamadas magnéticas devido ao acoplamento entre as magnetizações dos dois filmes, modos de ressonância acústico e/ou óptico podem surgir. Ambos surgem de acoplamentos entre camadas ferromagnéticas. Quando o acoplamento é FM (AFM), o campo de absorção do modo acústico ou uniforme é maior (menor) que do modo óptico [128]. De fato, a diferença entre os campos de ressonância pode ser tomada como uma medida indireta do acoplamento de troca entre camadas [128]. Porém, quando a camada espaçadora é um material AFM, ao invés de um metal não magnético, uma anisotropia de troca (EB) pode surgir da interação entre as camadas FM e AFM, e com isto, por exemplo, o campo de *Exchange Bias* ( $H_{EB}$ ) pode

ser experimentalmente obtido com medidas de FMR. Enfatiza-se que estes parâmetros são obtidos com medidas de varredura angular no plano do filme.

### Obtenção do $H_{EB}$ por FMR

Devido à presença da anisotropia unidirecional nas amostras observadas com medidas de magnetização por VSM, outra técnica que permite estimar os valores de *Exchange Bias*  $H_{EB}$  é a técnica de FMR. Inicialmente, obtém-se a curva da dependência do campo de ressonância  $H_{res}$  em função do ângulo  $\Psi_H$  (ângulo de varredura de  $0^\circ$  a  $360^\circ$ ), extraída de medidas de varredura angular no plano do filme. Define-se  $\Psi_H$  como sendo o ângulo azimutal que determina a orientação do campo magnético externo aplicado no plano do filme. Para estimar os valores do campo  $H_{res}$ , seguem-se as seguintes considerações: (i) quando o campo  $H_0$  é aplicado ao longo da direção do campo de  $H_{EB}$ , tem-se que o campo de ressonância efetivo da camada é  $H_{res}(0) + H_{EB}$  e, (ii) quando  $H_0$  é aplicado em direção oposta ao  $H_{EB}$ , escreve-se o campo de ressonância efetivo da camada como  $H_{res}(\pi) - H_{EB}$ . A diferença destas duas condições fornece o valor do campo de  $H_{EB}$ ,  $[H_{res}^{eff}(0) - H_{res}^{eff}(\pi)] = 2H_{EB}$  [182]. Nesta condição, a curva da dependência angular tem uma forma de sino, oriunda de sistemas com efeito de EB. A existência desta anisotropia unidirecional faz com que o período da varredura seja de  $360^\circ$ , ao contrário de filmes magnéticos sem EB, onde, geralmente, existe uma anisotropia uniaxial, de forma que o período da varredura é de  $180^\circ$ .

### Obtenção da constante de anisotropia efetiva - $K_{eff}$ (fora do plano)

A constante de anisotropia efetiva  $K_{eff}$  não se consegue obter diretamente com medidas de FMR, pois depende do valor da magnetização de saturação de cada amostra. Entretanto, realizou-se um cálculo estimado do valor de  $K_{eff}$  a partir do valor tabelado da magnetização de saturação de uma amostra volumosa. Para a camada de NiFe, usou-se  $M_S = 780 \text{ emu/cm}^3$  e para a camada de Co,  $M_S = 1538 \text{ emu/cm}^3$  [15]. Por outro lado, precisam-se dos valores do  $H_{res}$  nas configurações: (i) campo magnético estático paralelo ao filme  $H_{//}$  e, (ii) campo magnético perpendicular ao filme  $H_{\perp}$ . Sabendo-se os valores dos campos ressonantes e as magnetizações de saturação das camadas, estima-se os va-

lores das constantes  $K_{eff}$  de cada camada usando a Eq.(3.14) (descrita na Sec.(3.4.2)), para ambas as Séries de amostras.

### 4.3.1 Espectros de FMR - Variação angular no plano do filme paralelo ao campo magnético

Inicia-se a discussão apresentando as medidas de FMR na configuração planar (campo magnético paralelo ao plano do filme). Para esta configuração, as amostras são colocadas num suporte de quartzo utilizado como porta-amostra, fixadas, e posteriormente, inseridas no centro da cavidade ressonante de micro-ondas (cavidade retangular utilizada na banda X). Um goniômetro externo, fixado na cavidade ressonante, permite girar a amostra em ângulos ( $\Psi_H$ ) no plano da amostra. Como o campo magnético estático está no plano do filme,  $\Psi_H$  determina a direção do campo magnético  $H$ . Entretanto, o importante é saber com exatidão a defasagem angular  $\Delta\Psi$  entre os eixos fáceis efetivos do NiFe e Co, objetivando-se determinar o ângulo de acoplamento entre as camadas NiFe e Co mediada pela camada AFM IrMn.

#### Série-A

Realizaram-se medidas de FMR para a Série-A ( $t_{IrMn} = 3, 5, 6, 7, 8, 12$  e  $15$  nm) em  $0^\circ \leq \Psi_H \leq 360^\circ$  com passos angulares de  $10^\circ$ . Na Fig.(4.11), apresentam-se espectros típicos de FMR, medidos à temperatura ambiente, para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm a diferentes ângulos de varredura.

Observa-se da Fig.(4.11) a presença de dois modos de ressonância uniformes bem definidos, tornando possível a identificação de seus parâmetros de forma independente. Estes modos uniformes referem-se às duas fases magnéticas presente na amostra. Realizou-se a identificação da camada responsável para cada pico no espectro através da comparação das intensidades dos picos ressonantes de FMR. Assim, a camada de NiFe, que tem espessura  $t_{NiFe} = 20$  nm, apresenta uma área maior, e portanto, é associada à ressonância de maior intensidade, enquanto o modo ressonante devido à camada de Co com

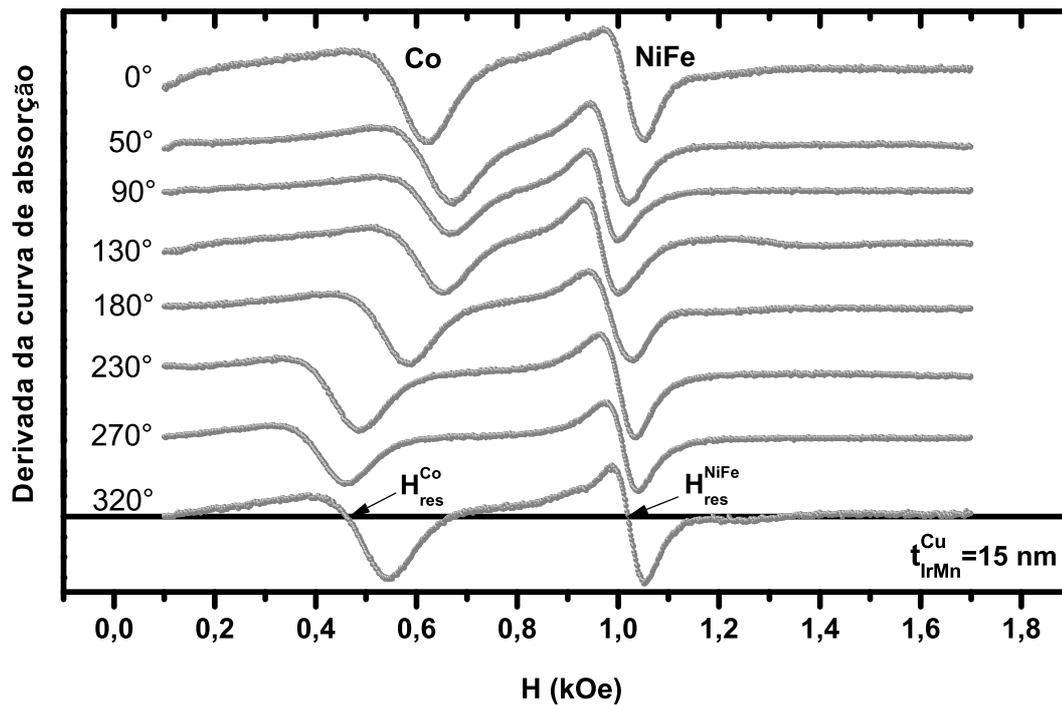


Figura 4.11: Espectros de FMR tomados à temperatura ambiente para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm em diferentes ângulos entre o campo magnético estático aplicado paralelo ao plano do filme.

espessura  $t_{Co} = 10$  nm, exibe uma baixa amplitude de absorção, se comparada ao modo da camada de NiFe. Os campos de ressonância de cada modo  $H_{res}^{Co}$  e  $H_{res}^{NiFe}$  definem-se da interceptação do eixo da derivada de absorção como se mostra na figura, para o espectro de FMR em  $\Psi_H = 320^\circ$ . Visualizam-se mudanças significativas no valor do  $H_{res}$  correspondentes aos modos do Co e do NiFe com o ângulo azimutal  $\Psi_H$ .

Conforme se discutiu acima, uma vez obtido os valores do campo  $H_{res}$  para cada ângulo  $\Psi_H$ , monta-se uma curva do  $H_{res}$  em função deste ângulo de varredura para cada amostra. Nas Figs.(4.12) e (4.13), visualizam-se as dependências angulares planares do  $H_{res}$  para as tricamadas  $t_{IrMn}^{Cu} = 7$  nm e  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm, respectivamente. Observam-se delas dois conjuntos de dados, correspondentes a cada modo de ressonância que aparece no espectro de FMR: círculos pretos representam os dados para o modo do Co e círculos cinza, os dados para o modo de NiFe. Observa-se que as oscilações características das varreduras dos modos encontram-se desfasadas, de forma que é possível determinar o ângulo de acoplamento entre as magnetizações das camadas FM's. Define-se o ângulo de acoplamento  $\Delta\Psi$  como a distância entre os dois máximos (ou mínimos) das curvas do  $H_{res}$  de ambos os modos. Por exemplo, para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 7$  (Fig.4.12), o  $\Delta\Psi = (9\pm 1)\times 10^\circ$ .

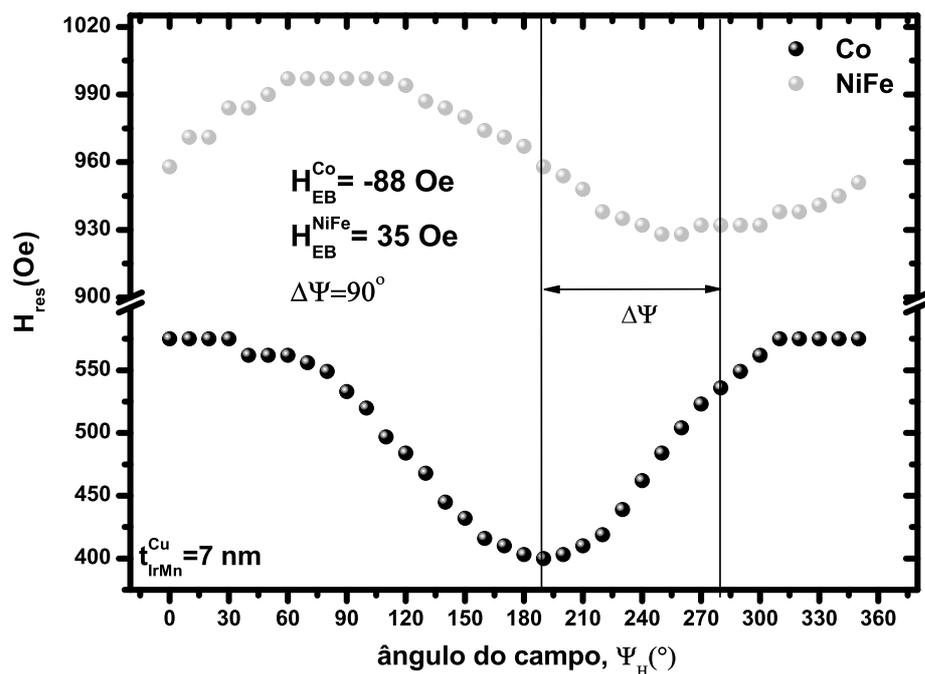


Figura 4.12: Varredura angular planar dos modos de ressonância do Co (círculos pretos) e NiFe (círculos cinza), obtida dos espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 7$  nm, tomados à temperatura ambiente.

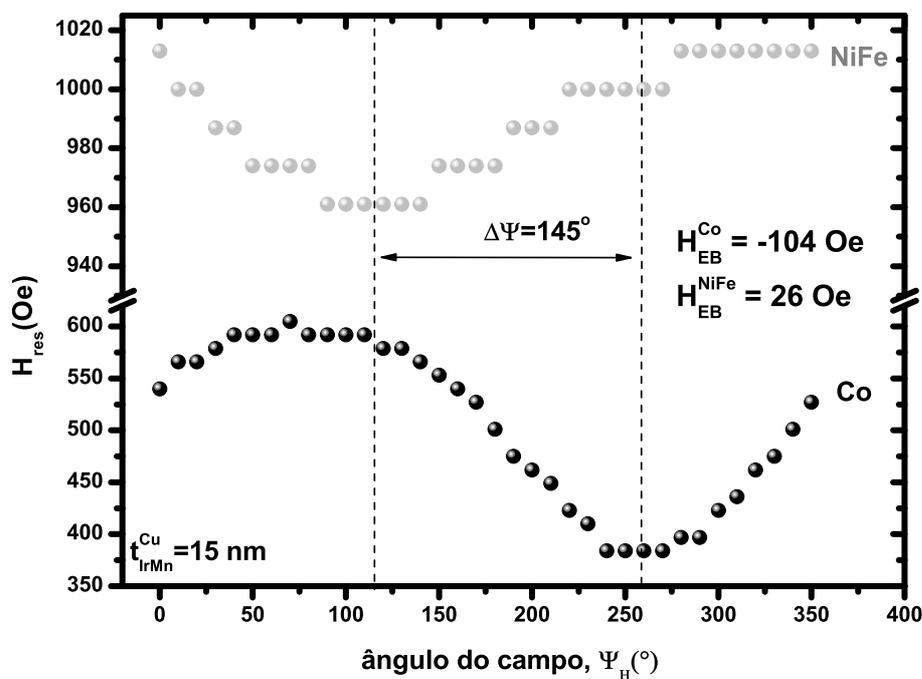


Figura 4.13: Comportamento do  $H_{res}(\Psi_H)$  dos modos de ressonância de NiFe (círculos cinza) e Co (círculos pretos), para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Apresentam-se também os valores dos campos  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$ .

Pode-se também estimar destas curvas, os valores dos campos  $H_{EB}$  para ambas as camadas, utilizando-se as relações descritas ao início desta Sec.(4.3). Tem-se, por exemplo da Fig.(4.13) para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm, que os campos  $H_{EB}^{Co} = -104$  Oe para o modo de Co e, para o modo de NiFe  $H_{EB}^{NiFe} = 26$  Oe, os quais estão de acordo com os resultados obtidos pelas medidas de magnetização, para os campos -94 Oe e 21 Oe, respectivamente (Sec.4.2). Finalmente, com os espectros de FMR e as dependências angulares do  $H_{res}$  para as outras amostras desta série, apresentaram características similares a estas amostras já descritas e encontram-se dispostas no Apêndice B.

Os ângulos de acoplamento das magnetizações obtidos para todas as amostras da Série-A, monta-se uma curva da dependência do ângulo de acoplamento  $\Delta\Psi$  em função da espessura  $t_{IrMn}$ , conforme ilustra-se na Fig.(4.14). Estes resultados sugerem que  $\Delta\Psi$  gradualmente aumenta com o incremento da espessura  $t_{IrMn}$ , assumindo valores próximos à condição antiparalela para amostras com  $t_{IrMn} \geq 12$  nm.

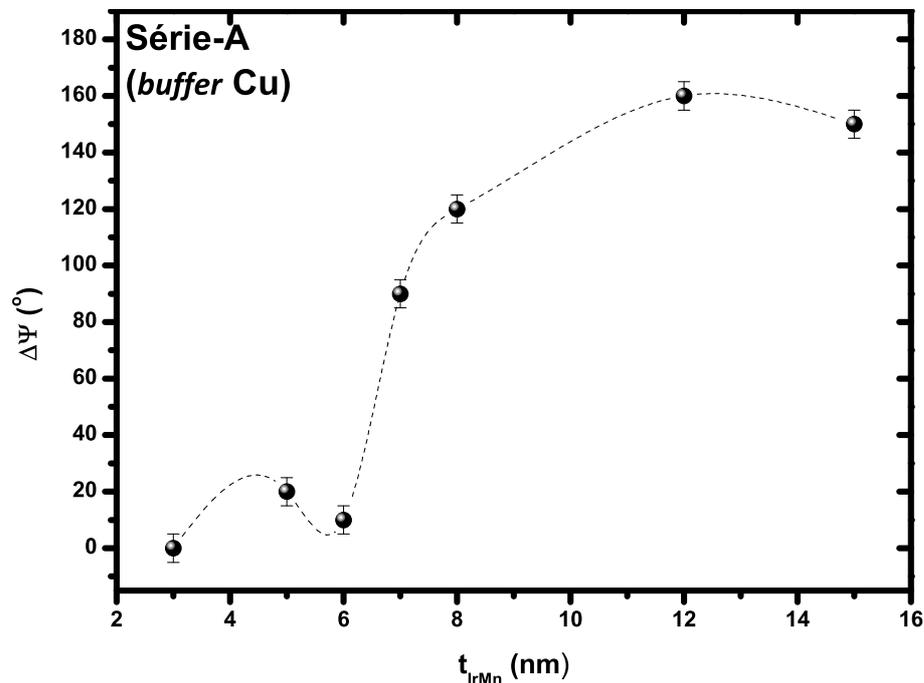


Figura 4.14: Ângulo de acoplamento entre as direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co como função de  $t_{IrMn}$  para a Série-A.

## Série-B

Similarmente, realizou-se a varredura angular no plano da amostra para as amostras da Série-B ( $t_{IrMn} = 4, 6, 8, 12, 15, 24$  e  $30$  nm). Além dos dois modos (Co e NiFe) descritos para a série anterior, observou-se nesta série, para algumas orientações do campo magnético em relação ao plano do filme, um modo não alinhado adicional. Por exemplo, para a tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm, observa-se na Fig.(4.15) dois modos de ressonância uniformes atribuídos às camadas de Co e NiFe com magnetizações efetivas distintas e um modo não-alinhado denotado na figura como *modo - s*.

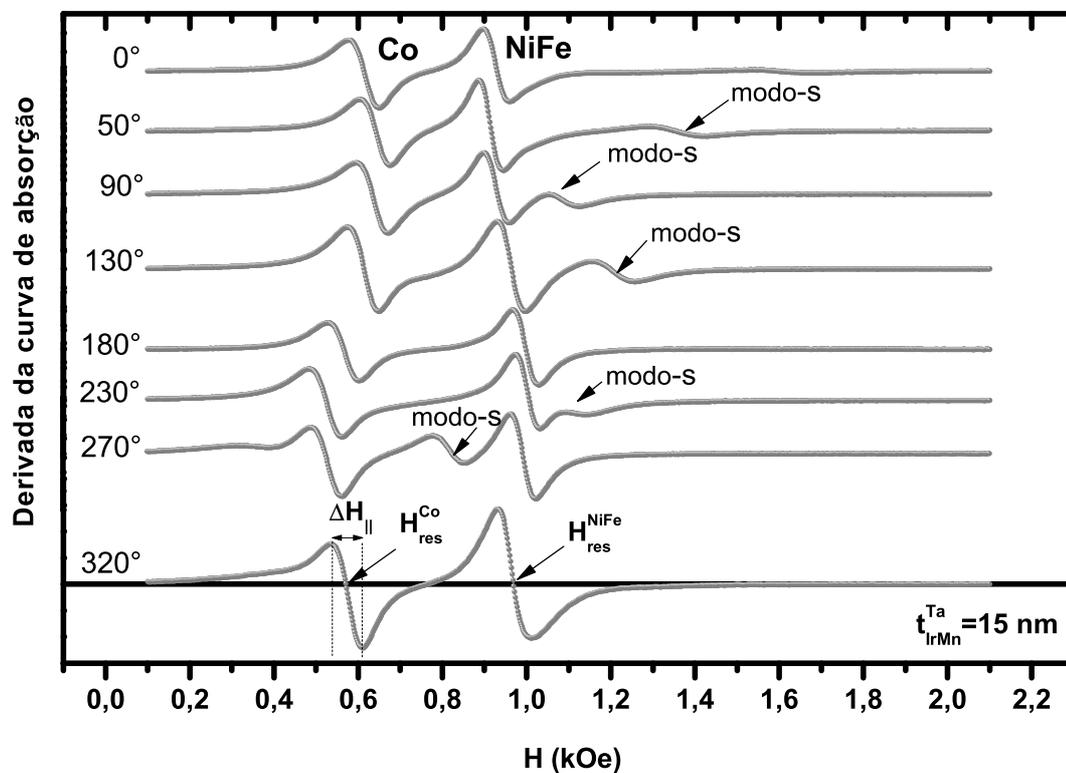


Figura 4.15: Espectros de FMR medidos à temperatura ambiente para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm para a configuração no plano do filme a diferentes ângulos. O *modo-s* refere-se ao modo não alinhado, que associa-se sua origem a formação de domínios na camada de NiFe.

Para algumas orientações do campo, não observa-se o modo não alinhado (*modo - s*) devido a superposição com o modo uniforme do NiFe. Esta superposição ocorre devido ao fato de os dois sinais estarem fora de fase, ou seja, deslocando-se em sentidos opostos. O surgimento do modo não-alinhado pode ser devido à formação de domínios provavelmente dentro da camada de NiFe. Sistemas com NiFe costumam apresentar este modo não alinhado quando se obtém os espectros de FMR em banda X. A possibilidade de realizar

medidas de FMR na banda Q poderia ajudar a esclarecer a presença deste modo não-alinhado, pois para que a condição de ressonância seja satisfeita na banda Q é necessário um campo estático maior em torno de 5000 Oe, o que faz com não seja favorável a formação de domínios dentro da camada de NiFe [180] (não realizaram-se estas medidas pois a cavidade estava com problemas).

Através destes resultados, para esta série de amostras, teceu-se a dependência angular planar do  $H_{res}$  dos modos de ressonância uniformes das camadas de NiFe e Co, como feito para a tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm, na Fig.(4.16). Observa-se, desta figura, que o  $H_{res}$  dos modos uniformes atribuídos às camadas de Co e NiFe deslocam-se em sentidos opostos durante toda a variação angular. Para esta amostra, obteve-se que o ângulo de acoplamento entre as magnetizações das camadas de NiFe e Co é  $\Delta\Psi = (16\pm 1)\times 10^\circ$ , e estimaram-se os campos de EB de cada modo como sendo  $H_{EB}^{NiFe} = 44$  Oe e,  $H_{EB}^{Co} = -65$  Oe. Para algumas amostras desta série, para a obtenção dos valores do campo EB e do ângulo de acoplamento, fez-se necessário ajustar as varreduras angulares da camada de NiFe devido à sobreposição das contribuições das anisotropias uniaxial e unidirecional. Porém, a contribuição da anisotropia unidirecional é superior aquela da anisotropia uniaxial. A dependência angular do *modo - s*, indica uma correspondência com uma fase sujeita a uma anisotropia uniaxial.

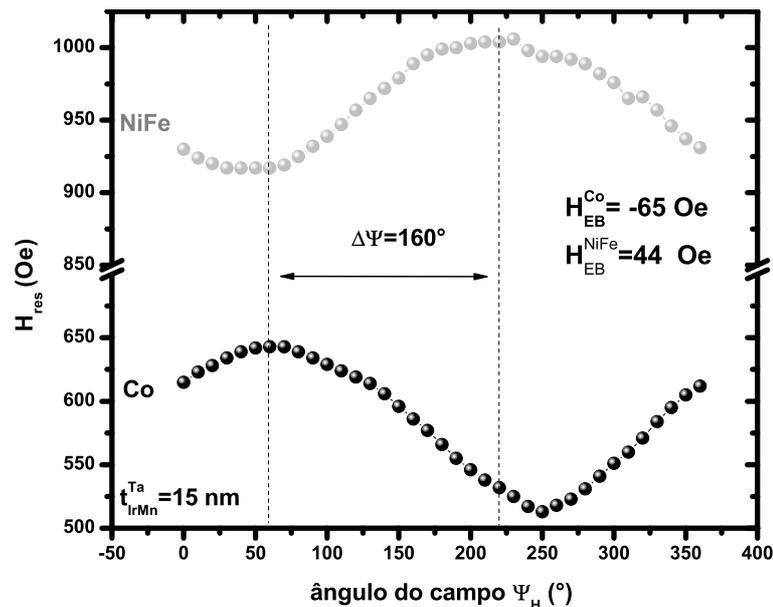


Figura 4.16: Dependência angular de  $H_{res}(\Psi_H)$  para a tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm. Define-se  $\Delta\Psi$  como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co é  $160^\circ$ . Apresentam-se também os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  estimados por FMR.

De maneira análoga, realizou-se a dependência angular do modo não-alinhado (*modo-s*) para esta amostra, como apresenta-se na Fig.(4.17). Os círculos vazados na figura referem-se aos dados obtidos e a linha tracejada guia para os olhos. Devido à superposição dos sinais de FMR, determinou-se somente o campo de ressonância para algumas posições. Enfatiza-se que este modo não-alinhado não esteve presente em todas as amostras da Série-B.

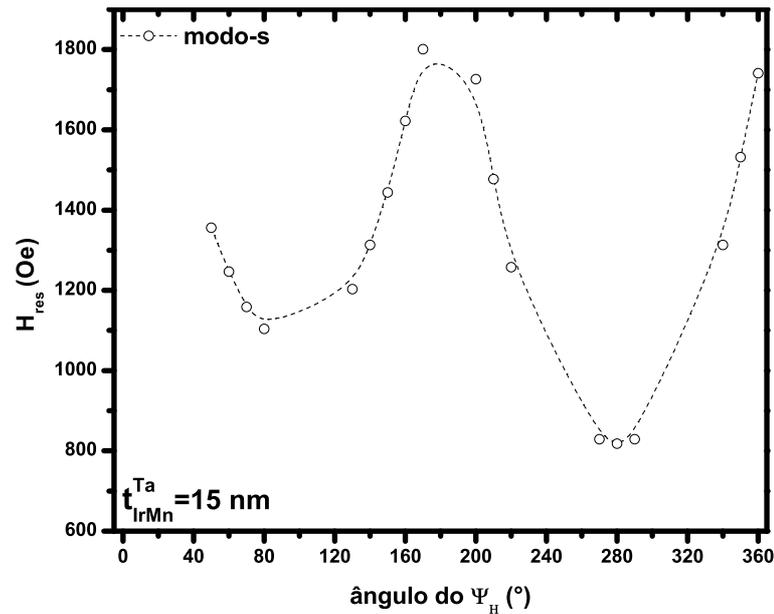


Figura 4.17: Dependência angular do campo de ressonância ( $H_{res}(\Psi_H)$ ) para o modo não-alinhado (*modo-s*) presente na tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm. A linha tracejada serve de guia para os olhos.

Os resultados de  $H_{res}(\Psi_H)$  obtidos das amostras da Série-B, montou-se a curva  $\Delta\Psi$ , que descreve o comportamento do ângulo de acoplamento das magnetizações das camadas FM's em relação à espessura do  $t_{IrMn}$ , conforme apresentam-se na Fig.(4.18). Opostamente ao que ocorre para a Série-A, os valores de  $\Delta\Psi$  para a Série-B diminuem lentamente de  $180^\circ$  a  $130^\circ$  com o aumento da espessura do  $t_{IrMn}$  de 6 nm - 30 nm. Do ponto de vista estrutural, estes comportamentos diferentes promovem-se pelos diferentes graus de textura cristalográfica [111] da tricamada NiFe/IrMn/Co nas Séries A e B.

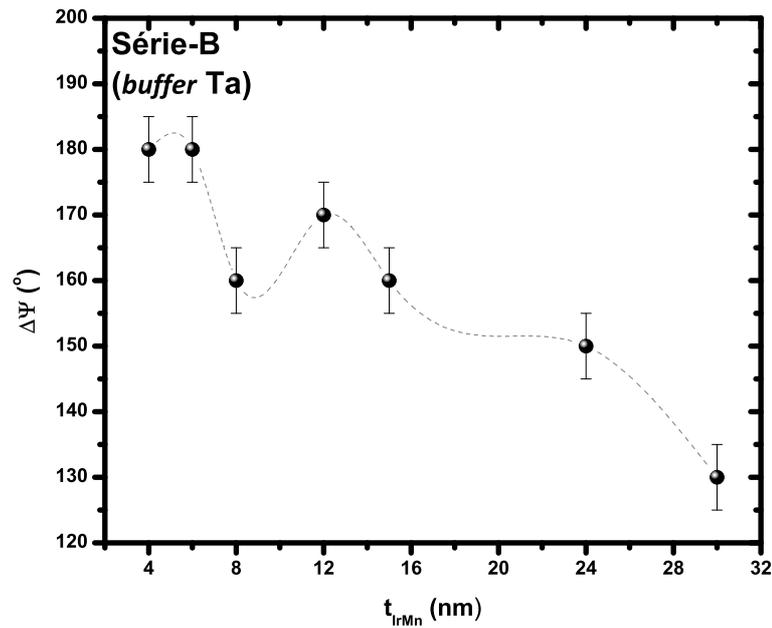


Figura 4.18: Ângulo de acoplamento magnético ( $\Delta\Psi$ ) entre as direções das magnetizações do NiFe e Co como uma função da espessura da camada de IrMn ( $t_{IrMn}$ ) para as amostras da Série-B. A linha tracejada serve de guia para os olhos.

### 4.3.2 Espectros de FMR - Variação angular fora do plano do filme

#### Série A

Continuando com o estudo das medidas de FMR, dispõem-se na Fig.(4.19) os espectros normalizados (ao valor máximo) da amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm, obtidos varrendo o campo magnético na configuração para fora do plano da amostra até atingir a posição perpendicular ( $H_{\perp}$ ) (os espectros de FMR para as outras amostras da Série-A, encontram-se no Apêndice B). Nesta figura, nota-se o deslocamento das duas fases magnéticas (indicadas por setas), que se apresentam em posições angulares diferentes ( $30^{\circ}$ ,  $20^{\circ}$ ,  $10^{\circ}$ ,  $6^{\circ}$  e  $4^{\circ}$ ) à medida que a direção do campo magnético aproxima-se da normal ao plano da amostra. O fato do modo do Co passar pelo modo de NiFe para medidas na configuração fora do plano e para ângulos de varredura ( $90^{\circ}-\alpha_H$ ), quando  $\alpha_H$  é incrementado, indica que a energia de acoplamento *Exchange Spring* entre as camadas FM's é menor que as energias de desmagnetização das camadas. O campo necessário para obter a ressonância na orientação perpendicular ao filme, para o modo associado a camada de Co ( $H_{res} = (19836 \pm 10)$ ) é maior do que o observado para a camada de NiFe ( $H_{res} = (12266 \pm$

10)). E quando o plano da amostra encontra-se orientado paralelo ao campo magnético ( $H_{//}$ ), o campo de ressonância do modo do Co [ $H_{res}^{Co} = (626 \pm 5)$  Oe] é menor que o modo do NiFe [ $H_{res}^{NiFe} = (992 \pm 5)$  Oe].

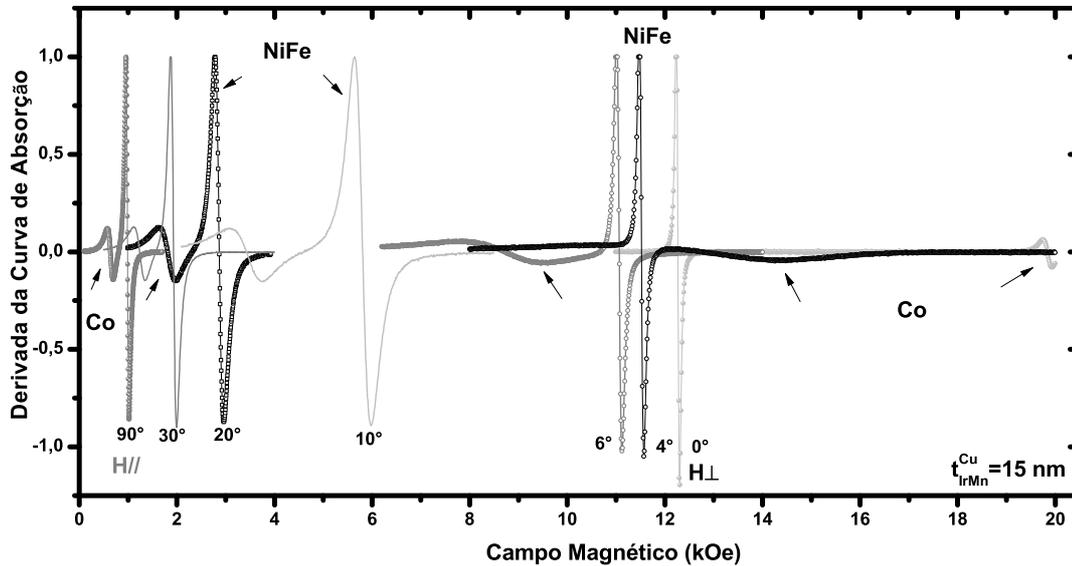


Figura 4.19: Espectros de FMR para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm obtidos à temperatura ambiente para vários ângulos na configuração varredura fora do plano (campo externo  $H_0$  em relação ao plano do filme)

Nas Figs.(4.20) e (4.21), apresentam-se os resultados das dependências angulares do  $H_{res}$  e da largura de linha  $\Delta H$  na configuração fora do plano, para ambos os modos uniformes (Co, NiFe) da amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Os círculos pretos e cinza correspondem aos campos de ressonância ( $H_{res}$ ) extraídos da derivada da curva de absorção para os modos de ressonância de Co e NiFe, respectivamente; enquanto, as linhas sólidas nesta figura servem de guia para os olhos. O comportamento do  $H_{res}$  mostra que à medida que o campo magnético aproxima-se da direção normal, os modos de ressonância deslocam-se juntos para campos maiores e, para ângulos próximos da normal se superpõem (havendo um valor do campo e ângulo de ressonância em comum). Em seguida, observa-se uma separação novamente dos modos que é maior na posição perpendicular ( $H_{res}^{Co} > H_{res}^{NiFe}$ ). Para o caso da dependência angular da  $\Delta H$ , observa-se algumas lacunas para esta figura em algumas posições angulares, devido ao fato da largura de linha do modo do Co aumentar muito, dificultando sua medida. Desta forma, apenas a grandeza  $\Delta H$  do modo de NiFe pôde ser identificado. Os formatos das curvas são muito similares aos encontrados usualmente, onde a largura máxima ocorre para o ângulo no qual ocorre a maior defasagem entre o campo magnético e a magnetização da camada [183]. O fato

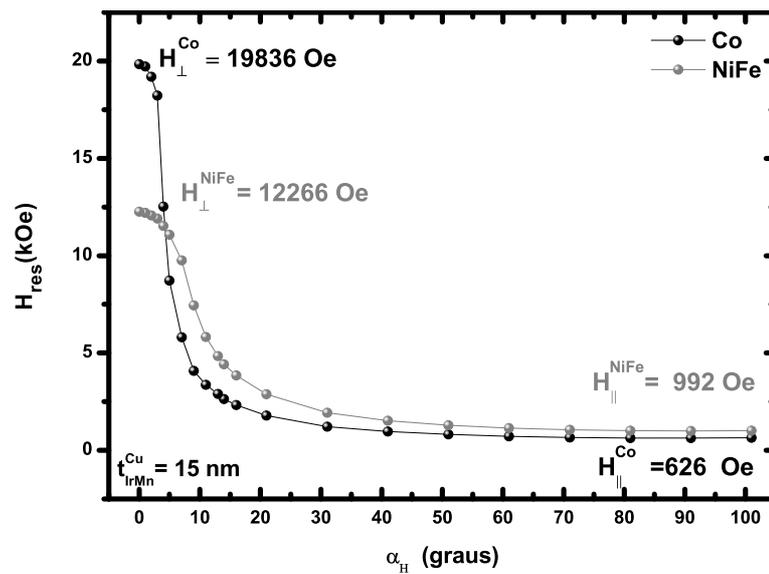


Figura 4.20: Dependência angular do campo de ressonância  $H_{res}$  dos modos de Co e NiFe na tricamada  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Os  $\bullet$  representam os dados experimentais e a linha um auxílio visual.

da  $\Delta H$  do modo do Co ser maior do que aquele do NiFe pode indicar que a camada de Co é menos homogênea que a do NiFe, por exemplo.

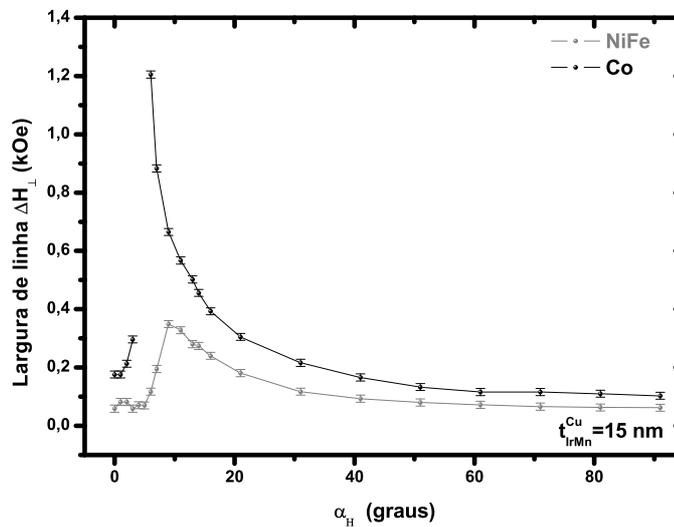


Figura 4.21: Dependência angular da largura de linha  $\Delta H$  dos modos de ressonância do Co e do NiFe na tricamada  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Os círculos pretos representam os dados experimentais da camada de Co e os círculos cinza da camada de NiFe. As linhas sólidas servem de guias para os olhos.

Estimam-se os valores das constantes de anisotropia efetiva das camadas de NiFe e Co, extraídos da análise da dependência angular do  $H_{res}$  fora do plano para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm, como  $-(3,55 \pm 0,09) \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup> e  $-(0,75 \pm 0,04) \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup>, respectivamente.

Esses valores negativos indicam que os momentos do NiFe e do Co encontram-se no plano do filme na ausência de campos magnéticos externos fortes os suficientes para saturá-los fora do plano. Além disso, a  $K_{eff}$  é mais forte na camada de Co, indicando que os *spins* estão mais presos no plano do filme de Co. Os valores calculados da constante de anisotropia magnética efetiva  $K_{eff}$  para as tricamadas da Série-A encontram-se na Tabela 4.4.

Tabela 4.4: Valores das constantes de anisotropias magnéticas efetivas ( $K_{eff}$ ) e campos de anisotropias efetivas ( $4\pi M_{eff}$ ) para algumas amostras da Série-A

Amostra	$K_{eff}^{NiFe}$	$K_{eff}^{Co}$
nm	$10^6$ erg/cm <sup>3</sup>	$10^7$ erg/cm <sup>3</sup>
$t_{IrMn}^{Cu} = 5$	-3,46	-1,23
$t_{IrMn}^{Cu} = 6$	-3,59	-1,28
$t_{IrMn}^{Cu} = 8$	-3,58	-1,29
$t_{IrMn}^{Cu} = 12$	-3,63	-1,22
$t_{IrMn}^{Cu} = 15$	-3,55	-0,75

## Série-B

Conforme discutiu-se para esta série de amostras, em medidas de FMR na configuração planar, há três modos para esta configuração, dois modos uniformes relacionados as fases magnéticas e um modo não-alinhado. De forma ilustrativa observa-se também na Fig.(4.22), espectro da amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm, para  $\alpha_H = 6^\circ$  em relação à normal ao plano do filme), um modo não-alinhado com campo de ressonância menor do que os dos modos uniformes. Esta relação é distinta à observada na configuração planar, na qual o modo não-alinhado (*modo - s*) apresenta valores de  $H_{res}$  maiores do que os dos modos uniformes para algumas posições angulares. Nota-se o deslocamento das duas fases magnéticas (indicadas por setas), ou seja, há uma mudança nas posições angulares ( $90^\circ$ ,  $26^\circ$ ,  $6^\circ$ ,  $3^\circ$  e  $0^\circ$ ) à medida que a direção do campo magnético aproxima-se da normal do plano da amostra, enquanto o *modo - s* observa-se na posição angular de  $6^\circ$ . Novamente, a observação de que o modo de ressonância do Co passar pelo modo de NiFe para a configuração fora do plano, em  $(90^\circ - \alpha_H)$  quando  $\alpha_H$  é incrementado, indica

que a energia de acoplamento *Exchange Spring* entre as camadas FM's é menor que as energias de desmagnetização das camadas.

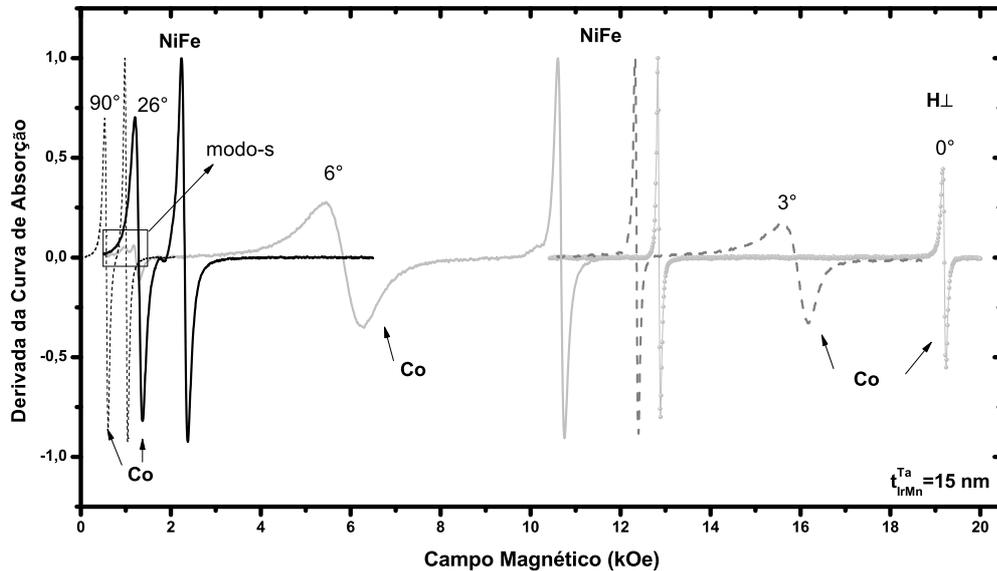


Figura 4.22: Espectros de FMR, tomadas à temperatura ambiente para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm para diferentes ângulos entre o campo magnético e o plano do filme. As setas indicam as posições  $90^\circ$ ,  $26^\circ$ ,  $6^\circ$ ,  $3^\circ$  e  $0^\circ$ .

Com a finalidade de acompanhar, com maior precisão, a evolução dos modos uniformes e não-alinhado, mostra-se na Fig.(4.23), para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 24$  nm, uma sequência de curvas com passo angular menor, na região próxima à orientação perpendicular. Observa-se que a forma dos espectros de absorção ressonante (para o caso dos modos uniformes) se torna extremamente sensível a pequenas variações angulares à medida que o  $H_0$  está próximo da configuração perpendicular ( $H_\perp$ ). Porém, para o modo não-alinhado esta característica não é observada. Vale ressaltar que há uma inversão (anti-ressonância) no modo do Co (observadas para os ângulos entre  $2^\circ$  a  $10^\circ$ , alguns espectros não se apresentam nesta figura) o qual é novamente revertido para  $\alpha_H = 1^\circ$  antes de chegar na orientação perpendicular. Além disso, observa-se na Fig.(4.23) a sobreposição dos modos do Co e do NiFe (em  $4^\circ$ , figura anexada). Após esta sobreposição, a intensidade do modo de Co é maior do que a de NiFe (em  $3^\circ$ ). Ressalta-se que a inversão observada no modo do Co aparece somente para espessuras  $t_{IrMn} > 20$  nm.

A dependência angular do  $H_{res}$  e a largura de linha para ambos os modos uniformes apresentam-se nas Figs.(4.24) e (4.25), respectivamente. Destes dados, estimam-se as

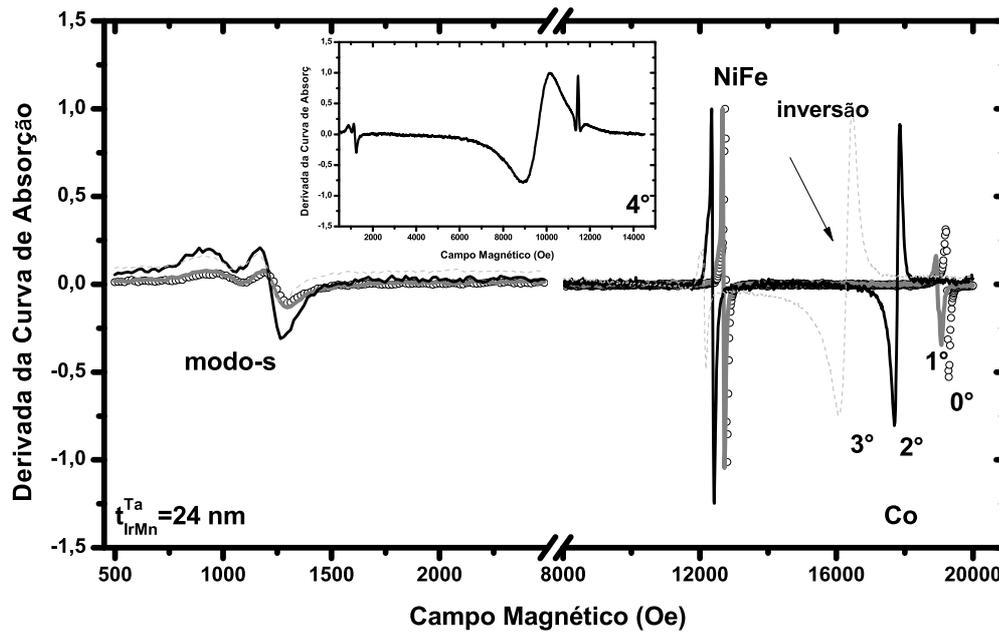


Figura 4.23: Espectros de FMR para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 24$  nm em pequenas variações angulares próximo da configuração em que  $H_0$  é perpendicular ao plano do filme.

constantes de anisotropia magnética efetiva das amostras da Série-B (vide Tabela 4.5). Observa-se comportamentos similares das dependências se comparado com os obtidos para a Série-A, exceto pelo fato de que o valor da largura de linha do Co é maior. Este efeito de aumento de  $\Delta H$  provavelmente indica que as camadas de Co encontram-se magneticamente menos homogêneas na Série-B que aquelas da Série-A.

Tabela 4.5: Valores das constantes de anisotropias magnéticas efetivas ( $K_{eff}$ ) e campos de anisotropias efetivas ( $4\pi M_{eff}$ ) para algumas amostras da Série-B.

Amostra	$K_{eff}^{NiFe}$	$K_{eff}^{Co}$
nm	$10^6$ erg/cm <sup>3</sup>	$10^7$ erg/cm <sup>3</sup>
$t_{IrMn}^{Ta} = 4$	-3,65	-1,15
$t_{IrMn}^{Ta} = 6$	-3,61	-1,13
$t_{IrMn}^{Ta} = 8$	-3,71	-1,22
$t_{IrMn}^{Ta} = 15$	-3,74	-1,24
$t_{IrMn}^{Ta} = 18$	-3,71	-1,26

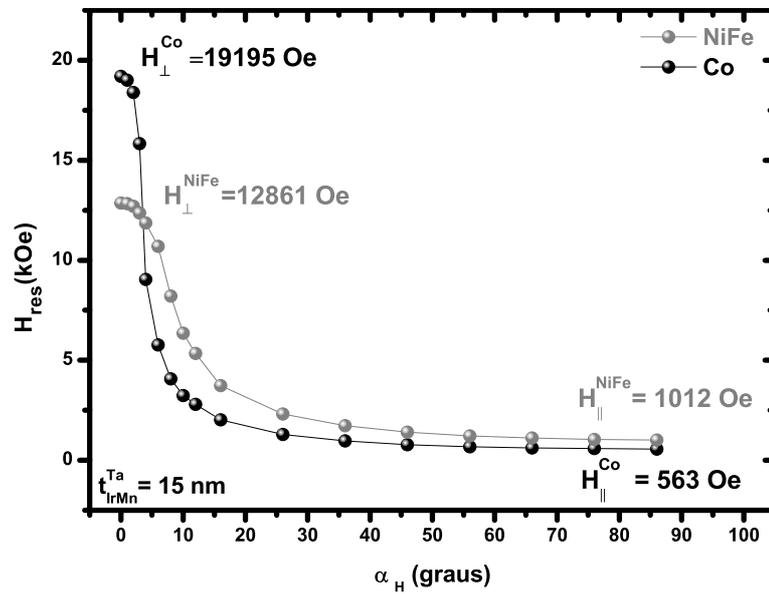


Figura 4.24: Dependência angular do  $H_{res}$  na configuração fora do plano para os modos uniformes do Co (círculos pretos) e do NiFe (círculos cinza) da tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm. As linhas sólidas servem de guias para os olhos.

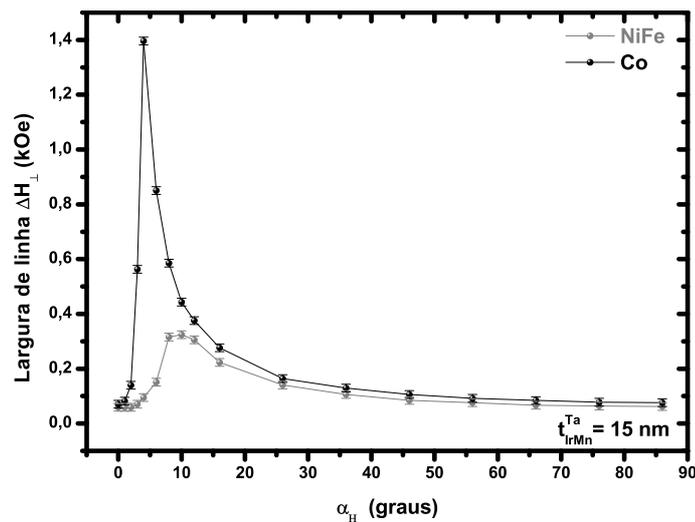


Figura 4.25: Dependência angular da largura de linha  $\Delta H$  para a tricamada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm na configuração fora do plano do filme. Os círculos pretos e cinza representam os dados experimentais dos modos uniformes e as linhas conectando os pontos experimentais servem de auxílio visual.

Conclusões preliminares desta seção.

- Do ponto de vista estrutural, as diferenças no comportamento do ângulo de acoplamento magnético entre as camadas de NiFe e Co, deve-se ao fato de que o grau de textura [111] fcc para a tricamada NiFe/IrMn/Co são diferentes quando se muda o *buffer*.
- Do ponto de vista micromagnético, tal comportamento conflitante, compreende-se pelos diferentes valores das constantes de anisotropia  $K_{AFM}$ ,  $K_{Co}$  e  $K_{NiFe}$  causados pelo grau de textura [111]-fcc diferentes em ambas as Séries, conforme discussão a seguir.

Assim, os resultados sugerem que a espessura mínima ( $t_{min}$ ) para formar uma parede de domínio de  $180^\circ$  dentro do AFM é de  $t_{IrMn} = 12$  nm para a Série-A e de  $t_{IrMn} = 4$  nm para a Série-B. Considerando-se que  $t_{min} \propto (J_{AFM}/a^3 K_{AFM})^{1/2}$ , onde  $J_{AFM}$  é a constante de interação de troca dentro da camada de IrMn,  $a$  é a distância entre os átomos e  $K_{AFM}$  é a anisotropia do IrMn, a constante  $K_{AFM}$  das amostras da Série-B é 9 vezes maior do que as amostras da Série-A. Deste modo, para uma espessura  $t_{IrMn} = 4$  nm, espera-se a formação de uma parede de domínio de  $180^\circ$  para a Série-B, mas não para a Série-A. Em outras palavras, valores menores de  $K_{Co}$  e  $K_{AFM}$  favorecem o alinhamento FM entre as magnetizações das camadas de NiFe e Co na Série-A, devido ao fato que a formação de uma parede de domínio no interior da camada AFM é energeticamente desfavorável para  $t_{IrMn} < 12$  nm. Para  $t_{IrMn}$  menores, o estado de menor energia acontece para o acoplamento paralelo entre as camadas de NiFe e Co para as amostras da Série-A. No entanto, quando aumenta-se  $t_{IrMn}$ , a condição energética para formar domínios dentro do AFM para as amostras da Série-A é satisfeita e o ES desempenha o seu papel (i.e, espessuras  $t_{IrMn}$  maiores, favorece o acoplamento magnético próximo ao antiparalelo entre as camadas FM's). Ao contrário, para as amostras da Série-B, os valores das constantes  $K_{AFM}$  e  $K_{Co}$  são maior do que os encontrados para as amostras da Série-A, então, há sempre energia magnética suficiente para formar a parede de domínio no interior da camada de IrMn, mesmo para valores de  $t_{IrMn}$  menores, conduzindo às diferenças observadas no comportamento do ES para ambos os sistemas estudados. Finalmente, retorna-se a questão da observação de um "vale" inesperado observado na Fig.(4.10) que relaciona  $\Delta\Psi$  vs  $t_{IrMn}$  para as amostras  $t_{IrMn}^{Cu} = 6$  nm e  $t_{IrMn}^{Ta} = 8$  nm. Entende-se este "vale", em primeira aproximação, a um aumento no valor negativo do  $H_{EB}^{NiFe/IrMn}$

devido aos valores elevados  $K_{AFM}$  nestas duas amostras (camada de IrMn sem tensão mecânica de acoplamento), o que conduz a uma redução do valor do  $\Delta\Psi$  para ambas as Séries. Além disso, o aumento negativo do  $H_{EB}^{NiFe/IrMn}$  também explica a redução do  $\Delta\Psi$  observado na Série-B quando aumenta-se a  $t_{IrMn}$ . Em outras palavras, a intensidade do  $H_{ES}$  torna-se mais fraca à medida que  $t_{IrMn}$  aumenta e os campos  $H_{EB}^{NiFe}$  tendem a valores mais negativos, devido à ação do  $H_{EB}^{NiFe/IrMn}$ . Consequentemente, reduz-se o valor de  $\Delta\Psi$ . Assim, mostrou-se que o comportamento do  $\Delta\Psi$  é fortemente dependente tanto do efeito de EB como do ES.

## 4.4 Medidas de Espalhamento Magnético Ressonante de Raios-X

Em virtude, da câmara de difração magnética (Sec.3.4.3) precisar de várias horas para atingir um vácuo razoável (colocar e trocar as amostras) e por limitações de tempo (de feixe), inviabilizou-se a possibilidade de medir todas as amostras deste trabalho. Por essa razão, escolheu-se analisar uma única espessura para as duas Séries ( $t_{IrMn} = 15$  nm). Realizaram-se as medidas de XRMS tanto para as amostras como depositadas como para aquelas com anisotropia unidirecional (Séries A e B). Devido ao fato do pedaço restante da amostra da Série-A ser muito pequeno para realização das medidas de XRMS, reproduziu-se uma amostra similar, buscando as mesmas condições experimentais que utilizou-se para o preparo da primeira amostra  $t_{IrMn} = 15$  nm. Fixou-se a polarização circular para todas as medidas com um grau de polarização de  $P_C = 80\%$  (maiores detalhes Ref. [24]). O vácuo da câmara durante as medidas esteve na ordem de  $10^{-7}$  Torr (valor aceitável que minimiza a forte absorção do Raios-X moles no ar).

Apresentam-se primeiramente as medidas de XRMS, obtidas à temperatura ambiente, para as amostras no estado como depositadas das Séries A e B ( $t_{IrMn} = 15$  nm). Realizaram-se medidas de refletividade magnética em função do ângulo, como também em função da energia, e laços de histerese magnéticos por XRMS. Nas Figs.(4.26 a-c) e (4.27 a-c), ilustram-se as medidas de refletividade em função do ângulo com energia do fóton próxima as bordas de absorção  $L_3$  dos metais de transição  $3d$  propiciando a

seletividade química; já que as bordas de absorção são únicas para cada elemento. Para as Séries A e B, realizaram-se as medidas nas bordas: Ni ( $E_{Ni} = 852,7$  eV e  $\lambda_{Ni} = 1,4548$  nm), Fe ( $E_{Fe} = 708,7$  eV,  $\lambda_{Fe} = 1,7504$  nm), Co ( $E_{Co} = 778,5$  eV e  $\lambda_{Co} = 1,5934$  nm) e Mn ( $E_{Mn} = 640$  eV e  $\lambda_{Mn} = 1,9383$  nm), onde ocorrem os máximos de assimetria magnética em energia. Nestas figuras, as linhas sólidas cinza indicam que mediram-se as refletividades com o campo aplicado positivo  $H^+$  (+ 500 Oe) e as linhas pretas referem-se as refletividades medidas com campo negativo  $H^-$  (-500 Oe). Observam-se destas refletividades ( $H^+$  e  $H^-$ ), assimetrias magnéticas em algumas posições angulares, as quais são mais visíveis, plotando-se as razões de assimetria em função do ângulo de incidência, conforme Eq.(3.29) ( $R_A = \frac{H^+ - H^-}{H^+ + H^-}$ ). Esta razão calculada para cada energia, ilustra-se depois, de cada par de curvas de refletividades, por círculos preenchidos de cores cinzas, onde a quantidade  $R_A$  se encontra normalizada na mesma escala para todas as medidas, para efeitos de comparação. Para as curvas medidas nas energias  $E_{Ni}$  e  $E_{Fe}$  (Fig.4.26-a,b), as assimetrias magnéticas estão em torno de 5%, e para a  $E_{Co}$  (Fig.4.26-c), a  $R_A \sim 40\%$ . Para a Série-B (Fig.4.27 a-c), as assimetrias do Fe e do Co estão próximas a 14% e para o Ni em torno de 3%.

Nas Figs.(4.26-d e 4.27-d), mostram-se as refletividades em função da energia tomadas com campos em sentidos opostos ( $H^+$  e  $H^-$ ), para  $2\theta = 20^\circ$  (Série-A) e em  $2\theta = 23^\circ$  (Série-B) (varrendo na faixa de energia das bordas  $L_{2,3}$  do Co). As curvas para as outras energias encontram-se bastante ruidosas. A refletividade exibe dois picos referentes às bordas  $L_3$  e  $L_2$  dos elementos. Neste caso, as  $R_A$ 's máximas valem aproximadamente 41% para a Série-A e 10% para a Série-B. Uma análise futura será feita para obter os valores de momento orbital ( $m_o$ ) e de *spin* ( $m_s^{eff}$ ) pelas regras de soma, após tratamento descrito no capítulo anterior (para as amostras como depositadas e com anisotropia unidirecional).

Das posições angulares das assimetrias magnéticas presentes nas curvas de refletividades de cada elemento ( $H^+$  e  $H^-$ ), extraíram-se os laços de histerese para cada elemento, varrendo-se o campo magnético ( $\pm 500$  Oe), Figs.(4.26-e e 4.27-e). Para a Série-A, obtiveram-se os laços nos ângulos  $2\theta_{Ni} = 16,2^\circ$ ,  $2\theta_{Fe} = 15^\circ$  e  $2\theta_{Co} = 20^\circ$ , e para a Série-B nos ângulos  $2\theta_{Ni} = 30,2^\circ$ ;  $2\theta_{Fe} = 36,6^\circ$  e  $2\theta_{Co} = 23^\circ$ . Para efeito de comparação, adicionam-se as curvas de histerese, das amostras como depositadas, obtidas por magnetometria (VSM).

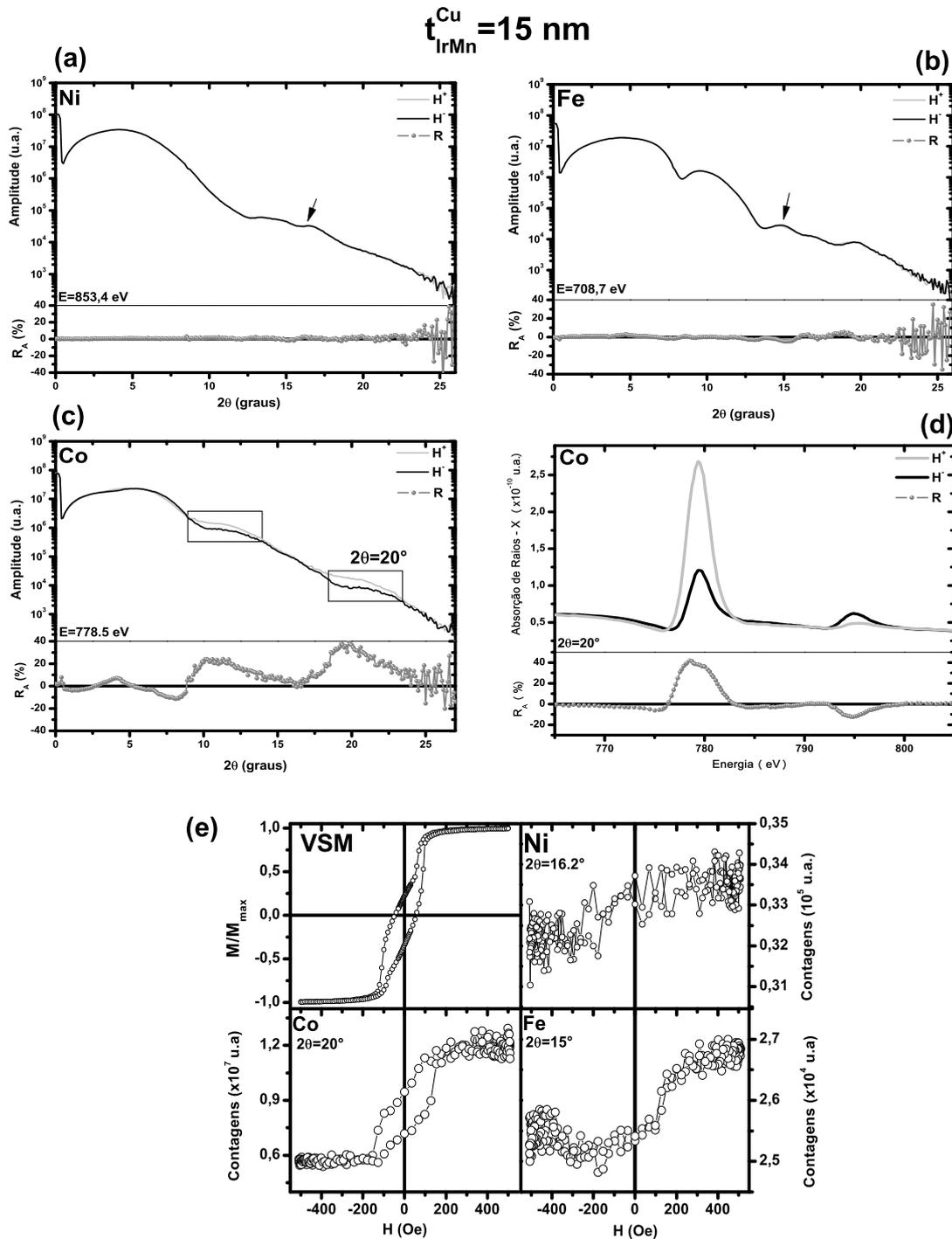


Figura 4.26: Medidas de refletividades magnéticas em função do ângulo (a-c), em função da energia (d) e, laços de histerese magnética (e) obtidos à temperatura ambiente, próximas as bordas de absorção  $L_3$  dos elementos Ni, Fe e Co para a amostra no estado como depositada  $t_{IrMn}^{Cu} = 15 \text{ nm}$ . Para efeito de comparação, adicionou-se em (e) o laço tomado pela técnica de VSM.

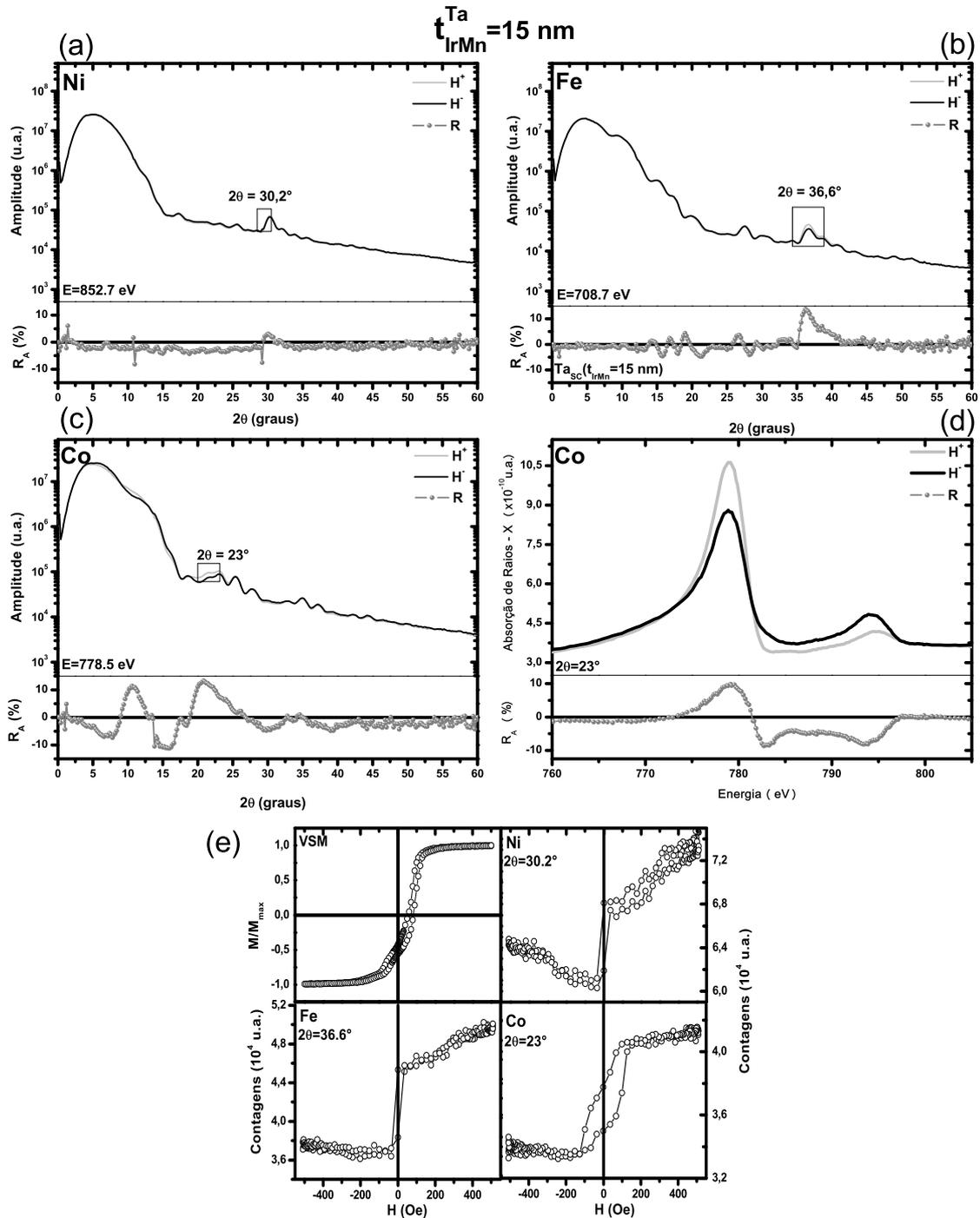


Figura 4.27: Medidas de refletividade magnéticas em função do ângulo (a-c), em função da energia (d) e, laços de histerese (e), obtidos à temperatura ambiente, próximas as bordas de absorção  $L_3$  dos elementos Ni, Fe e Co com a técnica XRMS para a amostra no estado como depositada  $t_{IrMn}^{Ta} = 15 \text{ nm}$ . Para efeito de comparação, adicionou-se em (e) o laço tomado pela técnica de VSM.

Da Fig.(4.26-e), para a Série-A, observa-se que o laço de histerese referente ao Fe, encontra-se deslocado para campos positivos, enquanto o laço referente ao Ni é muito ruidoso para ser analisado. O laço medido próximo da borda do Co encontra-se centrado em campo nulo. Enquanto, o laço obtido por VSM não está centrado, simplesmente existem domínios no AFM. Devido ao deslocamento do laço do Fe a campos positivos é uma comprovação definitiva de que o fenômeno de ES (*Exchange Spring*) já existe na amostra no estado como depositada, como assumiu-se na análise dos dados de VSM, mas agora sendo confirmado com estas medidas.

Por outro lado, da Fig.(4.27-e) para a Série-B, os laços de histerese dos elementos Ni, Fe e Co, encontram-se centrados na origem; enquanto, o laço de histerese obtido com o VSM, não se consegue observar as contribuições do NiFe e do Co por separado. Neste caso particular, as medidas de XRMS não são conclusivas para demonstrar a existência ou não do fenômeno de ES antes da aplicação do Protocolo 2. Fica então a questão: como explicar o deslocamento do NiFe no ciclo obtido por VSM?. Devem-se realizar medidas adicionais para esclarecer este ponto, levando em conta o ângulo de incidência (profundidade de penetração do feixe na camada de NiFe, por exemplo).

Adicionalmente, discutem-se medidas de XRMS na amostra com anisotropia unidirecional da Série-A (vide Fig.4.28).

Na Fig.(4.28-a, b, c), apresentam-se as curvas de refletividade magnética em função do ângulo, com energia do fóton próxima às bordas de absorção do Fe ( $E_{Fe} = 708,7$  eV e  $\lambda_{Fe} = 1,7504$  nm), Co ( $E_{Co} = 778,5$  eV e  $\lambda_{Co} = 1,5934$  nm) e Mn ( $E_{Mn} = 640$  eV e  $\lambda_{Mn} = 1,9383$  nm). Para as curvas medidas nas energias  $E_{Fe}$  e  $E_{Mn}$ , as assimetrias magnéticas só são visíveis com ampliação ( $E_{Fe}$  em  $2\theta_{Fe} = 15,6^\circ$  e,  $E_{Mn}$  em  $2\theta_{Mn} = 20^\circ$ ). Mas, no caso das medidas em  $E_{Co}$ , esta assimetria encontra-se visualmente destacada em  $2\theta_{Co} = 4,4^\circ$  e  $13^\circ$ . Isto se deve ao fato da camada do Co estar menos enterrada relativamente a penetração do feixe de radiação. A  $R_A$  situa-se em torno de 30% nas medidas de refletividade em  $E_{Co}$ , para  $2\theta_{Co} = 13^\circ$ . As  $R_A$  máximas para as outras energias encontram-se em 15% para a  $E_{Mn}$  e 4% para a  $E_{Fe}$ . Como pode-se observar,

a razão de assimetria decresce para camadas mais profundas, como previsto por Kao e col. [145], que provaram que a razão de assimetria pode depender fortemente do ângulo de incidência. O valor da  $R_A$  para um determinado elemento depende do número relativo de momentos que respondem ao campo magnético aplicado. Filmes não magnéticos ou que por alguma razão tenham seus momentos completamente travados (não invertem com a mudança no sentido do campo) possuem uma razão de assimetria nula; isto é, não há nenhuma mudança na curva de refletividade quando o sentido do campo é invertido.

Na Fig.(4.28-d, e) mostram-se as refletividades em função da energia (bordas  $L_{2,3}$ ), onde o ângulo de incidência fixou-se em  $2\theta = 13^\circ$ , para varredura do Co e  $2\theta = 19^\circ$ , para a varredura do Mn. Tal como nas medidas anteriores, obtiveram-se as curvas de refletividade em função da energia com campos aplicados em sentidos opostos ( $H^+$  - linhas sólidas de cores cinzas e  $H^-$  - linhas sólidas de cores pretas). A refletividade exhibe dois picos referentes às bordas  $L_3$  e  $L_2$  dos elementos. A razão de assimetria máxima em  $E_{Co}$  vale aproximadamente 46%.

Na Fig.(4.28-f) apresentam-se três laços de histerese medidos nas energias  $E_{Fe}$ ,  $E_{Co}$  e  $E_{Mn}$ , nas posições angulares onde se observa o sinal magnético máximo. O laço obtido para  $E_{Fe}$  encontra-se centrado na origem, enquanto o laço obtido para  $E_{Co}$  encontra-se deslocado no eixo do campo magnético, possuindo um campo  $H_{EB}$  em torno de -116 Oe. Para efeito de comparação, adicionou-se o laço de histerese obtido por VSM, estando os valores de  $H_{EB}$  obtidos pelas duas técnicas em concordância. O laço de histerese obtido para  $E_{Mn}$  informa, claramente, que existem *spins* não-compensados rodáveis no Mn, entretanto, não é possível inferir se os *spins* do Mn encontram-se paralelos ou antiparalelos aos *spins* do Co e NiFe, visto que não se conseguiu observar assimetria magnética próxima ao ângulo crítico; então não se conhece se o laço está invertido ou não.

Um comportamento similar ao da amostra para a Série-A, registrou-se para a amostra da Série-B,  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm (vide Fig.4.29). Neste caso, a polarização circular ficou invertida com relação à usada para outras amostras.

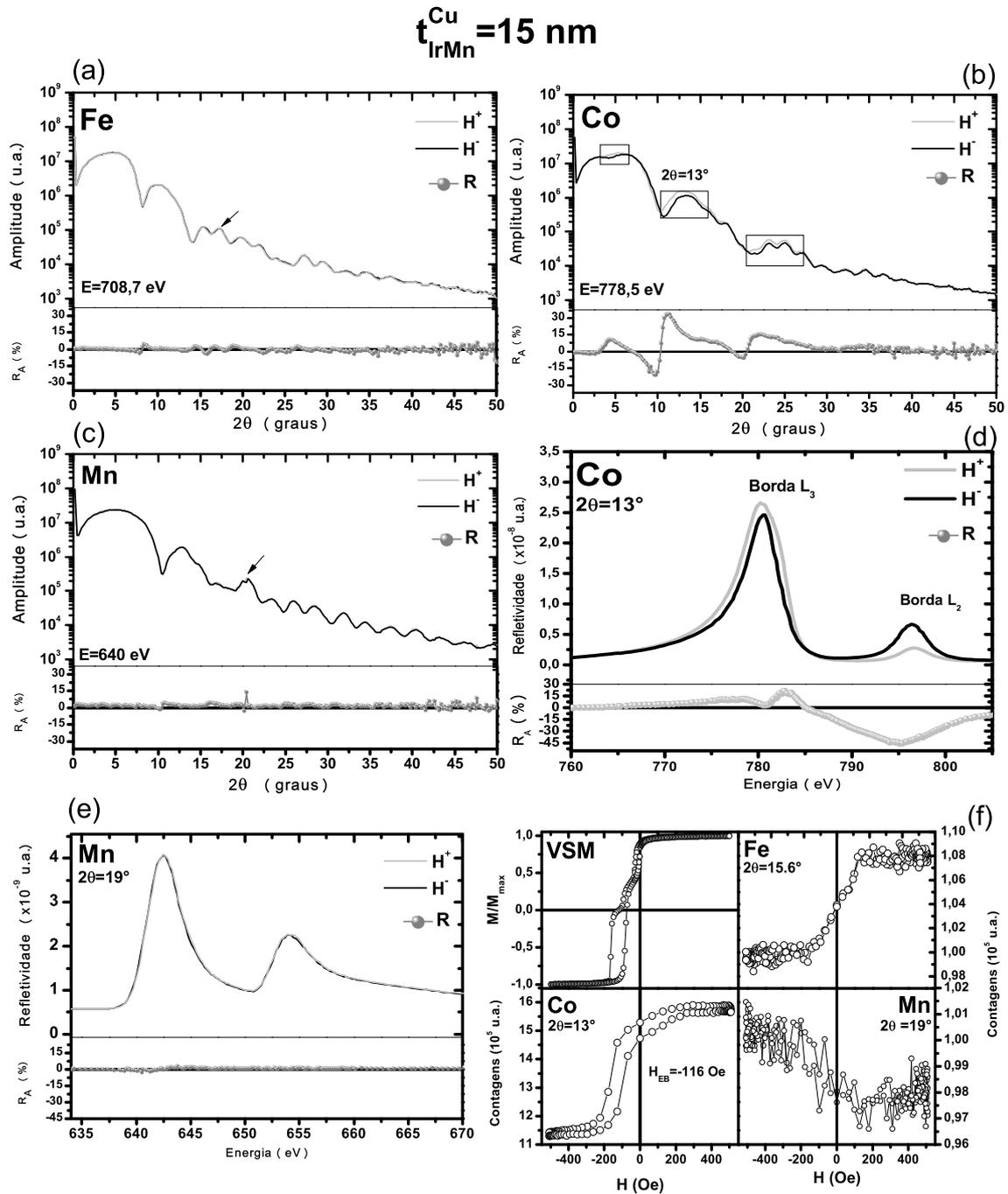


Figura 4.28: Curvas de refletividade magnética obtidas próximas as bordas  $L_3$  de absorção do Fe(a), Co(b) e Mn(c). Curvas de refletividade em função da energia próxima as bordas do Co(d) e Mn(e). Laços de histerese magnéticos tomados próximos às bordas do Fe, Co e Mn (f). Obtiveram-se todas estas medidas à temperatura ambiente utilizando a técnica XRMS para a amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 15 \text{ nm}$ . Para efeito de comparação, adicionou-se em (f) o laço tomado pela técnica de VSM.

Na Fig.(4.29-a, b, c, d), apresentam-se as curvas de refletividade magnética medidas com energia do fótons próxima as bordas de absorção  $L_3$  dos metais de transição  $3d$ , Ni ( $E_{Ni} = 853,4$  eV e  $\lambda_{Ni} = 1,4536$  nm), Fe ( $E_{Fe} = 708,7$  eV e  $\lambda_{Fe} = 1,7504$  nm), Co ( $E_{Co} = 778,5$  eV e  $\lambda_{Co} = 1,5934$  nm) e Mn ( $E_{Mn} = 640$  eV e  $\lambda_{Mn} = 1,9383$  nm), respectivamente. As linhas sólidas cinzas indicam que obtiveram-se as curvas de refletividade com o campo aplicado positivo  $H^+$  e as linhas pretas referem-se as refletividades medidas com campo negativo  $H^-$ . Usaram-se as mesmas condições de medida da amostra  $t_{IrMn}^{Cu}$ .

Para as refletividades medidas nas energias  $E_{Ni}$ ,  $E_{Fe}$  e  $E_{Mn}$ , as assimetrias magnéticas não são visíveis sem ampliação. Novamente, a descrição mais clara de assimetria nota-se em  $E_{Co}$  nas posições  $2\theta_{Co} = 13^\circ$  e  $23^\circ$  ( $R_A \sim 11\%$ ). Todavia, uma ampliação da  $R_A$  em função do ângulo para a  $E_{Mn}$  prova que há momentos magnéticos não-compensados rodáveis do Mn, até certa profundidade da camada de Mn, análise baseada no trabalho de Mishra e col. [66].

Na Fig.(4.29-e), mostra-se a refletividade em função da energia tomada em campos com sentidos opostos ( $H^+$  e  $H^-$ ), para  $2\theta = 23^\circ$  (varrendo na faixa de energia das bordas  $L_{2,3}$  do Co). As curvas para as outras energias ficaram ruidosas. A refletividade exhibe dois picos referentes às bordas  $L_3$  e  $L_2$  dos elementos. A razão de assimetria máxima em  $E_{Co}$  vale aproximadamente 15%.

Na Fig.(4.29-f), ilustram-se três laços de histerese medidos nas energias  $E_{Fe}$ ,  $E_{Co}$  e  $E_{Mn}$ , nas posições onde se observa o sinal máximo magnético. O laço em  $E_{Fe}$ , encontra-se deslocado da origem para campos positivos, como o observado no laço obtido com VSM referente à camada de NiFe. Para a  $E_{Co}$ , o laço em  $2\theta_{Co} = 23^\circ$ , encontra-se deslocado do eixo do campo e, estima-se o valor do campo  $H_{EB}$  em -81 Oe. O comportamento deste laço esta de acordo com o que se obtêm da técnica de VSM (vide Fig.4.29-f). Para a  $E_{Mn}$ , o laço de histerese não apresenta uma boa definição.

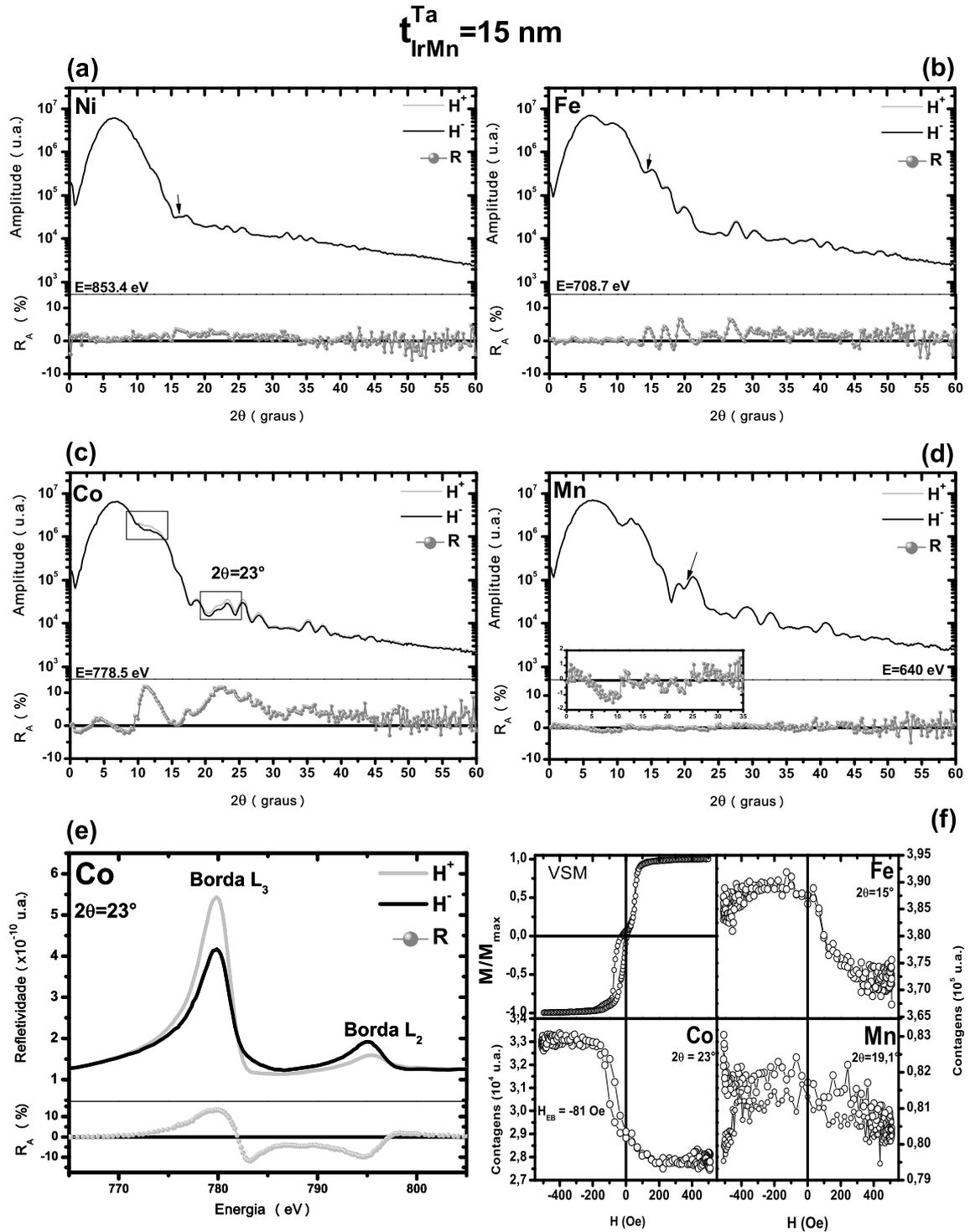


Figura 4.29: Curvas de refletividade magnética obtidas próximas às bordas  $L_3$  de absorção do Ni(a), Fe(b), Co(c) e Mn(d). Curva de refletividade em função da energia próxima à borda do Co(e). Laços de histerese magnéticos tomados próximos às bordas do Fe, Co e Mn (f). Obtiveram-se todas estas medidas à temperatura ambiente utilizando a técnica XRMS para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15 \text{ nm}$ . Para efeito de comparação, adicionou-se em (f) o laço tomado pela técnica de VSM.

## Capítulo 5

### Conclusão

Nesta tese de doutorado, investigou-se a influência da textura [111] da camada de IrMn, com estrutura cúbica de face centrada, nos efeitos de *Exchange Spring* (ES) e *Exchange Bias* (EB) observados nas heteroestruturas NiFe (20 nm)/IrMn( $t_{IrMn}$ )/Co(10 nm), com  $t_{IrMn}$  entre (3 - 30 nm). Usou-se como camadas sementes Cu e Ta metálicos crescidos sobre substratos de Si(100) (orientado na direção [110]), para propiciar o crescimento das camadas de NiFe, IrMn e Co com estruturas cúbicas e com direção [111].

Demonstra-se, com resultados de difração de Raios-X, que os sistemas de tricamadas Cu/NiFe/IrMn/Co/Cu (Série-A) e Ta/NiFe/IrMn/Co/Ta (Série-B) cresceram com diferentes graus da textura [111] induzidos pelas camadas sementes de Cu e Ta, fato que provoca distintas propriedades magnéticas nestes materiais. Particularmente, enquanto a camada semente de Ta induz um alto grau de textura [111] para as camadas das amostras da Série B, nas amostras da Série-A a camada de Cu favoreceu um crescimento com um grau de textura menor, onde outras orientações ([200] e [220]) aparecem. Ainda nas medidas de difração de Raios-X em ângulos rasantes, verifica-se uma elevada rugosidade na interface Si/Cu (2,8 nm) (quando comparada àquela da interface Si/Ta (0,2 nm)), que pode se propagar para as interfaces superiores, o que indica que a rugosidade das amostras da Série-A (Cu) deve ser maior do que nas amostras da Série-B (Ta).

Do ponto de vista magnético, constata-se diferentes comportamentos para o ângulo de acoplamento magnético planar ( $\Delta\Psi$ ) entre as magnetizações das camadas de NiFe e Co à medida que aumenta-se a espessura da camada de IrMn ( $t_{IrMn}$ ). Das medidas de magnetometria, obtiveram-se laços de histerese à temperatura ambiente nos Protocolos

1 ( $M(H)$  obtido à temperatura ambiente para a amostra no estado como depositada) e 2 (Processo de *Field Cooling*). Os resultados de magnetização DC (Protocolo 1) sugerem que o efeito de ES existe mesmo antes da aplicação de um resfriamento com campo magnético (indução de anisotropia unidirecional). Considerando o fato de que a anisotropia do AFM é, neste caso, menor do que o Co, os *spins* do Co arrastaram os *spins* interfaciais do IrMn resultando na formação de estruturas de *spins* tipo espiral. Com isto, a magnetização da camada de NiFe, orienta-se também pela ação da camada de Co através da estrutura de *spins* do IrMn. Verifica-se que um campo de resfriamento de apenas 10 Oe é suficiente para induzir o fenômeno de EB nas interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co. Das medidas de  $M(H)$  no Protocolo 2, observou-se dois laços assimétricos devido às anisotropias unidirecionais induzidas nas interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co. Neste caso, explicam-se os dados experimentais dos comportamentos dos campos à medida que se aumenta o valor da espessura  $t_{IrMn}$ , assumindo-se que somente o efeito de EB age na interface IrMn/Co, mas para a interface NiFe/IrMn necessariamente há duas contribuições principais: o EB e o ES (o mecanismo responsável pelo ES é semelhante ao descrito para as medidas do Protocolo 1). Por conseguinte, a anisotropia efetiva da multicamada se deve principalmente à anisotropia magnética efetiva das camadas de Co e IrMn. Observa-se ainda que para valores da  $t_{IrMn}$  no intervalo de 6-8 nm, estabiliza-se a camada de IrMn sem tensão cristalográfica, para ambas as Séries (A e B). Esta estrutura cristalina do tipo  $L1_2$  sem tensão para a camada de IrMn, por sua vez, favorece a existência de um máximo valor negativo de campo de *Exchange Bias* ( $H_{EB}$ ) para a interface IrMn/Co. Isto conduz a observação de um vale inesperado no comportamento do  $H_{EB}$  e do  $\Delta\Psi$  em função da  $t_{IrMn}$ .

Determinou-se também, das medidas de ressonância ferromagnética, os valores de  $\Delta\Psi$  (ângulo de acoplamento entre as magnetizações das camadas de NiFe e Co). O comportamento oposto observado para a grandeza  $\Delta\Psi$  à medida que  $t_{IrMn}$  varia nas Séries-A e B atribui-se à combinação das distintas contribuições das grandezas físicas que definem os efeitos de ES e EB que, por sua vez, governam-se pelos diferentes graus de textura [111] da camada IrMn. Em particular, enquanto o valor da grandeza  $\Delta\Psi$  tende a aumentar à medida que  $t_{IrMn}$  cresce para a Série-A; para a Série-B constata-se que esta grandeza tende a uma redução. Constatam-se ainda, através de medidas de ressonância ferromagnética, que as constantes de anisotropias magnéticas (perpendiculares)  $K_{eff}^{Co}$

$K_{eff}^{NiFe}$  para ambas as Séries e cujos valores encontram-se na Tabela 4.4 (Série-A) e Tabela 4.5 (Série-B).

Das medidas de espalhamento magnético ressonante de Raios-X, obtêm-se curvas de refletividade magnética angular, laços de histereses e refletividade magnética varrendo em energia. Realizam-se as medidas à temperatura ambiente e com energia do fóton próxima as bordas de absorção  $L_3$  dos metais de transição  $3d$  (Ni, Fe, Co e Mn), propiciando caracterização magnética com seletividade química. Das curvas de refletividade, obtidas com o campo magnético aplicado em dois sentidos distintos (mesma direção), determina-se a razão de assimetria, que se encontra intimamente ligada à estrutura de *spins* nas diferentes camadas do sistema NiFe/IrMn/Co. Como principal resultado, além dos laços de histereses de cada elemento, observa-se a presença de *spins* não compensados reversíveis no Mn para as amostras com anisotropia unidirecional de ambas as Séries (efeito mais pronunciado para a amostra de  $t_{IrMn}^{Cu}$ ). Conseguiu-se comprovar, em analogia aos laços de histerese obtidos nas medidas por magnetometria, a presença do fenômeno de ES na amostra como depositada  $t_{IrMn}^{Cu} = 15$  nm. Em oposição, não se observa claramente este fenômeno para a amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 15$  nm no seu estado natural.

Em resumo, os resultados de difração de Raios-X, magnetização e ressonância ferromagnética obtidos em ambas as Séries (A e B) podem ser fisicamente entendidos considerando os diferentes valores das constantes de anisotropias magnéticas efetivas das camadas de Co, IrMn e NiFe; estes valores são dependentes dos distintos graus de textura [111], os quais também afetam diretamente os valores de  $H_{EB}$  nas interfaces NiFe/IrMn e IrMn/Co, como também o ES. Consequentemente, estes fatores provocam os diferentes comportamentos observados do  $\Delta\Psi$  no sistema NiFe/IrMn/Co. Portanto, este trabalho de tese contribui efetivamente para demonstrar que a textura cristalográfica em filmes finos governa os efeitos de EB e ES, que, combinados, influenciam diretamente o comportamento do  $\Delta\Psi$ . Em geral, para aplicação tecnológica, deseja-se altos valores de campos de ( $H_{EB}$ ), sendo assim o intervalo de espessura para a camada de IrMn é de de 6-8 nm, independentemente de se ter usado Ta ou Cu como camada sementes. Como trabalhos futuros, sugere-se um estudo sistemático da influência da rugosidade interfacial entre cada uma das interfaces, correlacionando-a com a textura e, portanto, levando a um melhor entendimento dos fenômenos de EB e ES no sistema Z/NiFe/IrMn/Co/Z (Z = Cu e Ta, por exemplo e/ou outros materiais para camadas sementes).

## Referências

- [1] E. Bauer. **Growth of thin films**. J. Phys.: Condens. Matter, **11**, 9365-9385 (1999).
- [2] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau e F. Petroff. **Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices**. Phys. Rev. Lett., **61**, 2472-2475 (1988).
- [3] S. S. Parkin, N. More e K. P. Roche. **Oscillations in exchange coupling and magnetoresistance in metallic superlattice structures: Co/Ru, Co/Cr, and Fe/Cr**, Phys. Rev. Lett., **64**, 2304-2307 (1990).
- [4] J. Nogués, J. Sort, V. Langlais, V. Skumryev, S. Suriñach, J. S. Muñoz, M. D. Baró. **Exchange bias in nanostructures**. Physics Reports., **422**, 65-117 (2005).
- [5] M. Kiwi. **Exchange bias theory**. J. Magn. Magn. Mater., **234**, 584-595 (2001).
- [6] P. A. Grünberg. **Exchange anisotropy interlayer exchange coupling and GMR in research and application**. Sensors and Actuators, **91**, 153-160 (2001).
- [7] W. H Meiklejohn e C. P. Bean. **New Magnetic Anisotropy**. Phys. Rev., **102**, 1413-1414 (1956).
- [8] W. H Meiklejohn e C. P. Bean. **New Magnetic Anisotropy**. Phys. Rev., **105**, 904-913 (1957).
- [9] W. H Meiklejohn. **Exchange Anisotropy - A Review**. J. Appl. Phys., **33**, 1328-1335 (1962).
- [10] J. Nogués e I. K. Schuller. **Exchange bias**. J. Magn. Magn. Mater., **192**, 203-232 (1999).
- [11] K. Takano, R. H. Kodama, A. E. Berkowitz, W. Cao e G. Thomas. **Interfacial Uncompensated Antiferromagnetic Spins: Role in Unidirectional Anisotropy in Polycrystalline Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> CoO Bilayers**. Phys. Rev. Lett., **79**, 1130-1133 (1997).

- [12] A. E. Berkowitz e K. Takano. **Exchange anisotropy - a review**. J. Magn. Magn. Mater., **200**, 552-570 (1999).
- [13] R. L. Stamps. **Mechanisms for exchange bias**. J. Phys. D: Appl. Phys., **33**, R247-R268 (2000).
- [14] T. P. A. Hase, B. D. Fulthorpe, S. B. Wilkins, B. K. Tanner, C. H. Marrows e B. J. Hickey. **Weak magnetic moment on IrMn exchange bias pinning layers**. Appl. Phys. Lett., **79**, 985-987 (2001).
- [15] B. D. Cullity. **Introduction to Magnetic Materials**. 1ª edição. California, Estados Unidos da América: Addison Wesley, 1972.
- [16] W. Alayo, Y. T. Xing e E. B. Saitovitch. **Magnetization studies in IrMn/Co/Ru/NiFe spin valves with weak interlayer coupling**. J. Appl. Phys., **106**, 113903(1)-113903(6) (2009).
- [17] E. C. Passamani, E. Baggio-Saitovitch, K. Mibu e T. Shinjo. **<sup>151</sup>Eu Mössbauer study of transition-metal/Eu multilayers**. Phys. Rev. B, **53**, 6566-6571 (1996).
- [18] L. I. Maissel e R. Gland. **Handbook of Thin Film Technology**. McGraw-Hill, New York, USA, 1970.
- [19] S. S. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant e See-Hun Yang. **Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers**, Nature Materials, **3**, 862-867 (2004).
- [20] M. Pinarbasi, S. Metin, H. Gill, M. Parker, B. Gurney, M. Carey e C. Tsang. **Antiparallel pinned NiO spin valve sensor for GMR head application (invited)**. J. Appl. Phys., **87**, 5714-5719 (2000).
- [21] S. Mao, J. Chen e E. Murdock. **Spin valves with antiparallel-pinned flux compensation layer**. J. Appl. Phys., **87**, 6606-6608 (2000).
- [22] C. L. Chien, V. S. Gornakov, V. I. Nikitenko, A. J. Shapiro e R. D. Shull. **Antiferromagnetic Spin Structure and Domains in Exchange-Coupled Multilayers**. IEEE T. Magn., **38**, 2736-2740 (2002).
- [23] A. Scholl, M. Liberati, E. Arenholz, H. Ohldag e J. Stöhr. **Creation of an Antiferromagnetic Exchange Spring**. Phys. Rev. Lett., **92**, 247201(1)-247201(4) (2004).
- [24] V. P. Nascimento. **Estudo das Interfaces Nas Multicamadas NiFe/FeMn/NiFe**. Tese (Doutorado) - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas. 2005.
- [25] K. D. Usadel e U. Nowak. **Exchange bias for a ferromagnetic film coupled to a spin glass**. Phys. Rev. B, **80**, 014418(1)-014418(5) (2009).
- [26] D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus e E. Kay. **Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate**. J. Appl. Phys., **62**, 3047-3049 (1987).

- [27] M. D. Stiles e R. D. McMichael. **Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers**. Phys. Rev. B, **59**, 3722-3733 (1999).
- [28] E. E. Fullerton, J. S. Jiang, M. Grimsditch, C. H. Sowers e S. D. Bader. **Exchange-spring behavior in epitaxial hard/soft magnetic bilayers**. Phys. Rev. B, **58**, 12193-12200 (1998).
- [29] K. V. O'Donovan, J. A. Borchers, C. F. Majkrzak, O. Hellwig, e E. E. Fullerton. **Pinpointing Chiral Structures with Front-Back Polarized Neutron Reflectometry**. Phys. Rev. Lett., **88**, 067201(1)-067201(4) (2002).
- [30] F. Y. Yang e C. L. Chien. **Spiraling Spin Structure in an Exchange-Coupled Antiferromagnetic Layer**. Phys. Rev. Lett., **85**, 2597-2600 (2000).
- [31] K. Li, Y. Wu, G. Han, P. Luo, L. An, J. Qiu, Z. Guo e Y. Zheng. **Exchange coupling between ferromagnetic and laminated antiferromagnetic layers and its application**. J. Appl. Phys., **94**, 5905-5911 (2003).
- [32] R. Morales, M. Vélez, O. Petravic, Igor V. Roshchin, Z.-P. Li, X. Batlle, J. M. Alameda e I.K. Schuller. **Three-dimensional spin structure in exchange-biased antiferromagnetic/ferromagnetic thin films**. Appl. Phys. Lett., **95**, 092503(1)-092503(3) (2009).
- [33] Yuan-Tsung Chen. **The Effect of Interface Texture on Exchange Biasing in  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}$  System**. Nanoscale Res. Lett., **4**, 90-93 (2009).
- [34] N. P. Aley, G. Vallejo-Fernandez, R. Kroeger, B. Lafferty, J. Agnew, Y. Lu e K. O'Grady. **Texture Effects in IrMn/CoFe Exchange Bias Systems**. IEEE T. Magn., **44**, 2820-2823 (2008).
- [35] R. M. Öksüzoglu, M. Yildirim, H. Çınar, E. Hildebrandt e L. Alff. **Effect of Ta buffer and NiFe seed layers on pulsed-DC magnetron sputtered  $\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}/\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  exchange bias**. J. Magn. Magn. Mater., **323**, 1827-1834 (2011).
- [36] H. Gong, M. Rao, D. E. Laughlin D. N. Lambeth. **Highly oriented NiFe soft magnetic films on Si substrates**. J. Appl. Phys., **85**, 5750-5752 (1999).
- [37] G. E. Fish. **Soft Magnetic Materials**. Proc. IEEE, **78**, 947-972 (1990).
- [38] W. F. Brown. **Magnetic Materials, Handbook of Chemistry and Physics**. McGraw-Hill, New York, USA, 1958.
- [39] K. A. Seu, H. Huang, J. F. Lesoine, H. D. Showman, W. F. Egelhoff, Jr. e L. Gan e A. C. Reilly. **Co layer thickness dependence of exchange biasing for IrMn/Co and FeMn/Co**. J. Appl. Phys., **93**, 6611-6613 (2003).
- [40] F. Frey, W. Prandl, J. Schneider, C. Zeyen e K. Ziebeck. **The HCP-FCC transition in pure Co investigated by neutron scattering**. J. Phys. F: Metal Phys., **9**, 603-616 (1979).

- [41] K. Heinz, S. Müller e L. Hammer. **Crystallography of ultrathin iron, cobalt and nickel films grown epitaxially on copper**. *J. Phys.: Condens. Matter*, **11**, 9437-9454 (1999).
- [42] A. J. Devasahayam, P. J. Sides, e M. H. Kryder. **Magnetic, temperature, and corrosion properties of the NiFe/IrMn exchange couple**. *J. Appl. Phys.*, **83**, 7216-7218 (1998).
- [43] H. N. Fuke, K. Saito, Y. Kamiguchi, H. Iwasaki, e M. Sahashi. **Spin-valve giant magnetoresistive films with antiferromagnetic Ir-Mn layers**. *J. Appl. Phys.*, **81**, 4004-4006 (1997).
- [44] S. van Dijken, M. Besnier, J. Moritz, e J. M. D. Coey. **IrMn as exchange-biasing material in systems with perpendicular magnetic anisotropy**. *J. Appl. Phys.*, **97**, 10K114(1)-10K114(3) (2005).
- [45] K. Sasao , R. Y. Umetsu , K. Fukamichi e A. Sakuma. **Lattice distortions and phase diagram of antiferromagnetic  $\gamma$ -MnIr disordered alloy system**. *J. Alloys Compd.*, **352**, 21-25 (2003).
- [46] M. Ohring. **The Materials Science of Thin Films**. Academic Press, California, USA, 1992.
- [47] L. H. Van Vlack. **Propriedades dos Materiais Cerâmicos**. Edgard Blücher. São Paulo, Brasil, 1973.
- [48] Y. -S. Choi, A. K. Petford-Long e R. C. C. Ward. **The Structural and Magnetic Characterization of Molecular-Beam Epitaxy Grown FeMn-NiFe Exchange Biased Bilayers**. *IEEE T. Magn.*, **38**, 2758-2760 (2002).
- [49] F. Huang, M. T. Kief, G. J. Mankey e R. F. Willis. **Magnetism in the few-monolayers limit: A surface magneto-optic Kerr-effect study of the magnetic behavior of ultrathin films of Co, Ni, and Co-Ni alloys on Cu(100) and Cu(111)**. *Phys. Rev. B*, **49**, 3962-3971 (1994).
- [50] A. P. Guimarães. **Magnetismo e Ressonância Magnética em Sólidos**. Versão brasileira atualizada e corrigida do Magnetism and Magnetic Resonance in Solids, 2009.
- [51] L. M. Falicov. **Metallic Magnetic Superlattices**. *Physics Today*, **45**, 46-51 (1992).
- [52] P. Grunberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. O. Brodsky e H. Sowers. **Layered Magnetic Structures: Evidence for Antiferromagnetic Coupling of Fe Layers across Cr Interlayers**. *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 2442-2445 (1986).
- [53] S. S. P. Parkin, R. Bhadra e K. P. Roche. **Oscillatory magnetic exchange coupling through thin copper layers**. *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 2152-2155 (1991).

- [54] J. P. King, J. N. Chapman, M. F. Gillies e J. C. S. Kools. **Magnetization reversal of NiFe films exchange-biased by IrMn and FeMn**. J. Phys. D: Appl. Phys., **34**, 528-538 (2001).
- [55] S. K. Mishra, F. Radu, H. A. Dürr, e W. Eberhardt. **Training-Induced Positive Exchange Bias in NiFe/IrMn Bilayers**. Phys. Rev. Lett., **102**, 177208(1)-177208(4) (2009).
- [56] N. T. Thanh, L. T. Tu, N. D. Ha, C. O. Kim, C. Kim, K. H. Shin, B. P. Rao. **Thickness dependence of parallel and perpendicular anisotropic resistivity in Ta/NiFe/IrMn/Ta multilayer studied by anisotropic magnetoresistance and planar Hall effect**. J. Appl. Phys., **101**, 053702(1)-053702(5) (2007).
- [57] H. Xi , J. Rantschler, S. Mao, M. T. Kief e R. M. White. **Interface coupling and magnetic properties of exchange-coupled Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Ir<sub>22</sub>Mn<sub>78</sub> bilayers**. J. Phys. D: Appl. Phys., **36**, 1464-1468 (2003).
- [58] Z. Q. Lu, G. Pan e W. Y. Lai. **Planar Hall effect in NiFe/NiMn bilayers**. J. Appl. Phys., **90**, 1414-1418 (2001).
- [59] R. E. Camley e R. L. Stamps. **Magnetic multilayers: spin configurations, excitations and giant magnetoresistance**. J. Phys.:Condens. Matter, **5**, 3727-3786 (1993).
- [60] A. P. Guimarães. **Principles of Nanomagnetism**.
- [61] S. Chikazumi. **Physics of Magnetism**. Robert E. Krieger, New York, USA, 1978.
- [62] G. M. B. Castro. **Estudo das propriedades estruturais, magnéticas e magnetorresistivas em multicamadas magnéticas de Co/Pt acopladas a IrMn**. Tese(Doutorado em Física) - Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Instituto de Física. 2010.
- [63] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder e J. J. de Vries. **Magnetic anisotropy in metallic multilayers**. Rep. Prog. Phys., **59**, 1409-1458 (1996).
- [64] C. Chappert e P. Bruno. **Magnetic anisotropy in metallic ultrathin films and related experiments on cobalt films (invited)**. J. Appl. Phys., **64**, 5736-5740 (1988).
- [65] B. Dai, J. W. Cai, W. Y. La. **Structural and magnetic properties of NiFe/NiMn bilayers with different seed and cap layers**. J. Magn. Magn. Mater., **257**, 190-194 (2003).
- [66] S. K. Mishra, F. Radu, S. Valencia, D. Schmitz, E. Schierle, H. A. Dürr, e W. Eberhardt. **Dual behavior of antiferromagnetic uncompensated spins in NiFe/IrMn exchange biased bilayers**. Phys. Rev. B, **81**, 212404(1)-212404(4) (2010).

- [67] J. van Driel, F. R. de Boer, K. -M. H. Lenssen e R. Coehoorn. **Exchange biasing by Ir<sub>19</sub> Mn<sub>81</sub>: Dependence on temperature, microstructure and antiferromagnetic layer thickness.** J. Appl. Phys., **88**, 975-982 (2000).
- [68] J. van Driel, R. Coehoorn, K. -M. Lenssen, A. E. T. Kuiper e F. R. de Boer. **Thermal stability of Ir-Mn as exchange biasing material.** J. Appl. Phys., **85**, 5522-5524 (1999).
- [69] J. C. Slonczewski. **Overview of interlayer exchange theory.** J. Magn. Magn. Mater., **150**, 13-24 (1995).
- [70] H. Zijlstra. **Coping with Brown's Paradox: The Pinning and Nucleation of Magnetic Domain Walls at Antiphase Boundaries.** IEEE T. Magn., **MAG-15**, 1246-1250 (1979).
- [71] L. Néel. **Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation.** J. Phys. Rad., **15**, 225-239 (1954).
- [72] T. Luciński, A. Hütten H. Brückl, S. Heitmann, T. Hempel, G. Reiss. **Magnetoresistance study of Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Co<sub>1</sub>/CuAgAu/Co<sub>2</sub> asymmetric sandwiches.** J. Magn. Magn. Mater., **269**, 78-88 (2004).
- [73] P. Grunberg. **Layered magnetic structures: history, facts and figures.** J. Magn. Magn. Mater., **226-230**, 1688-1693 (2001).
- [74] J. Camarero, Y. Pennec, J. Vogel, M. Bonfim, S. Pizzini, F. Ernult, F. Fettar, F. Garcia, F. Lançon, L. Billard, B. Dieny, A. Tagliaferri e N. B. Brookes. **Perpendicular Interlayer Coupling in Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/NiO/Co Trilayers.** Phys. Rev. Lett., **91**, 027201(1)-027201(4) (2003).
- [75] S. T. Purcell, M. T. Johnson, N. W. E. McGee, R. Coehoorn e W. Hoving. **Two-monolayer oscillations in the antiferromagnetic exchange coupling through Mn in Fe/Mn/Fe sandwich structures.** Phys. Rev. B, **45**, 13064-13067 (1992).
- [76] M. Rührig, R. Schäfer, A. Hubert, R. Mosler, J. A. Wolf, S. Demokritov e P. Grünberg. **Domain Observations on Fe-Cr-Fe Layered Structures. Evidence for a Biquadratic Coupling Effect .** Phys. Stat. Sol. (a), **125**, 635-656 (1991).
- [77] M. D. Stiles. **Interlayer exchange coupling.** J. Magn. Magn. Mater., **200**, 322-337 (1999).
- [78] A. Azevedo, C. Chesman, S. M. Rezende, F. M. de Aguiar, X. Bian e S. S. P. Parkin. **Biquadratic Exchange Coupling in Sputtered (100) Fe/Cr/Fe.** Phys. Rev. Lett., **76**, 4837-4840 (1996).
- [79] N. M. Kreines. **Investigation of interlayer coupling in [Fe/Cr]<sub>n</sub> magnetic multilayer structures by the ferromagnetic resonance method (Review).** Low Temp. Phys., **28**, 581-591 (2002).
- [80] W. Heisenberg. **Zur Theorie des Ferromagnetismus.** Z. Phys., **49**, 619-636 (1928).

- [81] C. G. Bezerra. **Propriedades Magnéticas de multicamadas e filmes finos quasiperiódicos**. Tese (Doutorado) - Universidade Federal do Rio Grande do Norte. 1999.
- [82] C. Chesman de Araujo Feitosa. **Acoplamentos de Intercâmbio Bilinear e Biquadrático em Tricamadas Metálicas Magnéticas**. Tese (Doutorado) - Universidade Federal de Pernambuco. 1997.
- [83] S. O. Demokritov. **Biquadratic interlayer coupling in layered magnetic systems**. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **31**, 925-941 (1998).
- [84] P. Grünberg, S. Demokritov, A. Fuss, M. Vohl, e J. A. Wolf. **Layered magnetic structures: Antiferromagnetic-type interlayer coupling and magnetoresistance due to antiparallel alignment**. *J. Appl. Phys.*, **69**, 4789-4791 (1991).
- [85] J. Inoue. **A theory of biquadratic exchange coupling in magnetic multilayers**. *J. Magn. Magn. Mater.*, **136**, 233-237 (1994).
- [86] J. Barnaś. **Intrinsic biquadratic contribution to interlayer coupling in magnetic layered structures**. *J. Magn. Magn. Mater.*, **123**, L21-L24 (1993).
- [87] H. Xi e R. M. White. **Coupling between two ferromagnetic layers separated by an antiferromagnetic layer**. *Phys. Rev. B*, **62**, 3933-3940 (2000).
- [88] Shi-shen Yan, P. Grünberg e Liang-mo Mei. **Magnetic phase diagrams of the trilayers with the noncollinear coupling in the form of the proximity magnetism model**. *J. Appl. Phys.*, **88**, 983-987 (2000).
- [89] Shi-shen Yan, R. Schreiber, F. Voges, C. Osthöver e P. Grünberg. **Oscillatory interlayer coupling in Fe/Mn/Fe trilayers**. *Phys. Rev. B*, **59**, R11641-R11644 (1999).
- [90] E. F. Kneller. **The Exchange-Spring Magnet: A New Material Principle for Permanent Magnets**. *IEEE T. Magn.*, **27**, 3588-3600 (1991).
- [91] K. Utsumiya, T. Seki e K. Takanashi. **Magnetic properties of L1<sub>0</sub>-FePt/permalloy exchange-spring films**. *J. Appl. Phys.*, **110**, 103911(1)-103911(6) (2011).
- [92] E. E. Fullerton, J. S. Jiang e S. D. Bader. **Hard/soft magnetic heterostructures: model exchange-spring magnets**. *J. Magn. Magn. Mater.*, **200**, 392-404 (1999).
- [93] A. N. Dobrynin, M. J. Van Bael, K. Temst e P. Lievens. **Evidence for coexistence of exchange bias and exchange spring effects in oxidized Co nanocluster assembled films**. *New Journal of Physics* **9**, 258 (2007).
- [94] R. Nakatani, T. Dei, T. Kobayashi e Y. Sugita. **Giant Magnetoresistance in Ni-Fe/Cu Multilayers Formed by Ion Beam Sputtering**. *IEEE T. Magn.*, **28**, 2668-2670 (1992).

- [95] Th. Speliotis, P. Athanasopoulos, M. Chatzichristidi e D. Niarchos. **Tailoring exchange bias in magnetic nanostructures**. *Microelectron. Eng.*, **86**, 1063-1066 (2009).
- [96] S. Queste, S. Dubourg, O. Acher, J.-C. Soret, K.-U. Barholz e R. Mattheis. **Microwave permeability study for antiferromagnet thickness dependence on exchange bias field in NiFe/IrMn layers**. *J. Magn. Magn. Mater.*, **288**, 60-65 (2005).
- [97] T. Pokhil, S. Mao, e A. Mack. **Study of exchange anisotropy in NiFe/NiMn and NiFe/IrMn exchange coupled films**. *J. Appl. Phys.*, **85**, 4916-4918 (1999).
- [98] A. M. Choukh. **Effect of Interface on Exchange Coupling in NiFe/FeMn System**. *IEEE T. Magn.*, **33**, 3676-3678 (1997).
- [99] T. Ambrose e C. L. Chien. **Dependence of exchange coupling on antiferromagnetic layer thickness in NiFe/CoO bilayers**. *J. Appl. Phys.*, **83**, 6822-6824 (1998).
- [100] M. F. Toney, C. Tsang e J. K. Howard. **Thermal annealing study of exchangebiased NiFeFeMn films**. *J. Appl. Phys.*, **70**, 6227-6229 (1991).
- [101] J. X. Shen e M. T. Kief. **Exchange coupling between NiO and NiFe thin film**. *J. Appl. Phys.*, **79**, 5008-5010 (1996).
- [102] G. Anderson, Y. Huai, L. Miloslawsky. **CoFe/IrMn exchange biased top, bottom, and dual spin valves**. *J. Appl. Phys.*, **87**, 6989-6991 (2000).
- [103] S. Y. Yoon, D. M. Jeon, D. H. Lee, Y. S. Kim, H. K. Baek e S. J. Suh. **Exchange coupling field and blocking temperature of Mn-Ir/NiFe top/bottom bilayers with different stacking sequences and buffer layers**. *J. Korean Phys. Soc.*, **38**, 388-391 (2001).
- [104] T. C. Schulthess e W. H. Butler. **Consequences of Spin-Flop Coupling in Exchange Biased Films**. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 4516-4519 (1998).
- [105] D. V. Dimitrov, S. Zhang, J. Q. Xiao, G. C. Hadjipanayis e C. Prados. **Effect of exchange interactions at antiferromagnetic/ferromagnetic interfaces on exchange bias and coercivity**. *Phys. Rev. B*, **58**, 12090-12094 (1998).
- [106] C. Leighton, M. R. Fitzsimmons, A. Hoffmann, J. Dura, C. F. Majkrzak, M. S. Lund, e Ivan K. Schuller. **Thickness-dependent coercive mechanisms in exchange-biased bilayers**. *Phys. Rev. B*, **65**, 064403(1)-064403(7) (2002).
- [107] M. Ali, C. H. Marrows, M. Al-Jawad, B. J. Hickey, A. Misra, U. Nowak e K. D. Usadel. **Antiferromagnetic layer thickness dependence of the IrMn/Co exchange-bias system**. *Phys. Rev. B*, **68**, 214420(1)-214420(7) (2003).
- [108] V. P. Nascimento, E. Baggio Saitovich, F. Pelegrini, L.C. Figueiredo, A. Biondo e E. C. Passamani. **Ferromagnetic resonance study of the exchange bias field in NiFe/FeMn/NiFe trilayers**. *J. Appl. Phys.*, **99**, 08C108(1)-08C108(3) (2006).

- [109] S. J. Yuan, K. Xu, L. M. Yu, S. X. Cao, C. Jing e J. C. Zhang. **Ferromagnetic resonance investigation in as-prepared NiFe/FeMn/NiFe trilayer**. J. Appl. Phys., **101**, 113915(1)-113915(5) (2007).
- [110] Young-Woo Lee, S. Hong, C. Kim e Chong-Oh Kim. **Asymmetric exchange bias in NiFe/FeMn/NiFe multilayer films**. J. Magn. Magn. Mater., **272-276**, e943-e944 (2004).
- [111] V. P. Nascimento, E. C. Passamani, A. D. Alvarenga, F. Pelegrini, A. Biondo e E. Baggio Saitovich. **Influence of the roughness on the exchange bias effect of NiFe/FeMn/NiFe trilayers**. J. Magn. Magn. Mater., **320**, e272-e274 (2008).
- [112] J-S Lee, C-C Kao, H. Jang, K-T Ko, J-H Park, K. Rhie e J-Y Kim. **Uncompensated spins in trilayer CoFe/IrMn/NiFe exchange bias: soft x-ray resonant magnetic scattering study**. J. Phys.: Condens. Matter, **23**, 256001(1)-256001(5) (2011).
- [113] F. M. Penning. **Coating by cathode disintegration**. United States Patent Office, Dezembro, (1935).
- [114] P. S. Moscon. **Efeitos magnetoelásticos observados por espectroscopia Mössbauer em tricamadas de Al/amorfos magnéticos/Al**. Dissertação (Mestrado em Física) - Universidade Federal do Espírito Santo. Espírito Santo. 2006.
- [115] R. Hübler. **Revestimentos protetores com filmes finos de TiN e multicamadas de Ti/TiN**. Tese (Doutorado - Instituto Militar de Engenharia. Porto Alegre. 1994.
- [116] A. Mello de Paula Silva. **Instrumentação para produção e caracterização de filmes finos nanoestruturados**. Dissertação(Mestrado) - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas (CBPF). Rio de Janeiro. 2002.
- [117] B. D. Cullity. **Elements of X-ray Diffraction**. Addison-Wesley Pub. Co., Inc., United States of America, 1956.
- [118] A. Guinier. **X-Ray Diffraction: In Crystals, Imperfect Crystals, and Amorphous Bodies**. Dover Publication, United States of America, 1994.
- [119] B. E. Warren. **X-ray Diffraction**. Dover Publication, United States of America, 1990.
- [120] C. Kittel. **Physical Theory of Ferromagnetic Domains**. Rev. Mod. Phys., **21**, 541-583 (1949).
- [121] A. van der Lee. **Grazing incidence specular reflectivity: theory, experiment, and applications**. Sol. State Sci., **2**, 257-278 (2000).
- [122] E. E. Fullerton, I. K. Schuller, H. Vanderstraeten e Y. Bruynseraede. **Structural refinement of superlattices from x-ray diffraction**. Phys. Rev. B, **45**, 9292-9310 (1992).

- [123] L. G. Parratt. **Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays**. Phys. Rev., **95**, 359-369 (1954).
- [124] A. Y. Takeuchi. **Técnicas de Medidas Magnéticas**. 1<sup>a</sup> edição. Rio de Janeiro, Brasil: Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas-CBPF, 2010.
- [125] S. Foner. **Versatile and Sensitive Vibrating Sample Magnetometer**. Rev. Sci. Instrum., **30**, 548-557 (1959).
- [126] S. Foner. **The vibrating sample magnetometer: Experiences of a volunteer (invited)**. J. Appl. Phys., **79**, 4740-4745 (1996).
- [127] L. C. C. M. Nagamine, J. Geshev, T. Menegotto, A. A. R. Fernandes, A. Biondo e E. B. Saitovitch. **Ferromagnetic resonance and magnetization studies in exchange-coupled NiFe/Cu/NiFe structures**. J. Appl. Phys., **288**, 205-213 (2005).
- [128] J. Lindner e K. Baberschke. **Ferromagnetic resonance in coupled ultrathin films**. J. Phys.: Condens. Matter, **15**, S465-S478 (2003).
- [129] P. Pouloupoulos e K. Baberschke. **Magnetism in thin films**. J. Phys.: Condens. Matter, **11**, 9495-9515 (1999).
- [130] V. K. Arkad'yev. . J. Russ. Phys. Chem. Soc. Phys., **44**, 165 (1912).
- [131] Ya. G. Dorfman. . Zs. F. Phys., **17**, 98 (1923).
- [132] J. H. E. Griffiths. **Anomalous High-frequency Resistance of Ferromagnetic Metals**. Nature, **158**, 670-671 (1946).
- [133] W. A. Yager e R. M. Bozorth. **Ferromagnetic Resonance at Microwave Frequencies**. Phys. Rev., **72**, 80-81 (1947).
- [134] C. Kittel. **On the Theory of Ferromagnetic Resonance Absorption**. Phys. Rev., **73**, 155-161 (1948).
- [135] C. Kittel. **Interpretation of Anomalous Larmor Frequencies in Ferromagnetic Resonance Experiment**. Phys. Rev., **71**, 270-271 (1947).
- [136] M. Farle. **Ferromagnetic resonance of ultrathin metallic layers**. Rep. Prog. Phys., **61**, 755-826 (1998).
- [137] S. V. Vonsovskii. **Ferromagnetic Resonance**. 1<sup>a</sup> edição. Oxford: Pergamon Press, 1966.
- [138] L. D. Landau e E. M. Lifshitz. **On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies**. Phys. Z. Soviet Union, **8**, 153-169 (1935).
- [139] K. Baberschke. **Chap. Investigation of Ultrathin Ferromagnetic Films by Magnetic Resonance, p. 1627**. Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials, Vol. 3. John Wiley & Sons, 2007.

- [140] G. V. Skrotski, L. V. Kurbatov. **Phenomenological Theory of Ferromagnetic Resonance**. 1<sup>a</sup> edição. Oxford: Pergamon Press, 1966.
- [141] J. A. Romano. **Ressonância Ferromagnética aplicada ao estudo da anisotropia magnética em multicamadas de Co/Pd**. Tese (Doutorado) - Universidade Estadual de Campinas. 1997.
- [142] W. E. A. Rodriguez. **Anisotropia magnética e acoplamento de troca em multicamadas de metais de transição**. Tese (Doutorado em Física) - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas (CBPF). Rio de Janeiro. 2007.
- [143] B. M. Barnes, Z. Li, D. E. Savage, E. Wiedemann e M. G. Lagally. **Quantifying the thickness of magnetically active layers using x-ray resonant magnetic scattering**. *J. Appl. Phys.*, **95**, 6654-6656 (2004).
- [144] C. Kao, J. B. Hastings, E. D. Johnson, D. P. Siddons e G. C. Smith. **Magnetic-Resonance Exchange Scattering at the Iron  $L_{II}$  and  $L_{III}$  Edges**. *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 373-376 (1990).
- [145] C.-C. Kao, C. T. Chen, E. D. Johnson, J. B. Hastings, H. J. Lin, G. H. Ho, G. Meigs, J. -M. Brot, S. L. Hulbert, Y. U. Idzerda e C. Vettier. **Dichroic interference effects in circularly polarized soft-x-ray resonant magnetic scattering**. *Phys. Rev. B*, **50**, 9599-9602 (1994).
- [146] M. Sacchi, J. Vogel e S. Iacobucci. **Magnetic effects on the resonant X-ray reflectivity: circular dichroism at the 2p edges of Ni**. *J. Magn. Magn. Mater.*, **147**, L11-L15 (1995).
- [147] M. Sacchi e A. Mirone. **Resonant reflectivity from a Ni(110) crystal: Magnetic effects at the Ni 2p edges using linearly and circularly polarized photons**. *Phys. Rev. B*, **57**, 8408-8415 (1998).
- [148] J. M. Tonnerre, L. Sève, D. Raoux, G. Soullié, B. Rodmacq e P. Wolfers. **Soft X-Ray Resonant Magnetic Scattering from a Magnetically Coupled Ag/Ni Multilayer**. *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 740-743 (1995).
- [149] P. Carra e M. Altarelli. **Dichroism in the x-ray absorption spectra of magnetically ordered systems**. *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 1286-1288 (1990).
- [150] J. D. Jackson. **Classical Eletrodynamics**. 2da. edição. John Wiley e Sons, Inc., 1975.
- [151] F. C. Vicentin. **Contribuição ao estudo de terras-raras e metais de transição por técnicas espectroscópicas de raios X moles usando luz síncrotron**. Tese (Doutorado) - Universidade Estadual de Campinas Laboratório Nacional de Luz Síncrotron. 1999.
- [152] J. E. Prieto, F. Heigl, O. Krupin, G. Kaindl e K. Starke. **Magneto-optics of Gd and Tb in the soft x-ray resonance regions**. *Phys. Rev. B*, **68**, 134453(1)-134453(8) (2003).

- [153] J. L. Erskine e E. A. Stern. **Calculation of the  $M_{23}$  magneto-optical absorption spectrum of ferromagnetic nickel**. Phys. Rev. B, **12**, 5016-5024 (1975).
- [154] B. T. Thole, G. van der Laan e G. A. Sawatzky. **Strong Magnetic Dichroism Predicted in the  $M_{4,5}$  X-Ray Absorption Spectra of Magnetic Rare-Earth Material**. Phys. Rev. Lett., **55**, 2086-2088 (1985).
- [155] G. van der Laan, B. T. Thole, G. A. Sawatzky, J. B. Goedkoop, J. C. Fuggle, J. Esteve, R. Karnatak, J. P. Remeika e H. A. Dabkowska. **Experimental proof of magnetic x-ray dichroism**. Phys. Rev. B, **34**, 6529-6531 (1986).
- [156] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette e G. van der Laan. **X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization**. Phys. Rev. Lett., **68**, 1943-1946 (1992).
- [157] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm e G. Materlik. **Absorption of circularly polarized x rays in iron**. Phys. Rev. Lett., **58**, 737-740 (1987).
- [158] O. Eriksson, B. Johansson, R. C. Albers, A. M. Boring e M. S. S. Brooks. **Orbital magnetism in Fe, Co, and Ni**. Phys. Rev. B, **42**, 2707-2710 (1990).
- [159] P. Söderlind, O. Eriksson, B. Johansson, R. C. Albers e A. M. Boring. **Spin and orbital magnetism in Fe-Co and Co-Ni alloys**. Phys. Rev. B, **45**, 12911-12916 (1992).
- [160] J. Stöhr. **Exploring the microscopic origin of magnetic anisotropies with X ray magnetic circular dichroism XMCD spectroscopy**. J. Magn. Mater., **200**, 470-497 (1999).
- [161] H. Ebert, J. Stöhr, S. S. P. Parkin, M. Samant e A. Nilsson. **L-edge x-ray absorption in fcc and bcc Cu metal: Comparison of experimental and first-principles theoretical results**. Phys. Rev. B, **53**, 16067-16073 (1996).
- [162] F. Wilhelm. **Magnetic Properties of Ultrathin Films, Coupled Trilayers and 3d/5d Multilayers studied by X-ray Magnetic Circular Dichroism**. Eingereichte Dissertation - Freien Universität Berlin. 2000.
- [163] F. Garcia. **Estudo da Instabilidade Magnética do Co por Dicroísmo Circular Magnético de Raios-X nos Compostos  $RCo_x$  ( $x=2$  ou  $3$ )**. Tese (Doutorado em Física) - Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas (CBPF). Rio de Janeiro. 2000.
- [164] C. T. Chen, Y. U. Idzerda, H. -J. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. H. Ho, E. Pellegrin e F. Sette. **Experimental Confirmation of the X-Ray Magnetic Circular Dichroism Sum Rules for Iron and Cobalt**. Phys. Rev. Lett., **75**, 152-155 (1995).
- [165] P. Carra, B. Thole, M. Altarelli e X. Wang. **X-ray circular dichroism and local magnetic fields**. Phys. Rev. Lett., **70**, 694-697 (1993).

- [166] Mao-Min Chen, C. Tsang e N. Gharsallah. **Exchange Bias enhancement through interdiffusion of NiFe/FeMn/metal films**. IEEE T. Magn., **29**, 4077-4079 (1993).
- [167] H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, E. Arenholz, S. Maat, A. T. Young, M. Carey e J. Stöhr. **Correlation between Exchange Bias and Pinned Interfacial Spins**. Phys. Rev. Lett., **91**, 017203(1)-017203(4) (2003).
- [168] C. T. Chen, F. Sette, Y. Ma e S. Modesti. **Soft-x-ray magnetic circular dichroism at the  $L_{2,3}$  edges of nickel**. Phys. Rev. B, **42**, 7262-7265 (1990).
- [169] T. Koide, T. Shidara, H. Fukutani, K. Yamaguchi, A. Fujimori e S. Kimura. **Strong magnetic circular dichroism at the  $M_{2,3}$  edges in ferromagnetic Ni and ferrimagnetic  $Fe_3O_4$** . Phys. Rev. B, **44**, 4697-4700 (1991).
- [170] L. G. N. Coelho. **Espalhamento ressonante de raios X aplicado ao estudo de nano-estruturas**. Tese (Doutorado) - Universidade Federal de Minas Gerais. 2008.
- [171] S. J. Blundell e J. A. C. Bland. **Polarized neutron reflection as a probe of magnetic films and multilayers**. Phys. Rev. B, **46**, 3391-3400 (1992).
- [172] J. Zak, E. R. Moog, C. Liu e S. D. Bader. **Magneto-optics of multilayers with arbitrary magnetization directions**. Phys. Rev. B, **43**, 6423-6429 (1991).
- [173] D. Spiga, A. Mirone, C. Ferrero, V. Cotroneo, G. Pareschi, M. Del Rio e D. Vernani. **Fitting X-ray multilayer reflectivities by means of the PPM code**. Advances in Computational Methods for X-Ray and Neutron Optics, Vol. 5536, Ed. M. Del Rio (Bellingham: Spie-Int. Soc. Optical Engineering) p. 71-80, 2004. <https://forge.epn-campus.eu/projects/ppm/wiki>.
- [174] H. Xi, R. M. White, Z. Gao e S. Mao. **Antiferromagnetic thickness dependence of blocking temperature in exchange coupled polycrystalline ferromagnet/antiferromagnet bilayers**. J. Appl. Phys., **92**, 4828- (2002).
- [175] S. Brück, J. Sort, V. Baltz, S. Suriñach, J. S. Muñoz, B. Dieny, M. D. Baró e J. Nogués. **Exploiting Length Scales of Exchange-Bias Systems to Fully Tailor Double-Shifted Hysteresis Loops**. Adv. Mater., **17**, 2978-2983 (2005).
- [176] E. Jiménez, J. Camarero, J. Sort, J. Nogués, N. Mikuszeit, J. M. García-Martín, A. Hoffmann, B. Dieny e R. Miranda. **Emergence of noncollinear anisotropies from interfacial magnetic frustration in exchange-bias systems**. Phys. Rev. B, **80**, 014415(1)-014415(7) (2009).
- [177] J. McCord, C. Hamann, R. Schäfer e L. Schultz. **Nonlinear exchange coupling and magnetic domain asymmetry in ferromagnetic/IrMn thin films**. Phys. Rev. B, **78**, 094419(1)-094419(8) (2008).

- [178] J. Nogués, S. Stepanow, A. Bollero, J. Sort, B. Dieny, F. Nolting e P. Gambardella. **Simultaneous in-plane and out-of-plane exchange bias using a single antiferromagnetic layer resolved by x-ray magnetic circular dichroism.** Appl. Phys. Lett., **95**, 152515(1)-152515(3) (2009).
- [179] J. C. Slonczewski. **Fluctuation Mechanism for Biquadratic Exchange Coupling in Magnetic Multilayers.** Phys. Rev. Lett., **67**, 3172-3175 (1991).
- [180] M. Tafur, M. A. Sousa, F. Pelegrini, V. P. Nascimento e E. Baggio-Saitovitch. **Ferromagnetic resonance study of dual exchange bias field behavior in NiFe/IrMn/Co trilayers.** Appl. Phys. Lett., **102**, 062402(1)-062402(5) (2013).
- [181] Shl-Ming Zhou, Llang-Yao Chen, Yi Su, You-Hua Qian, Zhi-Hong Jiang, De-Fang Shen. **Ferromagnetic resonance study of Co/Pt multilayers.** J. Magn. Magn. Mater., **132**, 219-222 (1994).
- [182] W. Alayo, M. A. Sousa, F. Pelegrini e E. B. Saitovitch. **Analysis of the weak coupling of the IrMn/Co/Ru/NiFe structures by ferromagnetic resonance.** J. Appl. Phys., **109**, 083917(1)-083917(5) (2011).
- [183] W. Alayo, E. B. Saitovitch, F. Pelegrini e V. P. Nascimento. **Oscillations of the ferromagnetic resonance linewidth and magnetic phases in Co/Ru superlattices.** Phys. Rev. B, **78**, 134417(1)-134417(8) (2008).

## Apêndice A

### Medidas de Magnetização

**A-1** O estudo da anisotropia planar do  $H_{FC}$  através de medidas de obtenção de curvas  $M(H)$  com campo aplicado em diferentes direções (no plano) durante o Protocolo 2, apresentam-se para as amostras da Série-B ( $t_{IrMn}^{Ta} = 12$  e  $15$  nm). A rotação da amostra relativo à direção do campo  $H_{FC}$ , levou a 4 curvas  $M(H)$  distintas (ângulos de rotação  $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $70^\circ$  e  $90^\circ$ ), como observam-se na Fig.(A.1). Conseqüentemente, as contribuições das camadas de Co e NiFe para estes laços  $M(H)$  não permitem a separação independente das contribuições das camadas de NiFe e Co (mais detalhe na Sec.4.2).

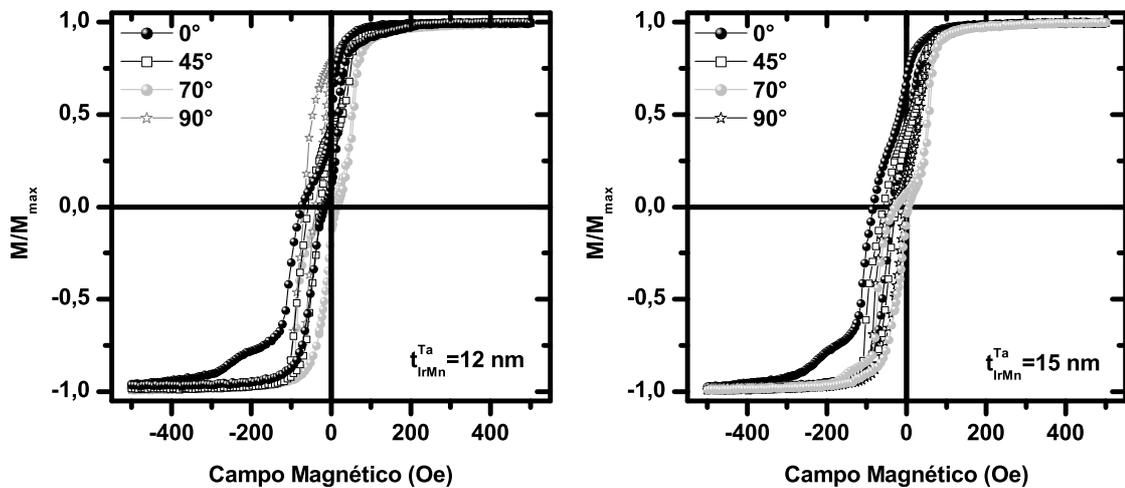


Figura A.1: Laços de histereses normalizados tomados à temperatura ambiente para as amostras com espessuras  $t_{IrMn}^{Ta} = 12$  e  $15$  nm após ser resfriados com  $H_{FC} = 10$  Oe. O  $H_{FC}$  para cada laço está a  $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $70^\circ$  e  $90^\circ$  com relação à direção  $[110]$  do substrato de Si.

## Apêndice B

# Medidas de Ressonância Ferromagnética

**B-1** Dispõem-se nas Figs.(B.1, B.2, B.3, B.4, B.5, B.6)os espectros normalizados (ao valor máximo) das amostras  $t_{IrMn}^{Cu} = 3, 5, 6, 7, 8$  e  $12$  nm, obtidos varrendo o campo magnético na configuração para fora do plano da amostra ( $H_{//}$ ) e a posição perpendicular ( $H_{\perp}$ ). O fato do modo do Co passar pelo modo de NiFe para medidas na configuração fora do plano e para o ângulo de varredura ( $90^{\circ}-\alpha_H$ ), indica que a energia de acoplamento *Exchange Spring* entre as camadas FM's é menor que as energias de desmagnetização das camadas.

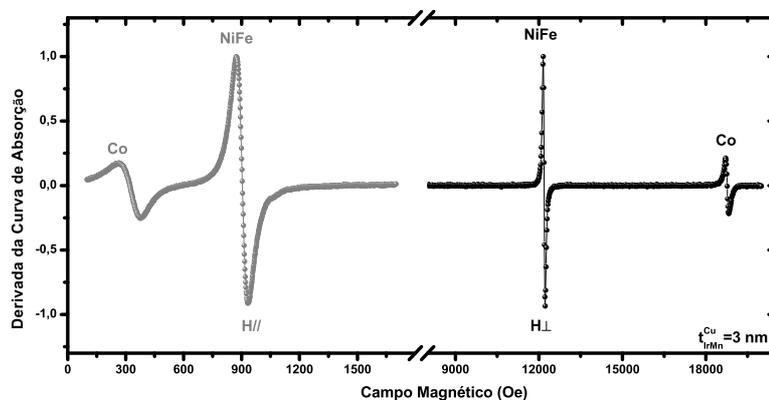


Figura B.1: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Cu}=3$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

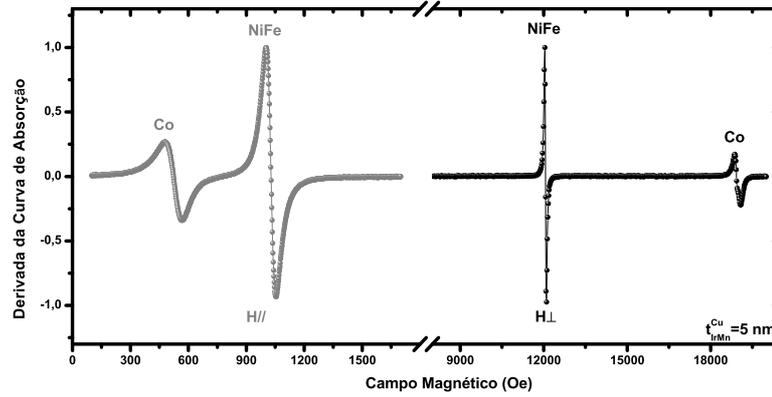


Figura B.2: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Cu}=5$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

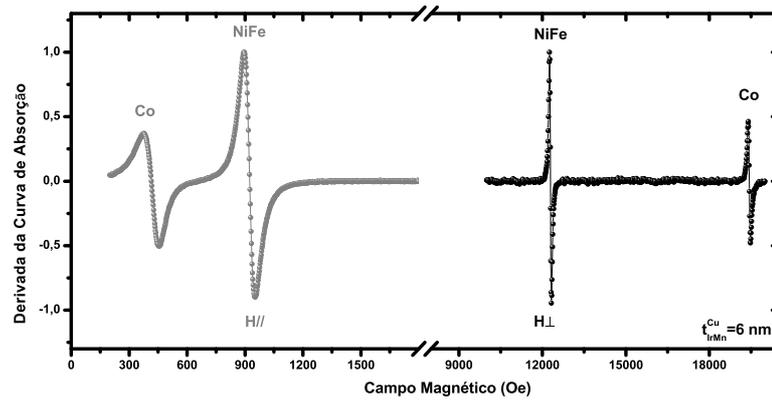


Figura B.3: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Cu}=6$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

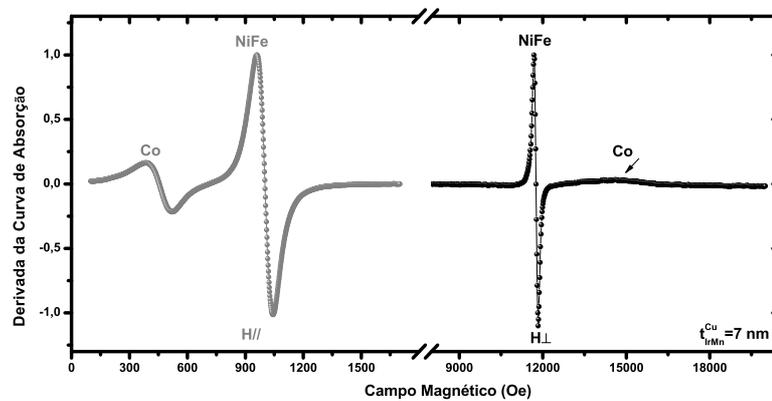


Figura B.4: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Cu}=7$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

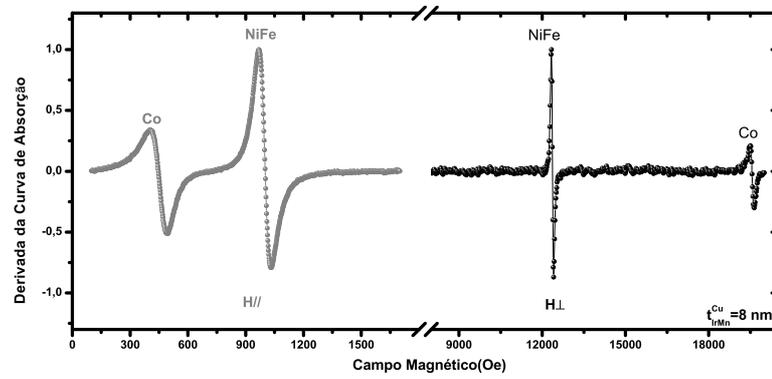


Figura B.5: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 8$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

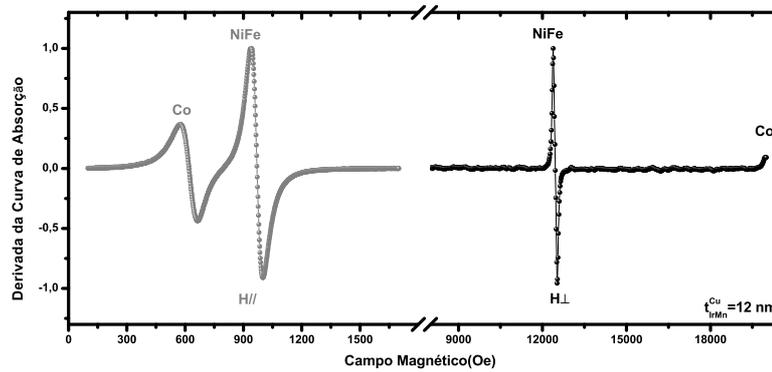


Figura B.6: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Cu} = 12$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

**B-2** Dispõem-se nas Figs.(B.7, B.8, B.9, B.10, B.11, B.12, B.13) os espectros normalizados (ao valor máximo) das amostras  $t_{IrMn}^{Ta} = 4, 6, 8, 20, 24$  e  $30$  nm, obtidos varrendo o campo magnético na configuração para fora do plano da amostra ( $H_{//}$ ) e a posição perpendicular ( $H_{\perp}$ ). O fato do modo do Co passar pelo modo de NiFe para medidas na configuração fora do plano e para o ângulo de varredura ( $90^{\circ}-\alpha_H$ ), indica que a energia de acoplamento *Exchange Spring* entre as camadas FM's é menor que as energias de desmagnetização das camadas.

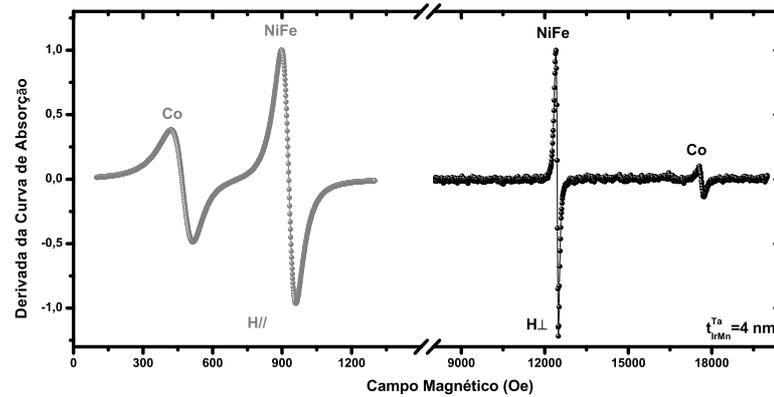


Figura B.7: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 4$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

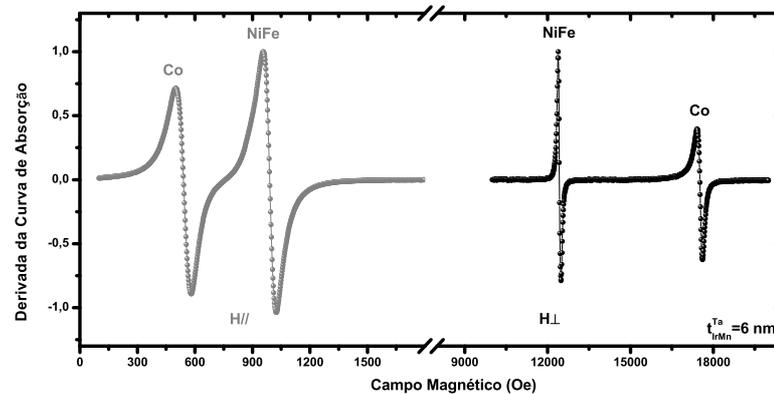


Figura B.8: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 6$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

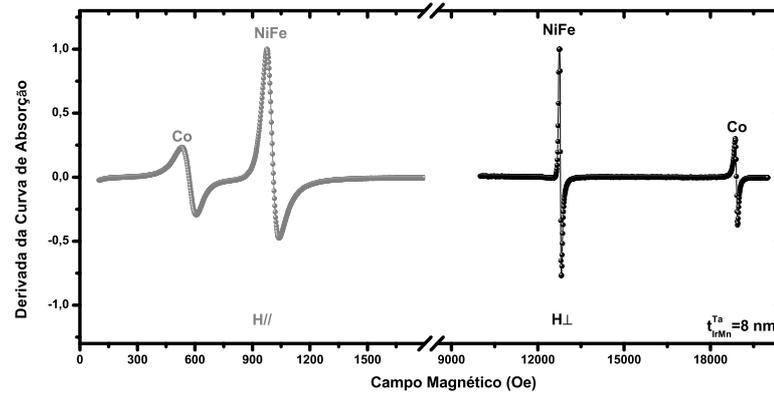


Figura B.9: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Ta}=8$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

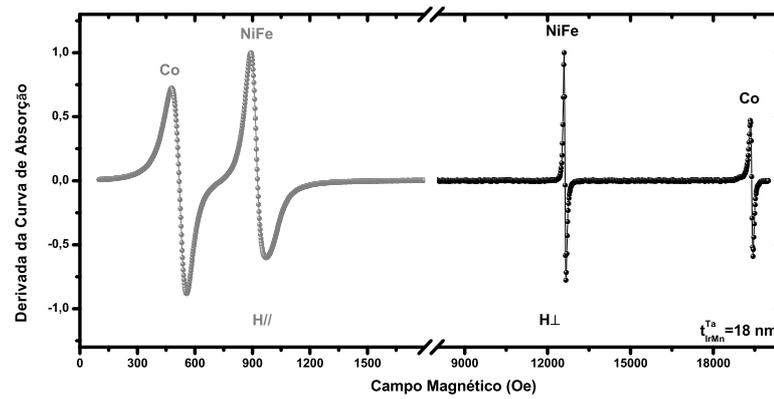


Figura B.10: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Ta}=18$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

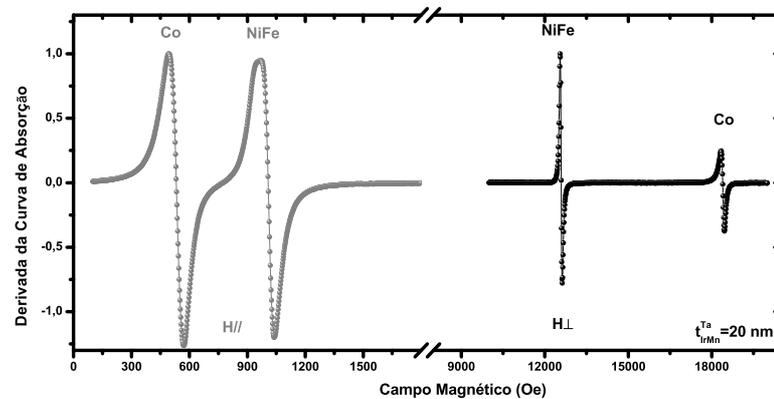


Figura B.11: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Ta}=20$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

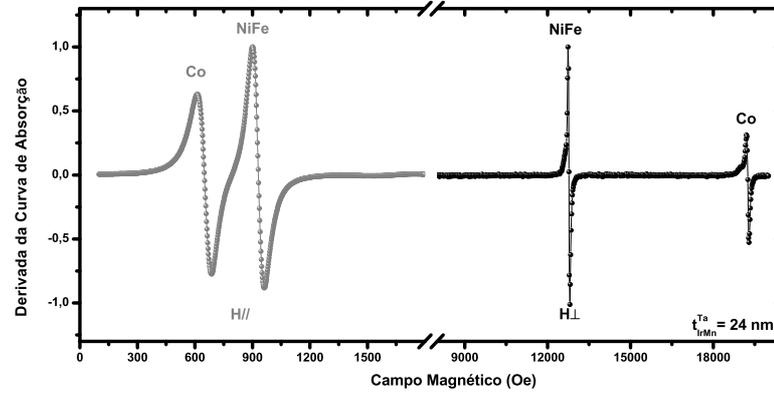


Figura B.12: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 24$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

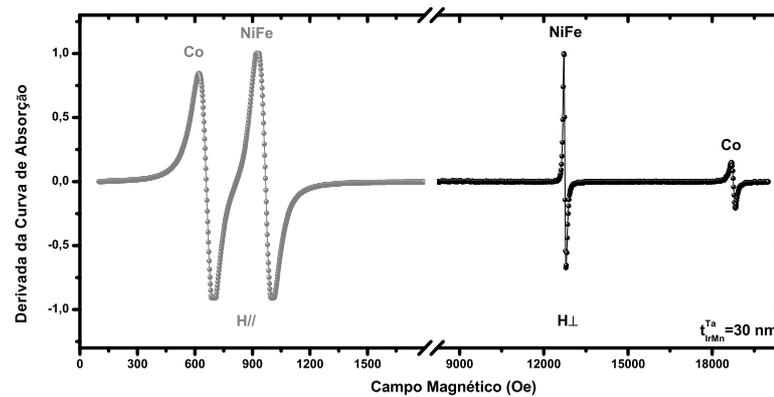


Figura B.13: Espectros de FMR da amostra  $t_{IrMn}^{Ta} = 30$  nm, obtidos à temperatura ambiente nas configurações no plano e fora do plano, extraídos durante a varredura fora do plano do filme.

**B-3** Nas Figs.(B.14, B.15, B.16), visualizam-se os resultados das dependências angulares planares do  $H_{res}$  para as tricamadas da Série-A,  $t_{IrMn}^{Cu} = 5, 6$  e  $12$  nm. Observam-se delas dois conjuntos de dados, correspondentes a cada modo de ressonância que aparece no espectro de FMR: círculos pretos representam os dados para o modo do Co e círculos cinza, os dados para o modo de NiFe. Observa-se que as oscilações características das varreduras dos modos encontram-se desfasadas, de forma que é possível determinar o ângulo de acoplamento entre as magnetizações das camadas FM's.

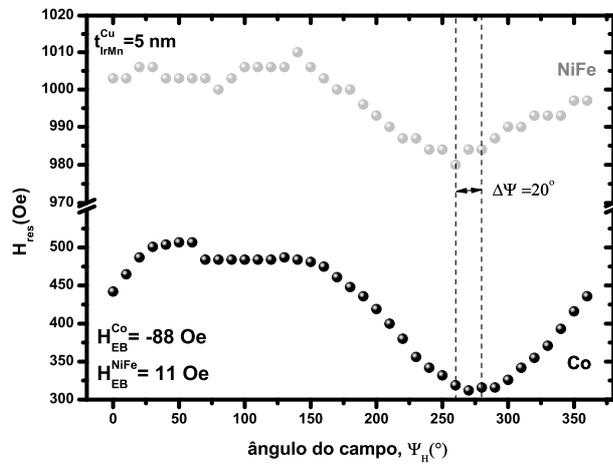


Figura B.14: Dependência angular de  $H_{res}(\Psi_H)$  para a tricamada  $t_{IrMn}^{Cu}=5$  nm. Define-se  $\Delta\Psi$  como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  estimados por FMR.

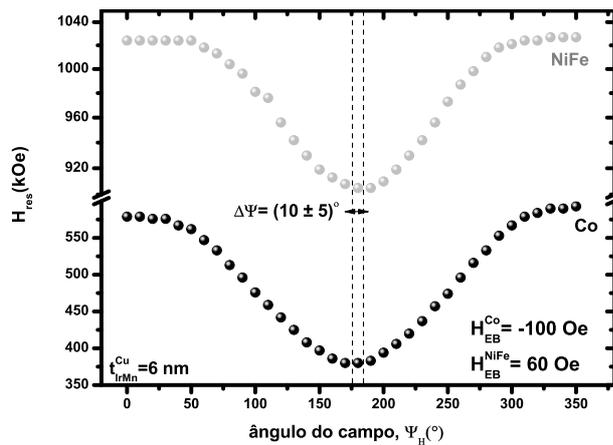


Figura B.15: Dependência angular de  $H_{res}(\Psi_H)$  para a tricamada  $t_{IrMn}^{Cu}=6$  nm. Define-se  $\Delta\Psi$  como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  estimados por FMR.

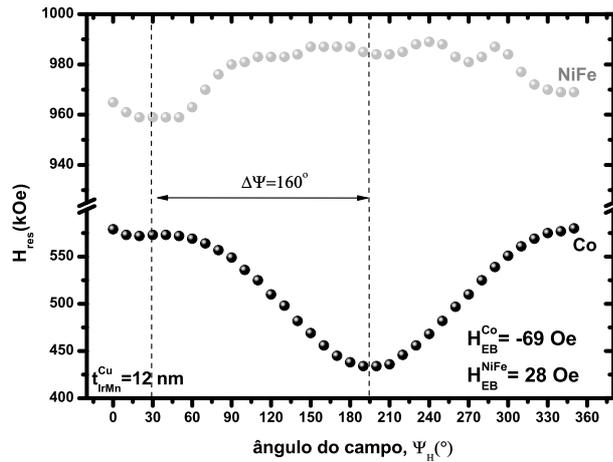


Figura B.16: Dependência angular de  $H_{res}(\Psi_H)$  para a tricatada  $t_{IrMn}^{Cu}=12$  nm. Define-se  $\Delta\Psi$  como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  estimados por FMR.

**B-4** Nas Figs.(B.17, B.18, B.19, B.20), visualizam-se os resultados das dependências angulares planares do  $H_{res}$  para as tricatadas da Série-B,  $t_{IrMn}^{Ta} = 6, 8, 24$  e  $30$  nm. Observam-se delas dois conjuntos de dados, correspondentes a cada modo de ressonância que aparece no espectro de FMR: círculos pretos representam os dados para o modo do Co e círculos cinza, os dados para o modo de NiFe. Observa-se que as oscilações características das varreduras dos modos encontram-se desfasadas, de forma que é possível determinar o ângulo de acoplamento entre as magnetizações das camadas FM's.

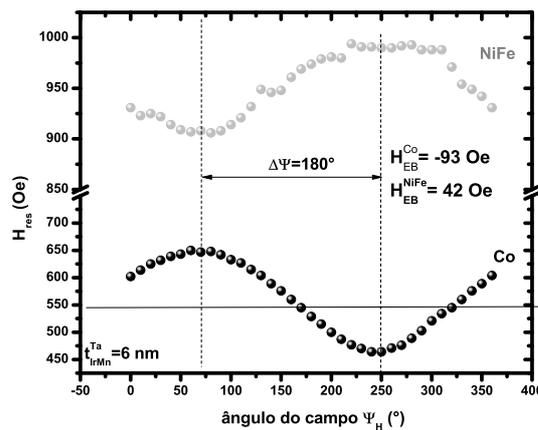


Figura B.17: Dependência angular de  $H_{res}(\Psi_H)$  para a tricatada  $t_{IrMn}^{Ta}=6$  nm. Define-se  $\Delta\Psi$  como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  estimados por FMR.

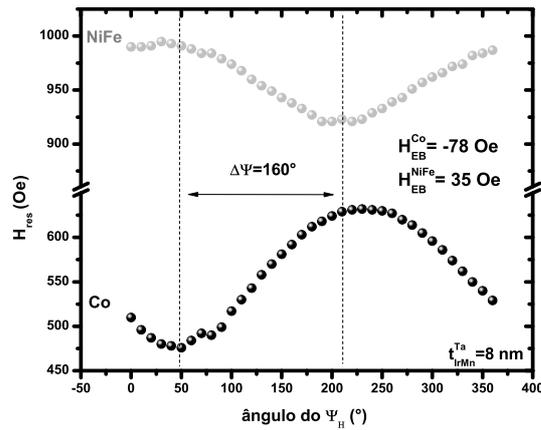


Figura B.18: Dependência angular de  $H_{res}(\Psi_H)$  para a tricamada  $t_{IrMn}^{Ta}=8$  nm. Define-se  $\Delta\Psi$  como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  estimados por FMR.

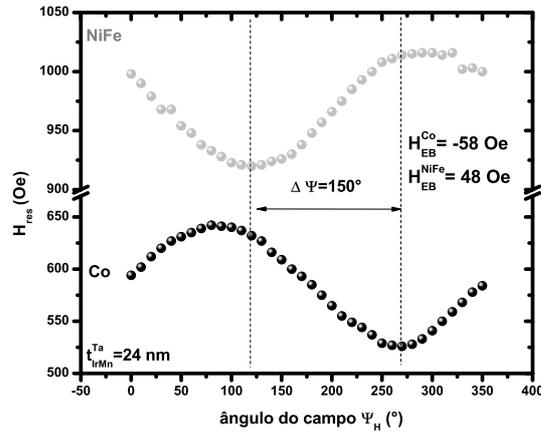


Figura B.19: Dependência angular de  $H_{res}(\Psi_H)$  para a tricamada  $t_{IrMn}^{Ta}=24$  nm. Define-se  $\Delta\Psi$  como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  estimados por FMR.

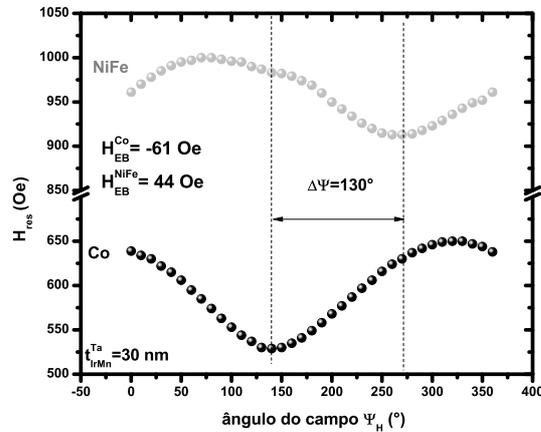


Figura B.20: Dependência angular de  $H_{res}(\Psi_H)$  para a tricamada  $t_{IrMn}^{Ta}=30$  nm. Define-se  $\Delta\Psi$  como sendo o ângulo de acoplamento entre direções das magnetizações das camadas de NiFe e Co. Apresentam-se também os valores de  $H_{EB}^{NiFe}$  e  $H_{EB}^{Co}$  estimados por FMR.