

Universidade Federal do Rio Grande do Sul
Instituto de Física
Programa de Pós-Graduação em Física

**Influência das interfaces sobre as propriedades
estruturais e magnéticas de filmes finos que
apresentam *Recoil-Curve Overshoot***

*Influence of the interfaces on the structural and magnetic properties of thin films that
present Recoil-Curve Overshoot*

Lucas Felipe Santos de Azeredo

Orientador: Dr. Antonio Marcos Helgueira de Andrade

Dissertação de Mestrado

Porto Alegre, 22 de fevereiro de 2022

Lucas Felipe Santos de Azeredo

**Influência das interfaces sobre as propriedades estruturais
e magnéticas de filmes finos que apresentam
*Recoil-Curve Overshoot***

*Influence of the interfaces on the structural and magnetic properties of thin films that
present Recoil-Curve Overshoot*

Dissertação de Mestrado apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Instituto de Física da UFRGS (área de concentração: matéria condensada), como parte dos requisitos necessários para a obtenção do Título de Mestre em Física.

Universidade Federal do Rio Grande do Sul – UFRGS

Instituto de Física

Programa de Pós-Graduação em Física

Orientador: Dr. Antonio Marcos Helgueira de Andrade

Porto Alegre-RS

22 de fevereiro de 2022

Lucas Felipe Santos de Azeredo

Influência das interfaces sobre as propriedades estruturais e magnéticas de filmes finos que apresentam *Recoil-Curve Overshoot*
Influence of the interfaces on the structural and magnetic properties of thin films that present Recoil-Curve Overshoot/ Lucas Felipe Santos de Azeredo. – Porto Alegre-RS, 22 de fevereiro de 2022-

63 p. : il. (algumas color.) ; 30 cm.

Orientador: Dr. Antonio Marcos Helgueira de Andrade

Dissertação (Mestrado) – Universidade Federal do Rio Grande do Sul – UFRGS
Instituto de Física
Programa de Pós-Graduação em Física, 22 de fevereiro de 2022.

1. Palavra-chave1. 2. Palavra-chave2. I. Orientador. II. Universidade xxx. III. Faculdade de xxx. IV. Título

CDU 02:141:005.7

Agradecimentos

Agradeço primeiramente a Deus, criador dessa fantástica natureza, por não me deixar sozinho durante toda esta jornada.

Ao meu orientador, Dr. Antonio Marcos H. de Andrade, pelo compartilhamento de conhecimento, pela paciência e ajuda nesse período e pelo exemplo de grande profissional, comprometido com o serviço público.

A todos integrantes do LAM, apesar do pouco convívio devido o período de pandemia, em particular ao professor Julian P. Geshev pelos ensinamentos passados.

A toda equipe técnica e administrativa do IF-UFRGS, agradeço na pessoa da Lianne Thier Ruschel, por todo auxílio na vinda e durante o período no instituto.

Ao amigo do PPGFis Julian, pelos cafés e inúmeras discussões sobre física.

Aos grandes amigos que a vida me deu, estes que compartilham comigo momentos felizes, alegres, de tristeza e de angústia. Em especial: Gustavo, Wesley, Lalcione, Lecione e Fábio e família.

A toda a minha família, em especial meus pais Marcio e Geomarcia, minhas avós Maria Lúcia e Cleuza e meu irmão Paulo Henrique. Estes são responsáveis pela minha formação como pessoa, motivando e incentivando na busca pelos meus sonhos e fornecem o alicerce necessário à caminhada.

À Capes pelo apoio financeiro para realização deste trabalho de pesquisa.

*“Pedras no caminho?
Eu guardo todas.
Um dia vou construir um castelo.
(Fernando Pessoa)*

Resumo

Neste trabalho, utilizamos a técnica de desbastamento iônico para produção de filmes finos ferromagnéticos policristalinos de cobalto, níquel com diferentes espessuras crescidos sobre substrato de Si(100) com óxido natural de silício (SiO_2) em sua superfície. Estas amostras foram produzidas com o intuito de estudar a influência das propriedades estruturais e de anisotropias nas curvas de magnetização, ciclos de histereses, laços menores de histereses e curvas de remanência. Como resultados observamos que, para orientações angulares específicas entre o campo magnético aplicado H e o eixo de fácil magnetização das camadas ferromagnéticas, alguns laços menores de histerese (*minor loops*) tornam-se externos ao ciclo principal de histerese; este fenômeno foi denominado *Recoil-Curve Overshoot* (RCO) [1]. Para estas curvas, maiores valores de campo coercivo e magnetização remanente podem ser observados, resultando em um produto de energia $B \times H$ maior que do ciclo principal de histerese. Também é apresentada uma discussão sobre as causas deste fenômeno, sendo atribuídas às interações magnéticas e dispersões de anisotropia.

Palavras chaves: Filmes finos. Ferromagnetismo. Ciclo de histerese. Laços menores.

Abstract

In this work we use the magnetron sputtering technique to produce polycrystalline ferromagnetic thin films of cobalt, nickel with different thicknesses, grown on Si(100) substrate with natural silicon oxide (SiO_2) on its surface. These samples were produced in order to study the influence of structural and anisotropy properties on magnetization curves, hysteresis cycles, major and minor hysteresis loops and remanence curves. As a result we observe that, for specific angular orientations between the applied magnetic field H and the easy magnetization axis of the ferromagnetic layers, some minor hysteresis loops become external to the major hysteresis loop; this phenomenon was called Recoil-Curve Overshoot (RCO) [1]. For these curves, higher values of coercive field and remanent magnetization can be observe, resulting in an energy product $B \times H$ greater than the major hysteresis loop. A discussion about the cause of this phenomenon is also presented, being attributed to the magnetic interactions and anisotropy dispersions.

Keywords: Thin films. Ferromagnetism. Hysteresis cycle. Minor loops.

Lista de ilustrações

Figura 1 – Variação do inverso da susceptibilidade com a temperatura de um material diamagnético.	4
Figura 2 – Variação do inverso da susceptibilidade com a temperatura de um material paramagnético.	5
Figura 3 – Representação dos domínios magnéticos e as orientações dos momentos magnéticos dentro da estrutura de domínios de materiais ferromagnéticos com magnetização resultante: (a) nula e (b) diferente de zero.	6
Figura 4 – Representação dos domínios magnéticos e as orientações dos momentos magnéticos dentro da estrutura de domínios de materiais (a) antiferromagnéticos e (b) ferrimagnéticos.	7
Figura 5 – Variação do inverso da susceptibilidade com a temperatura para um material (a) ferromagnético e (b) antiferromagnético.	9
Figura 6 – Curvas características de $M \times H$ para diferentes classes de materiais magnéticos: a) paramagnéticos e antiferromagnéticos; b) diamagnéticos; c) ferromagnéticos e ferrimagnéticos.	10
Figura 7 – Ciclo de histerese, curva virgem e laço menor de histerese de um material ferromagnético.	11
Figura 8 – Curvas de magnetização para um monocristal de cobalto hexagonal para as direções cristalográficas [0001] e [10 $\hat{1}$ 0]	13
Figura 9 – Representação esquemática da anisotropia de forma. Em a) representação de H aplicado na direção y e em b) representação de H aplicado na direção x	15
Figura 10 – Desvios dos <i>Henkel Plots</i> em relação a reta calculada para sistema de mono-domínios magnéticos não interagentes com anisotropia uniaxial, para os casos cujo o estado desmagnetizado inicial é obtido por desmagnetização AC e DC respectivamente.	19
Figura 11 – Curvas de remanência obtidas para partículas de monodomínios por diferentes processos de desmagnetização.	20
Figura 12 – Desvios de δM obtidos para as curvas da Figura 11.	20
Figura 13 – Curvas idealizadas e utilizadas para derivar as relações entre o ciclo principal de histerese e a curva de recuo.	21
Figura 14 – Representação esquemática do <i>magnetron sputtering</i> instalado no LCN do IF-UFRGS.	24
Figura 15 – Representação da estrutura de camadas das amostras estudadas.	25
Figura 16 – Representação do difratômetro instalado no LCN do IF-UFRGS.	26
Figura 17 – Difração de raios X por um conjunto de planos atômicos	27

Figura 18 – Raios X incidentes sobre a superfície do filme sofrendo processos de refração e reflexão. Em seguida o feixe refratado é refletido na interface camada/substrato.	28
Figura 19 – Espectro de XRR usado para calibração da taxa de deposição do alvo de Ta sobre substrato de Si(100).	30
Figura 20 – Curva de ajuste do vetor de espalhamento em função da posição dos máximos das franjas de Kiessig, obtida para o espectro da Figura 19.	30
Figura 21 – Representação esquemática do VSM disponível no LAM do IF-UFRGS.	32
Figura 22 – Foto do porta-substratos magnético com $H = 2$ kOe, utilizado para deposição das amostras com campo magnético aplicado <i>in situ</i>	34
Figura 23 – Difração de raios X das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm). Na legenda o CH (ou SH) indica com (ou sem) H aplicado <i>in situ</i>	36
Figura 24 – Difração de raios X das amostras de Cr(t_{Cr} nm)/Co(t_{Co} nm)/Cr(t_{Cr} nm) com H aplicado <i>in situ</i>	37
Figura 25 – Difração de raios X das amostras de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado <i>in situ</i>	38
Figura 26 – Curvas de histerese para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$ da amostra de Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) fabricada sem H aplicado <i>in situ</i>	39
Figura 27 – Curvas de histerese para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$ das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm) fabricadas com H aplicado <i>in situ</i>	40
Figura 28 – Curvas de histerese para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$ das amostras de Cr(17 nm)/Co(t_{Co} nm)/Cr(17 nm) fabricadas com H aplicado <i>in situ</i>	41
Figura 29 – Curvas de histerese para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$ das amostras de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm) fabricadas com H aplicado <i>in situ</i>	42
Figura 30 – Gráficos de $H_c(\phi)$ e $M_s(\phi)$ preditos no modelo SW para um sistema com anisotropia uniaxial e rotações coerentes.	43
Figura 31 – $H_c(\phi)$ e $M_r(\phi)$ para as amostras a) Ta(18 nm)/Co(150 nm)/Ta(18 nm) com H aplicado <i>in situ</i> ; e b) Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) sem H aplicado <i>in situ</i>	43
Figura 32 – Diagrama simplificado do modelo de pares de grãos considerado.	45
Figura 33 – Resultados do modelo obtidos para dois domínios acoplados com eixos fáceis desalinhados com $\alpha = 17, 5^\circ$ e $2K/M_s = 50$ Oe. (a) Ciclo principal de histerese para o eixo duro ($M_1 \equiv M_2$) obtidos para $J = 0$, linha tracejada, e $J/K = 0, 6$, linha sólida. (b) $M_1(H)$ e $M_2(H)$ para $J = 0$ e $\phi = 80^\circ$. Variações angulares de (c) H_c e (d) M_R para $J = 0$, linhas tracejadas e $J/K = 0, 6$, linhas sólidas. As flechas retratam M_1 e M_2 na remanência.	46

Figura 34 – Ciclos de histerese no plano com curvas de recuo que apresentam RCO para filmes de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado <i>in situ</i>	48
Figura 35 – Ciclo de histerese no plano com curva de recuo que apresenta RCO para a amostra de Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) sem H aplicado <i>in situ</i>	49
Figura 36 – Gráficos das curvas de histerese juntamente com as curvas de recuo no plano da amostra de Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm), fabricada com H aplicado <i>in situ</i> , com a posição da amostra: a) centralizada em relação as bobinas sensoras, b) deslocada 2 mm na horizontal e c) deslocada 2 mm na horizontal e 2 mm na vertical.	50
Figura 37 – Ciclo de histerese no plano com curvas de recuo que apresentam RCO para filmes de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado <i>in situ</i>	51
Figura 38 – Curvas principais de histerese no plano para a) $\phi = 0^\circ$ e b) $\phi = 90^\circ$, juntamente com as respectivas curvas de recuo. Em c) e d) são apresentadas as curvas δM_R para cada caso.	52
Figura 39 – Curvas de remanência DCD mensuradas para várias orientações de H das amostras de a) Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) e de b) Ta(18 nm)/Ni(75 nm)/Ta(18 nm), ambas com H aplicado <i>in situ</i> . As setas de duas pontas denotam os valores de ângulos e H_r que se obtém os valores máximos das RCOs.	53
Figura 40 – Ciclo principal de histerese e curva de recuo simulados com os parâmetros usados na Figura 33(b) para $J/K = 0,6$. Em (a) os símbolos representam a magnetização no plano ($M_{ }$) do ciclo principal de histerese e a linha sólida a curva de recuo. Em (b) temos as componentes $M_{ }$ de $M_1(H)$ e $M_2(H)$ da ramificação do ciclo principal de histerese e em (c) da curva de recuo; as setas indicam as orientações de M_1 e M_2 em estados representativos numerados sequencialmente.	54

Lista de tabelas

Tabela 1 – Parâmetros e taxas de deposição dos alvos utilizados.	30
Tabela 2 – Estruturas dos filmes finos fabricados e estudados.	33
Tabela 3 – Parâmetros das camadas de Co extraídos das difrações de raios X das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm). O * indica a única amostra que foi crescida sem H aplicado <i>in situ</i>	36
Tabela 4 – Parâmetros das camadas de Ni extraídos das difrações de raios X das amostras de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm).	38
Tabela 5 – Passos de campo magnético empregados no VSM para realização das medidas de caracterização magnética de acordo com a estrutura das amostras.	39
Tabela 6 – Resumo das propriedades magnéticas das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm) sem H aplicado <i>in situ</i>	40
Tabela 7 – Resumo das propriedades magnéticas das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado <i>in situ</i>	41
Tabela 8 – Resumo das propriedades magnéticas das amostras de Cr(17 nm)/Co(t_{Co} nm)/Cr(17 nm) fabricadas com H aplicado <i>in situ</i>	41
Tabela 9 – Resumo das propriedades magnéticas das amostras de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado <i>in situ</i>	42

Sumário

	Introdução	1
1	ASPECTOS TEÓRICOS	3
1.1	Origem do magnetismo na matéria	3
1.2	Diamagnetismo e paramagnetismo	4
1.3	Ferromagnetismo e antiferromagnetismo	5
1.4	Curvas de magnetização	9
1.5	Anisotropias magnéticas	12
1.5.1	Anisotropia magnetocristalina	12
1.5.2	Anisotropia magnetoelástica	14
1.5.3	Anisotropia de superfície	14
1.5.4	Anisotropia de forma	15
1.5.5	Anisotropia induzida	16
1.6	Curvas de remanência	16
2	PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL	23
2.1	Fabricação das amostras	23
2.2	Caracterização estrutural	25
2.2.1	Difração de raios X	25
2.2.2	Refletividade de raios X	28
2.2.2.1	Calibração da taxa de deposição	29
2.3	Caracterização magnética	31
3	RESULTADOS E DISCUSSÃO	33
3.1	Caracterização estrutural	35
3.2	Caracterização magnética	38
3.2.1	Colapso do eixo duro	42
3.2.2	Recoil-Curve Overshoot (RCO)	47
	Conclusão e Trabalhos Futuros	56
	Artigo publicado	58
	Referências	59

Introdução

Os materiais nanoestruturados, entre eles os filmes finos magnéticos, têm sido essenciais na indústria moderna para o desenvolvimento de novos dispositivos e componentes eletrônicos. Além de apresentar vantagens como compactação, redução de peso, alto desempenho e baixo consumo de energia, nas escalas nanométricas os materiais podem apresentar comportamentos que seriam inalcançáveis no estado de *bulk*. Para nanomateriais magnéticos, diferentes interações magnéticas são capazes de ser alcançadas afetando as propriedades, por exemplo, de coercividade, remanência, reversão de magnetização e magnetotransporte, nestes elementos. Desta forma, a caracterização das interações magnéticas nestes sistemas se torna altamente relevante e pode ser feita por diferentes técnicas de magnetometria, onde são gerados os gráficos de magnetização, M , vs. campo magnético externo, H , como uma impressão digital destes materiais. Não só em filmes finos, mas em todos os materiais ferromagnéticos a histerese magnética, mensurada no gráfico de $M \times H$, é o fenômeno mais intrigante e esta possibilita diversas aplicações dos materiais ferromagnéticos, tais como: armazenamento de dados, sensores e tecnologias de energia. Apesar do longo período de observação deste fenômeno, até os dias atuais a compreensão dos mecanismos físicos envolvidos neste processo não foram completamente elucidados.

O ciclo principal de histerese para um material ferromagnético, é obtido aplicando-se um campo magnético externo H_{max} suficiente para saturar a magnetização, isto é, alcançar o valor máximo de magnetização para este material M_s , em seguida, o campo magnético é reduzido gradativamente até o valor de $H_{min} = -H_{max}$ alcançando-se a magnetização de saturação no sentido oposto $-M_s$ e finalmente, H é aumentado gradativamente até H_{max} , novamente. Durante o processo ocorrem reversões tanto reversíveis quanto irreversíveis da magnetização, onde o campo de anisotropia, H_A , é o campo limite acima deste ocorrem apenas rotações reversíveis da magnetização, se $H_{max} > H_A$. Também é possível obter curvas de magnetização sem alcançar saturação da magnetização do material em um sentido ou nos dois sentidos, ou seja, mensurando para H_{max} e/ou $|H_{min}|$ menor que H_A , nestes caso temos os laços menores de histerese. Um caso particular, são as curvas de recuo, obtidas após a aplicação de um H inicial suficiente para saturar a magnetização da amostra, e reduzindo H até um campo de recuo, H_R , tal que $H_R < H_A$, e retornando novamente para o estado saturado inicial. Estes gráficos fornecem informações sobre o estado magnético e sobre os processos de reversão de magnetização que não podem ser obtidos por meio dos ciclos principais de histerese. Mais recente, gráficos de δM_R foram introduzidos utilizando curvas de recuo e o ciclo de histerese para determinar as interações magnéticas dominantes em sistemas ferromagnéticos [2].

Na literatura é reportado que o ciclo principal de histerese fornece a resposta magnética máxima de um material ferromagnético, i.e., o maior produto de energia $B \times M$, portanto todo laço menor de histerese possui área menor, sendo interno ao ciclo principal de histerese. Neste trabalho, será descrita a observação de laços menores de histerese externos ao ciclo principal de histerese, observados em filmes policristalinos de cobalto(Co) e níquel(Ni). Estas curvas são observadas para orientações angulares específicas entre H e o eixo de fácil magnetização da camada ferromagnética (FM). O fenômeno pode ser observado em nanocamadas magnéticas de diferentes espessuras e cristalinidades. Nós mostramos que este fenômeno é causado por interações magnéticas e dispersão de anisotropia.

1 ASPECTOS TEÓRICOS

Conforme discutido na Introdução, o foco deste trabalho é o estudo das propriedades estruturais e magnéticas de filmes finos magnéticos crescidos por desbastamento iônico (*sputtering*). Para tanto, antes de apresentar os resultados desta pesquisa é necessário discutir a origem do magnetismo na matéria, fatores anisotrópicos que influenciam na magnetização, os tipos de curvas de magnetização estudadas e como estas são obtidas. Para descrição dos conceitos de magnetismo foram utilizadas como base de referências os livros de magnetismo e materiais magnéticos [3, 4, 5, 6, 7, 8].

1.1 Origem do magnetismo na matéria

A origem atômica do magnetismo está relacionada a estrutura eletrônica dos elementos que constituem a matéria, podendo apresentar natureza e magnitude diferentes para diferentes materiais. Para entendermos é preciso considerar o momento magnético dos elétrons resultante do movimento orbital, o momento intrínseco de spin e as interações existentes entre eles, que são originadas da sobreposição das funções de onda dos elétrons, atendendo a regra de Hund e ao princípio da exclusão de Pauling ¹. Considerando o vetor \vec{S} como a soma dos momentos angulares de spins de um átomo e \vec{L} como a soma dos momentos angulares orbitais, podemos definir o momento angular total \vec{J} como:

$$\vec{J} = \vec{L} + 2\vec{S}, \quad (1.1)$$

onde a configuração dos elétrons no átomo determina a magnitude do momento angular total. Uma situação possível de \vec{J} não nulo ocorre quando os átomos possuem camadas incompletas com elétrons desemparelhados, resultando em combinação descompensada dos momentos de spin e orbital. O momento magnético total na matéria é proporcional a \vec{J} e a quantidade de momento magnético por unidade de volume é denominado por magnetização (\vec{M}). Há materiais em que os momentos magnéticos são nulos (diamagnéticos), outros em que os momentos magnéticos são diferentes de zero, mas se combinam gerando magnetização resultante nula (paramagnéticos), como fruto da desordem causada pelas flutuações térmicas. Estas duas classes são caracterizadas pelo magnetismo atômico. Entretanto, também existem materiais que possuem efeitos magnéticos coletivos, como os antiferromagnéticos, com magnetização nula, e os ferrimagnéticos e ferromagnéticos, cujos momentos magnéticos se organizam e produzem magnetização espontânea. A magnetização dos materiais pode ser alterada quando submetidos a variação de um campo

¹ Os momentos dos núcleos são negligenciados, pois em comparação com o dos elétrons são desprezíveis.

magnético externo \vec{H} , onde cada classe de magnetismo responde de forma diferente. A susceptibilidade magnética (χ) descreve esta relação:

$$\chi = \frac{M}{H}. \quad (1.2)$$

A composição de \vec{M} e \vec{H} contribui para a densidade de fluxo magnético (\vec{B}) na matéria e a resposta de \vec{B} ao campo \vec{H} é dada pela permeabilidade magnética (μ) do material:

$$\mu = \frac{B}{H}. \quad (1.3)$$

E em geral χ e μ não são constantes, dependem do meio e podem variar para diferentes valores do campo \vec{H} . Uma maior susceptibilidade magnética implica em maior permeabilidade magnética e vice-versa, sendo $\mu = \mu_0(\chi + 1)$, onde μ_0 é a permeabilidade magnética do vácuo.

1.2 Diamagnetismo e paramagnetismo

O diamagnetismo descreve a resposta magnética induzida de forma oposta ao campo magnético externo aplicado, agindo para diminuir a intensidade do campo na matéria. Este efeito é de origem quântica e está associado a indução de momentos de dipolo magnético nos elétrons, que se alinham antiparalelo ao fluxo magnético. Apesar de ser similar, este fenômeno não é descrito pela Lei de Lenz, pois esta precisaria de um campo magnético variável, e o diamagnetismo é observado mesmo em campo magnético estático, sendo um fenômeno puramente quântico. Os materiais ditos diamagnéticos não apresentam magnetização na ausência de campo externo, porém quando aplicado, a magnetização se opõe ao campo e a susceptibilidade magnética será negativa e pequena que se mantém constante com a variação de temperatura.

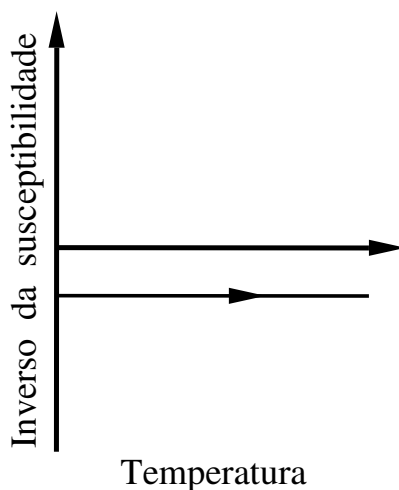


Figura 1 – Variação do inverso da susceptibilidade com a temperatura de um material diamagnético.

O paramagnetismo é causado por camadas eletrônicas parcialmente preenchidas e elétrons desemparelhados, sendo condicionado a existência de dipolos magnéticos permanentes. Os átomos possuem momento líquido \vec{J} diferente de zero, mas a combinação aleatória destes momentos devido a flutuações térmicas resulta em uma magnetização nula na ausência de campo magnético externo. Na presença de fluxo magnético, cada momento magnético \vec{m} possui energia potencial associada, $U = -\vec{m} \cdot \vec{B}$, e a minimização desta energia é alcançada com o alinhamento dos momentos magnéticos paralelos ao campo, resultando em magnetização diferente de zero. Portanto, o paramagnetismo está associado a facilidade dos momentos magnéticos alinharem-se com o campo. Os materiais ditos paramagnéticos possuem susceptibilidade magnética positiva e pequena que varia inversamente com a temperatura conforme comportamento descrito pela Lei de Curie.

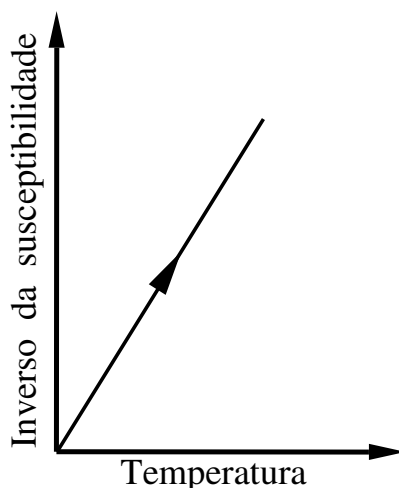


Figura 2 – Variação do inverso da susceptibilidade com a temperatura de um material paramagnético.

Todos os materiais apresentam diamagnetismo quando submetidos a um campo magnético externo, entretanto, como esta susceptibilidade é de algumas ordens de grandeza menor que as susceptibilidades dos outros comportamentos magnéticos, só é possível observar o diamagnetismo em materiais que não apresentam outra resposta magnética simultaneamente.

1.3 Ferromagnetismo e antiferromagnetismo

As duas classificações de magnetismo estudadas anteriormente são caracterizadas por apresentarem magnetização nula na ausência de campo magnético externo, porém é de maior interesse para este trabalho os materiais cujas interações de curto alcance entre momentos intrínsecos atômicos dão origem a ordenações coletivas, espontaneamente. Estes materiais são classificados como ferromagnéticos e ferrimagnéticos quando podem apresentar magnetização espontânea e antiferromagnéticos quando não apresentam mag-

netização espontânea. Podemos indagar que se os momentos magnéticos estão ordenados, existe alguma força agindo entre eles. Para explicar esta interação, iremos abordar duas teorias para o magnetismo destes materiais: I) Teoria de Momento Localizado e II) Teoria de Bandas.

I) Teoria de Momento Localizado

A Teoria de Momento Localizado parte do princípio que os elétrons estão na estrutura da rede cristalina e não podem se mover pelos átomos do material e contribuem com momento magnético para cada átomo de forma localizada, sendo aplicada principalmente ao magnetismo presente em sólidos isolantes. A primeira brilhante ideia para descrição deste tipo de magnetismo foi proposta por Weiss em 1907 [9], que considerou a existência de um campo local que tende a alinhar a maioria ou todos os spins. Assim, ele assumiu que existe um campo molecular (\vec{H}_m) que atua proporcional a \vec{M} e este é tão forte que pode saturar a magnetização de um material mesmo na ausência de campo magnético externo, obtendo a relação:

$$\vec{H}_m = \lambda \vec{M}, \quad (1.4)$$

em que λ é a constante de campo molecular. A magnetização espontânea foi o primeiro postulado utilizado nesta teoria. O segundo surge com a observação de materiais ferromagnéticos na natureza em estados desmagnetizados. Como isto seria possível se estes são autossaturados? Foi proposto que os materiais ferromagnéticos são divididos em domínios magnéticos separados por paredes de domínios e, dentro destes, os momentos magnéticos estão coerentes possuindo magnetização resultante não nula. Entretanto, os domínios podem estar magnetizados em direções aleatórias, resultando na desmagnetização macroscópica do material. A Figura 3 apresenta os domínios magnéticos e as orientações dos momentos magnéticos em um ordenamento ferromagnético com magnetização resultante nula (a) e com magnetização líquida diferente de zero (b).

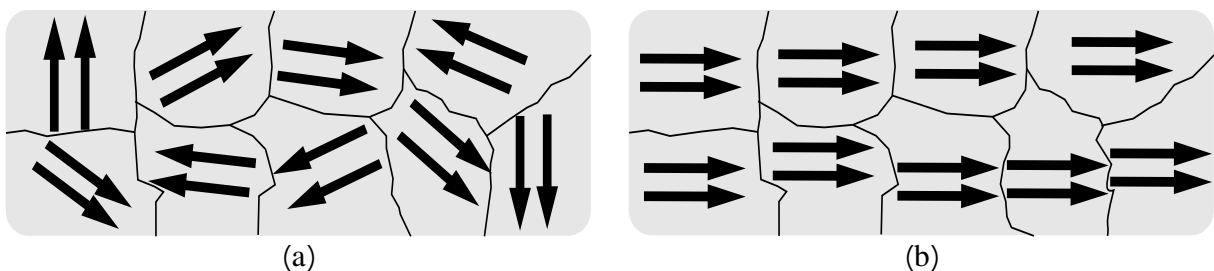


Figura 3 – Representação dos domínios magnéticos e as orientações dos momentos magnéticos dentro da estrutura de domínios de materiais ferromagnéticos com magnetização resultante: (a) nula e (b) diferente de zero.

Nos materiais antiferromagnéticos são considerados os domínios divididos em sub-redes e em cada par os spins estão organizados antiparalelos, resultando em momento de dipolo magnético nulo e, conseqüentemente, magnetização nula (Figura 4.(a)). Os

ferrimagnéticos possuem organização microscópica semelhante aos antiferromagnéticos entretanto as sub-redes antiparalelas possuem valores de momento magnético diferentes (Figura 4.(b)), não se anulando completamente e podendo resultar espontaneamente em \vec{M} diferente de zero. Nestes casos, existem dois campos moleculares de forma análoga aos ferromagnéticos, porém um campo molecular é proporcional a magnetização de uma sub-rede e o outro campo é proporcional a magnetização da outra sub-rede.

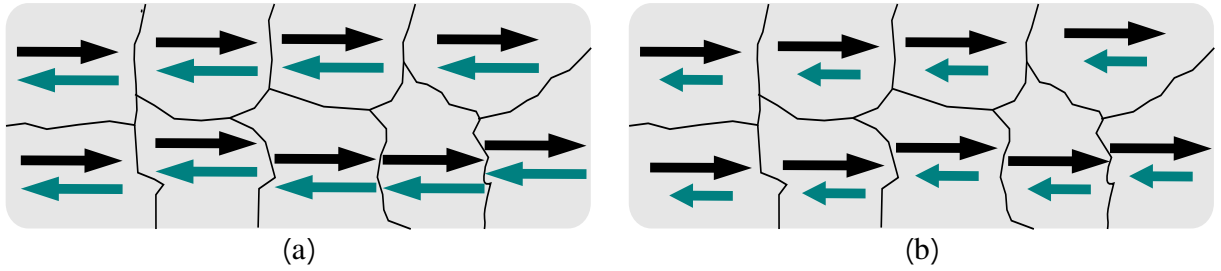


Figura 4 – Representação dos domínios magnéticos e as orientações dos momentos magnéticos dentro da estrutura de domínios de materiais (a) antiferromagnéticos e (b) ferrimagnéticos.

A ideia de campo molecular parecia dar conta fenomenologicamente do ordenamento magnético, mas não explicitava a origem deste campo. A proposta para esta origem foi feita em 1928 por Heisenberg. Ele mostrou, utilizando o princípio de exclusão de Pauli aplicado a átomos, que o enorme campo magnético interno surge devido a uma força que depende da orientação relativa entre dois momentos de spin, sendo chamada de interação de troca. A energia devido a esta interação é dada pelo seguinte Hamiltoniano:

$$\vec{H}_{ex} = - \sum_{i < j} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j. \quad (1.5)$$

Notemos, devido ao produto escalar entre os momentos de spins, que se a constante de troca J é positiva, a minimização da energia acontece com os momentos de spins alinhados paralelamente (condição do ferromagnetismo). Quando J é negativo, a minimização da energia ocorre para os momentos magnéticos alinhados antiparalelamente (condição do antiferromagnetismo e do ferrimagnetismo). No caso de J ser zero, não existe a interação de troca, resultando em um comportamento paramagnético.

Vale destacar o trabalho desenvolvido por Slater em 1930 que observou em um metal de classe 3d, cuja interação de troca é forte devido a densidade da nuvem eletrônica, a existência de uma correlação entre a interação de troca e a razão r_{ab}/r_d que representam a distância interatômica (r_{ab}) e o raio da camada incompleta d (r_d). Maiores valores desta razão implicavam em J positivo e para pequenos valores em J negativo [10]. Assim, quando a razão r_{ab}/r_d torna-se grande o suficiente para tornar a interação de troca positiva, temos um material ferromagnético. E quando a razão é pequena, temos um material ferrimagnético. Além disso, a interação de troca depende somente da distância entre

os spins, não dependendo de alguma organização geométrica dos átomos, podendo o ordenamento magnético aparecer tanto em materiais cristalinos quanto em amorfos.

II) Teoria de Bandas

A Teoria de Bandas também pode ser chamada de teoria dos elétrons itinerantes, pois ao contrário da teoria de momento localizado onde os elétrons estão fixos em um determinado átomo, nesta teoria os elétrons pertencem ao cristal como um todo. Logo, qualquer tentativa de associá-los a uma posição não é válida e os elétrons podem passar de um átomo para outro e, ao contrário da teoria supracitada, o momento por átomo não é necessariamente inteiro, utilizando-se do conceito probabilístico da mecânica quântica. Esta teoria descreve bem as propriedades dos materiais ferromagnéticos de transição (Fe, Ni e Co).

Nos átomos isolados, os elétrons ocupam níveis de energia bem definidos e especificados pelos quatro números quânticos. Três deles estão associados ao nível e subnível orbital do elétron e um ao momento de spin. Pelo princípio de exclusão de Pauli, dois elétrons não podem ocupar o mesmo estado quântico sendo necessário ao menos um destes números ser diferente. No sólido há a junção de vários átomos e deve ser considerado como uma unidade e o princípio da exclusão de Pauli passa a ser aplicado a todo o grupo de átomos, modificando profundamente as posições dos níveis de energia. Com as sobreposições das funções de onda, há desdobramentos dos níveis de energia, ou seja, se para a camada 1s do átomo existem dois possíveis estados para os elétrons, para N átomos seriam $2N$ possíveis estados. Os níveis de energia mais externos dos átomos são os primeiros a sofrerem interações e serem divididos, enquanto as camadas mais próximas aos núcleos 1s e 2s são mais distantes uma da outra, existindo menor divisão da energia. Os níveis de energia da sobreposição de camadas são tão espaçados que podem ser considerados como bandas de energia, nas quais os elétrons são itinerantes no interior de cada banda.

A ocupação dos níveis de energia pelos elétrons na banda parcialmente preenchida segue a distribuição de Fermi-Dirac, de modo que na temperatura de 0 K todos os níveis de energia abaixo da energia de Fermi (E_{f0}) estão completamente ocupados, enquanto todos os níveis acima desta energia estão completamente vazios.

Para o ferromagnetismo, deve existir bandas de energia parcialmente preenchidas e elétrons com spins desemparelhados podendo mover-se entre os níveis de energia, e existindo uma distância entre os elétrons suficiente para que haja a interação de troca. Além disso, os metais ferromagnéticos possuem bandas estreitas e alta densidade no nível de Fermi; como resultado o aumento da energia causado pelo alinhamento dos spins é pequeno e propicia uma alta susceptibilidade magnética.

O modelo de Hubbard usualmente é utilizado para o estudo das interações entre

elétrons nas bandas de energia [11], sendo o Hamiltoniano dado por:

$$\hat{H} = - \sum_{ij\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}, \quad (1.6)$$

em que o primeiro termo do lado direito da igualdade está associado a dinâmica dos elétrons onde $c_{i\sigma}^\dagger$ e $c_{i\sigma}$ são os operadores criação e aniquilação no sítio i para elétrons com spin $+\frac{1}{2}$ ou $-\frac{1}{2}$, $\sigma = \uparrow, \downarrow$, e o segundo termo está relacionado com os potenciais locais. Portanto, é levado em consideração tanto a dinâmica dos elétrons quanto as interações existente localmente.

Os materiais ferromagnéticos e ferrimagnéticos possuem susceptibilidade magnética grande e positiva, variável com a temperatura. Acima de certa temperatura crítica, chamada de temperatura de Curie (T_C), o comportamento magnético destes materiais desaparece e eles se tornam paramagnéticos (veja a Figura 5(a)). Os materiais antiferromagnéticos possuem susceptibilidade pequena e positiva, variável com a temperatura. Acima da temperatura chamada de temperatura de Néel (T_N) esses materiais têm comportamento paramagnético e a susceptibilidade é inversamente proporcional a temperatura. Abaixo de T_N o comportamento é antiferromagnético com a susceptibilidade sendo diretamente proporcional a temperatura (veja a Figura 5(b)).

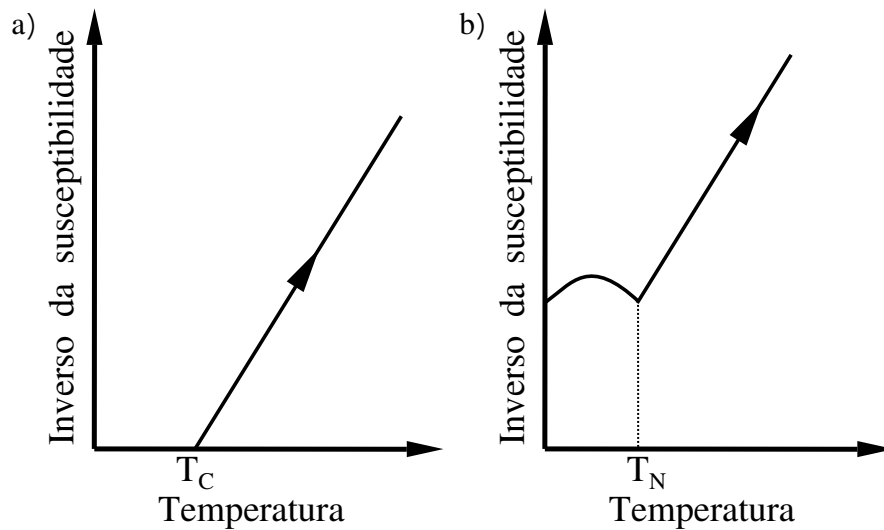


Figura 5 – Variação do inverso da susceptibilidade com a temperatura para um material (a) ferromagnético e (b) antiferromagnético.

1.4 Curvas de magnetização

A caracterização magnética de materiais pode ser feita por meio das curvas de magnetização. Em aspectos gerais estas curvas nos fornecem um gráfico da magnetização da amostra em função da aplicação de um campo magnético externo ($M \times H$) [12]. Cada tipo de material magnético apresenta uma curva característica (veja a Figura 6); iremos

dar enfoque a resposta magnética de materiais ferromagnéticos, objeto de estudo deste trabalho.

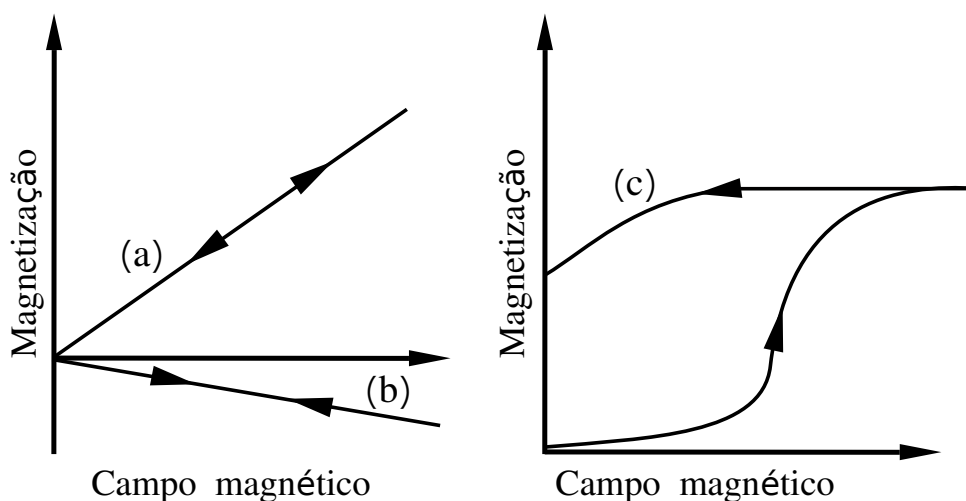


Figura 6 – Curvas características de $M \times H$ para diferentes classes de materiais magnéticos: a) paramagnéticos e antiferromagnéticos; b) diamagnéticos; c) ferromagnéticos e ferrimagnéticos.

Conforme discutido anteriormente, os materiais ferromagnéticos apresentam momentos magnéticos ordenados, podendo resultar em magnetização espontânea diferente de zero na ausência de fluxo magnético. O processo de magnetização consiste em alinhar domínios magnéticos no sentido de \vec{H} , sendo feito por rotação dos momentos magnéticos e/ou pelo deslocamento das paredes de domínio. As paredes delimitam dois domínios vizinhos, onde suas dimensões são pequenas quando comparadas com a dimensão dos domínios dada por: $\sqrt{A/K}$ em que A é a constante de Stiffnes e K a energia de anisotropia [13]. A caracterização magnética pode ser obtida por meio de diferentes curvas de $\vec{M} \times \vec{H}$ de acordo com as informações que se deseja. A Figura (7) apresenta algumas destas principais curvas.

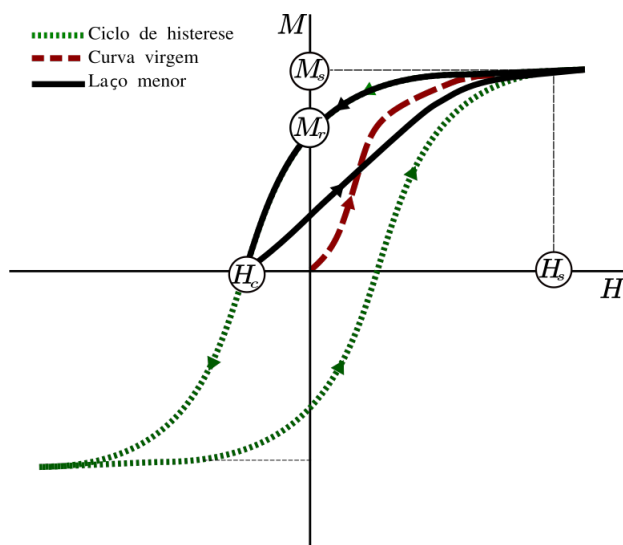


Figura 7 – Ciclo de histerese, curva virgem e laço menor de histerese de um material ferromagnético.

A curva virgem é traçada a partir de um estado inicial desmagnetizado, isto é, os domínios magnéticos estão orientados de maneira aleatória. O campo \vec{H} é aplicado com intensidade crescente até o campo de saturação H_s na qual a magnetização é máxima e denominada magnetização de saturação M_s . Ao ser aplicado o campo magnético, os domínios orientados na direção do campo começam a aumentar enquanto os domínios que não são favoráveis diminuem e na saturação os domínios estão alinhados com o campo aplicado [13, 14].

O ciclo principal de histerese é obtido a partir da aplicação de um campo magnético externo H_{max} , tal que $H_{max} > H_s$, saturando a magnetização da amostra, em seguida o campo é reduzido gradativamente até $-H_{max}$ alcançando a magnetização de saturação no sentido oposto e posteriormente \vec{H} é aumentado gradativamente até H_{max} . Analisando o ciclo podemos destacar os seguintes aspectos: i) a curva percorrida é irreversível, ou seja, a curva de H_{max} a $-H_{max}$ é diferente da curva de $-H_{max}$ a H_{max} , que são diferentes da curva virgem; ii) quando o campo aplicado é zero o material retém um valor de magnetização, chamada de magnetização remanente M_r e para a magnetização no material tornar-se nula é necessário inverter o sentido do campo aplicado [13, 14]. O campo necessário para que a magnetização seja nula é denominado campo coercivo H_c .

A caracterização magnética também pode ser mensurada por meio dos laços menores de histerese. Estes podem ser obtidos de duas formas: i) sem alcançar a saturação magnética e ii) saturando o material apenas em um sentido. No primeiro caso o laço é obtido com o procedimento semelhante ao do laço principal de histerese, porém aplicando um campo externo máximo que não satura a magnetização. O segundo caso, representado pela curva contínua na Figura 7, a magnetização é saturada em um sentido e reduzida gradativamente até um campo de recuo, que é o H_c . Neste ponto, o campo aplicado é

invertido e aumentado (em módulo) gradativamente até a saturação inicial. Neste último caso, o laço menor de histerese também é chamado de curva de recuo, contendo parte do laço principal e outro ramo que não coincide com parte do laço principal, que é referido como curva de reversão de primeira ordem (FORC) [15].

A forma da curva de magnetização pode ser alterada significativamente por impurezas, tamanho dos cristalitos e defeitos na amostra, relevantes para fixação de domínios e aparecimento de domínios com magnetização oposta.

1.5 Anisotropias magnéticas

A anisotropia magnética caracteriza-se pela observação das propriedades magnéticas serem dependentes da direção de aplicação do campo magnético no material. Assim, ao submetemos uma amostra ferromagnética a um campo magnético externo, o ciclo de histerese passa a ser dependente da direção de aplicação deste campo, podendo haver alteração no formato da curva $M \times H$. Este fenômeno é dependente da temperatura, havendo uma diminuição da anisotropia com o aumento da temperatura até o desaparecimento, no ponto de Curie. Basicamente, a interação magnética dipolar e a interação spin-órbita são as duas fontes de anisotropia magnética, sendo influenciadas nos filmes finos por vários fatores, entre eles: simetria da estrutura cristalina, intensidade dos momentos magnéticos, forma da amostra e efeitos de interface. Desta forma, as anisotropias podem ser intrínsecas ou extrínsecas do material e cada forma de anisotropia está associada a uma forma de energia. O eixo que apresentar maior (ou menor) facilidade na orientação dos momentos magnéticos é chamado de eixo fácil (ou difícil)² [8].

1.5.1 Anisotropia magnetocristalina

A anisotropia magnetocristalina, ou anisotropia magnética cristalina, é a única anisotropia intrínseca dos materiais, sendo originada da interação spin-órbita do elétron e da interação da órbita do elétron com a rede cristalina. Este fenômeno ocorre quando um campo magnético externo é aplicado sobre um material e os spins tentam se alinhar paralelos ao campo e, devido a interação spin-órbita, os orbitais dos elétrons também tenderão a serem reorientados, porém a interação do orbital com a rede é muito intensa e esta tenta rotacionar o eixo do cristal, criando oposição ao movimento. Caso a densidade de campo local no cristal seja assimétrica, existirão direções onde a resistência do orbital a rotacionar será maior e conseqüentemente será maior o trabalho para reorientação dos spins, resultando em direções com diferentes dificuldades de saturação da magnetização.

² Também é comum o uso do termo eixo macio e eixo duro para indicar os eixos de fácil e difícil magnetização, respectivamente.

A Figura 8 mostra a resposta magnética para diferentes direções de aplicação de \vec{H} para um monocristal de Co com estrutura hexagonal compacta (h.c.p.). Esta estrutura do Co caracteriza-se por possuir um único eixo fácil [0001] ao longo do eixo hexagonal e dois eixos difíceis no plano basal [10 $\bar{1}$ 0]. Por apresentar um único eixo de fácil magnetização, este caso é denominado de anisotropia uniaxial e a energia magnética associada a esta anisotropia pode ser representada como uma série de potências de $\sin^2\phi$, conforme a Equação 1.7. O Co além de anisotropia uniaxial pode apresentar anisotropia cúbica quando possuir estrutura cristalina cúbica, possuindo eixos de diferentes dificuldades de magnetização, assim como o Ni e o Fe.

$$\xi_{cris}^{hex} = K_0 + K_1\sin^2\phi + K_2\sin^4\phi + K_3\sin^6\phi + \dots, \quad (1.7)$$

sendo os K_n as constantes de anisotropia e ϕ o ângulo entre a magnetização e o eixo de fácil magnetização c do cristal.

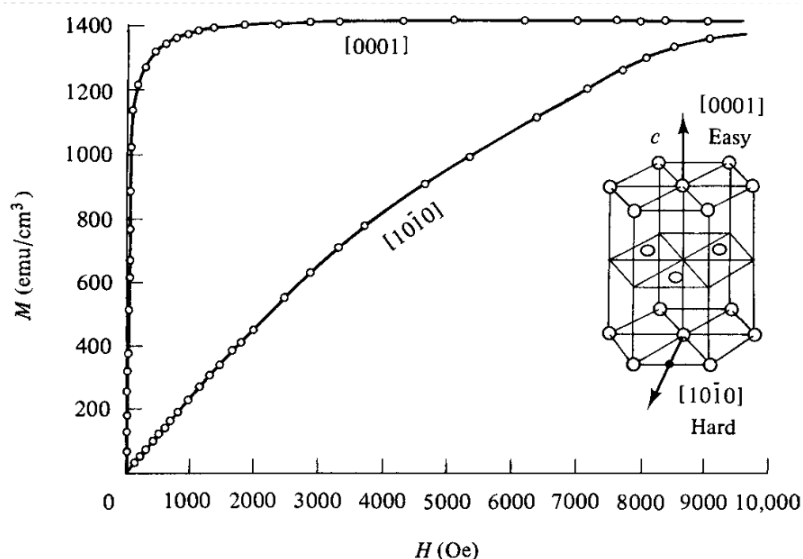


Figura 8 – Curvas de magnetização para um monocristal de cobalto hexagonal para as direções cristalográficas [0001] e [10 $\bar{1}$ 0] [3].

Notemos que no eixo fácil a magnetização de saturação é alcançada com a aplicação de um campo magnético de menor intensidade em relação ao dos eixos duros. Além disso, nos eixos duros os momentos magnéticos são rotacionados mais gradativamente que no eixo fácil, sendo menor a susceptibilidade magnética nestas direções.

A energia necessária para superar a interação spin-órbita é denominada de energia magnetocristalina e no eixo de fácil magnetização ocorre a minimização desta energia. Em intensidade, esta energia é menor do que a energia de troca (interação spin-spin), porém a interação de troca ocorre de maneira isotrópica. Assim, em monocristais a anisotropia magnetocristalina determina as direções de fácil e difícil magnetização [8].

Ao longo dos materiais monocristalinos existe uma repetição dos cristais com a mesma orientação. As amostras estudadas neste trabalho são filmes magnéticos de Co e Ni policristalinos que se caracterizam pela formação de cristais com orientações diferentes ao longo do material. Se os cristais estiverem organizados de maneira aleatória, a energia anisotrópica resultante é nula e caso haja uma direção preferencial de crescimento (textura cristalográfica) existirá uma anisotropia magnetocristalina diferente de zero, mas de menor intensidade do que a estrutura de monocristais [3].

1.5.2 Anisotropia magnetoelástica

A anisotropia magnetoelástica, também chamada de anisotropia por estresse, tem origem na interação spin-órbita e está associada a indução de uma deformação da rede cristalina por meio de uma tensão mecânica, alterando a anisotropia magnetocristalina e podendo modificar a direção preferencial da magnetização no material [3]. Considerando um meio com constante elástica isotrópica e o coeficiente de magnetostricção (κ) isotrópico, isto é, as dimensões da amostra são modificadas com a mesma proporção, podemos obter uma expressão simples para a energia associada a esta anisotropia:

$$\xi_{me} = -\frac{3}{2}\kappa\sigma\cos^2\theta = -\frac{3}{2}K_{me}\cos^2\theta, \quad (1.8)$$

em que σ é o estresse causado pela tensão, θ é o ângulo entre a tensão e a magnetização e K_{me} é a constante de anisotropia magnetoelástica.

Uma das fontes possíveis de indução de estresse em filmes finos é o desacoplamento entre parâmetros de rede, que pode ocorrer na interface substrato/camada e/ou camada/camada [16]. Este fato será descrito em mais detalhes no Capítulo 3 para auxiliar no entendimento das medidas de difração de raios X.

1.5.3 Anisotropia de superfície

Além da anisotropia magnetoelástica nas interfaces das camadas, devido a modificação da estrutura eletrônica, os sítios entre os materiais podem apresentar diferentes acoplamentos spin-órbita influenciando na cristalização da camada FM, bem como na organização e orientação dos momentos magnéticos. Este efeito é inversamente proporcional a espessura da nanocamada podendo, em limites críticos, a contribuição da energia de superfície pode superar a energia de forma e o eixo de fácil magnetização da amostra passa a ser ortogonal ao plano do filme [16]. A esta anisotropia, chamamos de anisotropia de superfície. Assim, podemos entender a constante efetiva de anisotropia (K_{eff}) como sendo:

$$K_{eff} = K_V + \frac{2K_s}{t}, \quad (1.9)$$

com K_V associado a anisotropia volumétrica, K_s associado a anisotropia de superfície e t sendo a espessura do filme. O fator 2 é devido a consideração da existência de duas interfaces. Caso as duas interfaces sejam diferentes, a equação se torna:

$$K_{eff} = K_V + \frac{K_{infs} + K_{sups}}{t}, \quad (1.10)$$

onde K_{infs} e K_{sups} representam a anisotropia associada as interfaces inferiores e superiores, respectivamente. Desta forma, sempre haverá uma contribuição da anisotropia de superfície, porém ela se torna mais significativa para camadas menos espessas.

1.5.4 Anisotropia de forma

A anisotropia de forma, que pode ser chamada de energia desmagnetizante, está associada a geometria da amostra. Quando um material está magnetizado, os polos dos momentos magnéticos em seu interior são compensados por polos opostos vizinhos, entretanto, na superfície do material os polos não são compensados e conseqüentemente surge um campo magnético (\vec{H}_d) em sentido oposto a \vec{H} , que tende a desmagnetizar a amostra [16]. Sendo a quantidade de polos proporcional a área superficial da amostra em cada direção, os campos desmagnetizantes apresentam intensidades diferentes para diferentes dimensões e é mais fácil a magnetização ao longo do eixo de maior tamanho. A Figura 9 exemplifica essa ideia. Aplicando o campo magnético na direção y , o número de dipolos magnéticos na superfície maior do que quando o campo magnético é aplicado ao longo da direção x que possui maior tamanho, portanto, maior o campo desmagnetizante ao longo do eixo y .

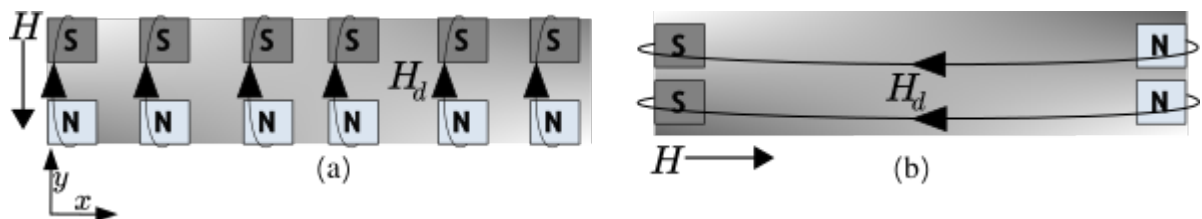


Figura 9 – Representação esquemática da anisotropia de forma. Em a) representação de H aplicado na direção y e em b) representação de H aplicado na direção x .

A descrição matemática para este campo pode ser obtida pela Lei de Gauss Magnética (segunda equação de Maxwell), que descreve o divergente da densidade de fluxo magnético em um dado meio como sendo $\nabla \cdot \vec{B} = 0$. Também podemos escrever $\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M})$ e combinando estas duas equações obtemos:

$$\nabla \cdot \vec{M} = -\nabla \cdot \vec{H}, \quad (1.11)$$

portanto, como na superfície da amostra ocorre uma descontinuidade da magnetização, temos o surgimento de um campo magnético de sentido oposto ao campo \vec{H} . Como

diferentes dimensões nas direções resultam em diferentes descontinuidades na magnetização, consequentemente temos diferentes campos desmagnetizantes \vec{H}_d [16]. Conseguimos escrever este campo, para um filme fino, como sendo:

$$\vec{H}_d = -N_d \vec{M}, \quad (1.12)$$

em que N_d é o tensor desmagnetizante que depende do formato da amostra e da direção de aplicação do campo \vec{H} .

Associado a anisotropia de forma podemos escrever o termo da densidade de energia magnetostática [16]:

$$\xi_s = -\frac{1}{2} \mu_0 \vec{H}_d \vec{M}. \quad (1.13)$$

Esta energia é a principal responsável pela estrutura de domínios magnéticos nos materiais ordenados magneticamente. Estes domínios aparecem para minimizar a energia magnetostática no interior do material [17].

As amostras estudadas foram cortadas em uma geometria quadrangular de forma a minimizar (ou extinguir) a anisotropia de forma no plano da amostra, ou seja, não ter diferenças nas curvas de magnetização ao longo dos eixos x e y devido a este fator. Em filmes finos a dimensão no plano do filme é cerca de 10^9 vezes maior que a dimensão na direção perpendicular, assim, consideramos que N_d possui valor 1 na direção perpendicular e é nulo nas demais direções [16].

1.5.5 Anisotropia induzida

Quando se deseja ter um controle da direção preferencial das propriedades magnéticas nas amostras, a anisotropia pode ser induzida. Este processo pode ser feito após a confecção das amostras por meio de tratamento térmico simultâneo à aplicação de campo magnético ou de estresse sobre o material. A anisotropia também pode ser induzida durante o processo de fabricação, conforme realizado neste trabalho, utilizando um campo magnético *in situ* para induzir uma anisotropia uniaxial [13]. Sendo ϕ o ângulo entre a magnetização de saturação e o eixo fácil, neste caso o termo de energia associado a esta anisotropia é dado por:

$$\xi_{ind} = K_{ind} \text{sen}^2 \phi. \quad (1.14)$$

1.6 Curvas de remanência

Na seção 1.4 foram descritas as curvas de magnetização por ciclos $M \times H$ que representam os processos reversíveis e irreversíveis da magnetização. Podemos analisar somente os processos irreversíveis da magnetização por meio das curvas de remanência e obter mais informações sobre o tipo de interação magnética dominante. Essas curvas

inicialmente foram desenvolvidas para caracterização de sistemas não interagentes, com anisotropia uniaxial ou cúbica e ciclo principal de histerese simétrico. As *isothermal remanent magnetization curves* (IRM) e as *DC demagnetization curves* (DCD) são duas das principais curvas utilizadas [18, 19]. De forma simplória, as curvas de remanência são baseadas na leitura da magnetização remanente após a aplicação e completa remoção de um campo magnético externo.

Para obtenção das curvas IRM é preciso um estado inicial desmagnetizado, em seguida é aplicado um baixo campo $H_1 > 0$ e posteriormente o campo é retirado e feita a medida da magnetização remanente em função do campo $M_r(H_1)$. Após a medida, um campo $H_2 > H_1 > 0$ é aplicado, removido e novamente é medida a magnetização remanente $M_r(H_2)$. O processo é repetido aumentando gradativamente o campo H até a magnetização de saturação ser atingida. A sutileza para traçar essas curvas está na obtenção do estado desmagnetizado inicial que pode ser alcançado por meio de campo magnético externo, desmagnetização AC ou DC, ou por meio de temperatura (desmagnetização térmica).

A desmagnetização DC é obtida com a saturação da magnetização da amostra em um sentido e em seguida são aplicados sucessivos campos H_{des} no sentido oposto ao da saturação inicial. O H_{des} aplicado inicialmente deve ser de baixa amplitude, em seguida removido e verificada a magnetização remanente. Os campos sucessivos são cada vez maiores e o procedimento repetido até a magnetização remanente ser nula [3].

No processo de desmagnetização AC a amostra é submetida a um campo magnético alternado com baixa frequência e amplitude variável. Inicialmente é aplicado um campo intenso para saturar a magnetização, em seguida o campo tem sua amplitude reduzida e é aplicado no sentido oposto, mensurando a magnetização remanente. O procedimento é repetido alternando o sentido do campo com amplitudes cada vez menores invertendo cada vez menos momentos magnéticos até ser alcançado o estado desmagnetizado [3].

Na desmagnetização térmica a amostra é aquecida até uma temperatura maior que a temperatura de Curie e em seguida é resfriada na ausência de campo magnético externo. Assim, os domínios magnéticos ficarão orientados aleatoriamente e a magnetização resultante tende a ser nula. É possível restar uma magnetização residual dependendo da permeabilidade e retentividade do material [5].

O processo de determinação das curvas DCD é semelhante ao das IRM, porém, inicialmente é necessário saturar a magnetização da amostra em um sentido, em seguida o campo aplicado deve ser invertido e iniciado com baixa intensidade, sendo aumentado gradativamente até ser alcançada a saturação magnética no sentido oposto. A cada campo aplicado e retirado, a magnetização remanente $M_d(H_j)$ é mensurada [20].

A $M_r(H_i)$ e a $M_d(H_j)$ estão vinculadas por meio da relação de Wohlfarth (Equação 1.15) que foi desenvolvida para ser aplicada a sistemas não interagentes de mono-domínios

com anisotropia uniaxial, sendo independente da variação de anisotropia ao longo do material [21]. Estes sistemas possuem o ciclo de histerese simétrico e as relações exigem que o estado inicial de desmagnetização para obtenção das curvas IRM tenha sido obtido por meio de desmagnetização térmica ou AC:

$$M_d(H) = M_r(\infty) - 2M_r(H), \quad (1.15)$$

sendo $M_r(\infty)$ a magnetização remanente após a saturação. Dividindo ambos os lados da igualdade por $M_r(\infty)$ temos a versão normalizada:

$$m_d(H) = 1 - 2m_r(H). \quad (1.16)$$

Bissel e colaboradores [22] desenvolveram relações análogas a de Wohlfarth para os casos em que o estado desmagnetizado inicial das curvas IRM é obtido pelo método de desmagnetização DC. As relações entre a $M_r(H_i)$ e a $M_d(H_j)$ neste caso são:

$$m_r^{dc}(H) = 1 - 2m_d(H), \quad \text{se } H < H_r \text{ e} \quad (1.17)$$

$$m_r^{dc}(H) = 1, \quad \text{se } H \geq H_r, \quad (1.18)$$

onde H_r é a coercividade de remanência³.

Os gráficos de $m_r(H) \times m_d(H)$, conhecidos como *Henkel Plots*, têm sido estudados para caracterização das interações magnéticas dominantes em sistemas magnéticos. Os *Henkel Plots* ideais são retas com inclinação -2 para o caso da Equação 1.16 e inclinação -1 para o caso indicado na Equação 1.17. Quando o sistema estudado apresenta uma curva de $m_r(H) \times m_d(H)$ acima desta reta, é considerado como sendo mais fácil magnetizar do que desmagnetizar e possui interações magnetizantes como dominante. Se a curva de $m_r(H) \times m_d(H)$ está abaixo desta reta, é considerado que o sistema é mais difícil magnetizar do que desmagnetizar, ou seja, as interações desmagnetizantes são dominantes [20]. Estas duas situações estão representadas na Figura 10.

³ A coercividade de remanência é dada pelo campo magnético aplicado que resulta em $m_d = 0$.

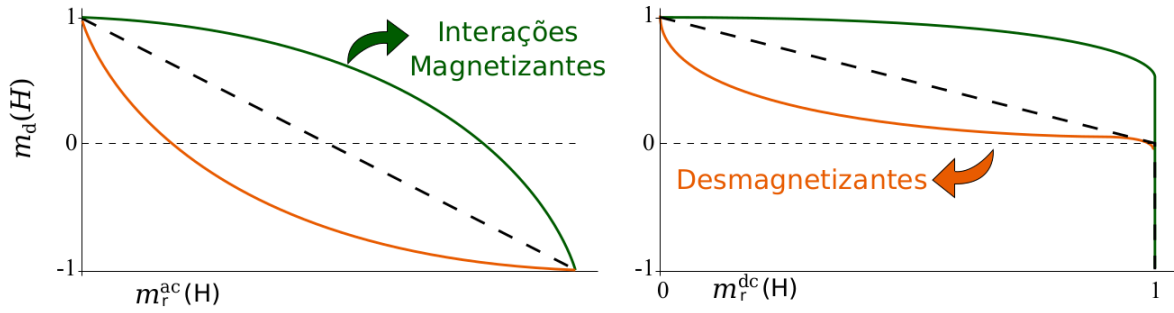


Figura 10 – Desvios dos *Henkel Plots* em relação a reta calculada para sistema de monodomínios magnéticos não interagentes com anisotropia uniaxial, para os casos cujo o estado desmagnetizado inicial é obtido por desmagnetização AC e DC respectivamente.[23].

Uma análise semelhante pode ser feita por meio da plotagem da função δM derivada diretamente das relações mostradas nas Equações 1.16, 1.17 e 1.18. Para os casos cujo o estado inicial das curvas IRM é obtido pelo método de desmagnetização AC ou térmica, temos:

$$\delta M(H) = 2m_r(H) + m_d(H) - 1. \quad (1.19)$$

Quando o estado inicial das curvas IRM é obtido pelo método de desmagnetização DC, temos:

$$\delta M^{dc}(H) = m_r^{dc}(H) + m_d(H) - 1, \quad \text{se } H < H_r \text{ e} \quad (1.20)$$

$$\delta M^{dc}(H) = m_r^{dc}(H) - 1, \quad \text{se } H \geq H_r. \quad (1.21)$$

Para sistemas que seguem as condições impostas por Wohlfarth, é esperado $\delta M = 0$. Em sistemas que não possuem essas características, podemos ter $\delta M \neq 0$ e esta desigualdade tem sido objeto de estudo para indicar as interações dominantes e características de materiais magnéticos. Alguns fatores que podem ser indicados pela desigualdade são: anisotropia não uniaxial, interações entre as partículas, multidomínios magnéticos, efeitos de incoerência de rotação, interações entre os grãos [21].

A $\delta M < 0$ normalmente é atribuída as interações desmagnetizantes como dominantes no sistema, ou seja, as interações desestabilizam a remanência da saturação, como exemplo podemos citar a interação dipolar. A $\delta M > 0$ costuma ser atribuída as interações magnetizantes no sistema como dominantes, que tendem a favorecer o estado magnetizado, como exemplo temos a interação de troca [24].

A Figura 11 apresenta um exemplo de medida experimental de curvas IRM e DCD para um sistema de partículas com monodomínios de Fe revestidas por uma camada de óxido [25]. São apresentadas as curvas IRM medidas para diferentes métodos de obtenção

do estado desmagnetizado inicial. Na Figura 12 estão as respectivas curvas δM obtidas para cada caso correspondente.

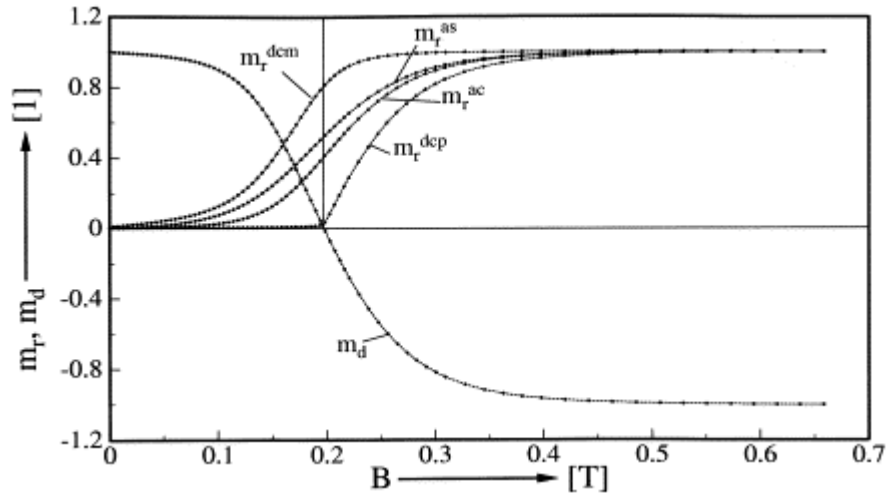


Figura 11 – Curvas de remanência obtidas para partículas de mono-domínios por diferentes processos de desmagnetização [25].

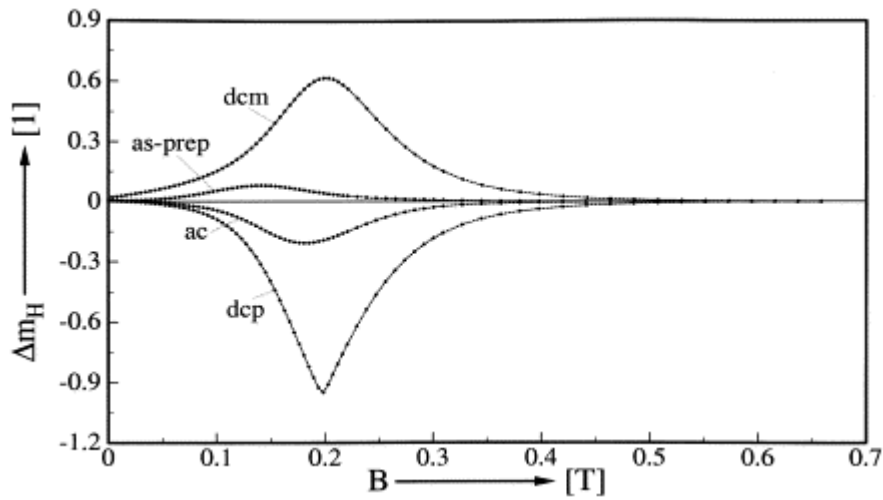


Figura 12 – Curvas de δM obtidas para as curvas da Figura 11 [25].

Nas figuras acima, m_r^{dcm} e m_r^{dcp} referem-se a desmagnetização DC com o campo de saturação aplicado antiparalelo e paralelo, respectivamente, com a direção definida como positiva, m_r^{as} refere-se ao sistema com o estado desmagnetizado obtido durante a produção da amostra e m_r^{ac} ao estado desmagnetizado obtido pelo método AC. Assim, podemos notar a explícita dependência das curvas de remanência com a forma que o estado desmagnetizado é obtido, portanto, utilizando este método só podem ser comparadas medidas cujo os estados iniciais foram alcançados pelo mesmo método.

Também podemos destacar que após o processo de desmagnetização, pode restar uma magnetização residual [26] e o grau de desmagnetização AC pode influenciar em diferentes comportamentos para a magnetização [27]. Funções e integrais generalizadas

tem sido propostas para solução deste problema [28, 29, 30]. Ambos fatores podem levar a erros nas interpretações gráficas dos resultados.

Outra forma de obtenção das mesmas informações que os gráficos clássicos de remanência apresentam foi proposto por Geshev em 2018 [2], por meio de um ciclo principal de histerese e uma curva de recuo. Este método possibilita a caracterização magnética com maior agilidade e facilidade, não necessitando de um estado inicial desmagnetizado e podendo ser aplicado a sistemas que apresentam ciclo de histerese quadrado, que são de difícil desmagnetização. A curva $\delta M(H)$, a partir deste método, é determinada da seguinte forma: primeiro é obtida a curva de histerese e, posteriormente, a curva de recuo partindo de H_s até H_{rec} . Com as duas curvas plotadas, computacionalmente, é obtida uma terceira curva $M_{rec}^{-extended}$ partindo de $H = 0$ e acompanhando a curva de recuo até H_{rec} . Em seguida a curva é estendida de H_{rec} até $-H_s$, acompanhando o ciclo de histerese. Após, a curva de $M_{rec}^{-extended}$ é rotacionada de 180° e plotamos a curva M_{sym} . As curvas são exemplificadas⁴ na Figura 13.

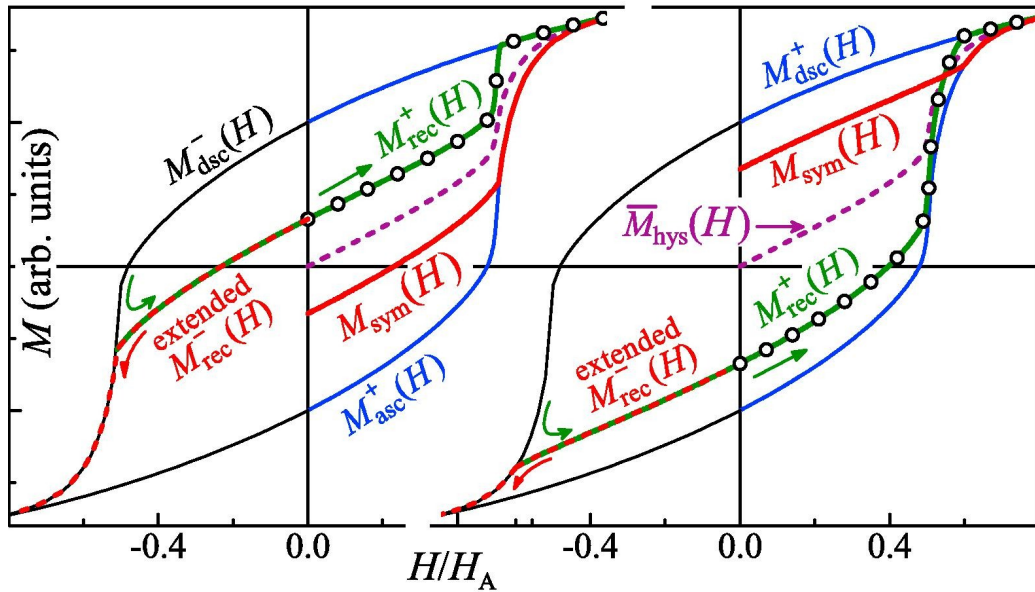


Figura 13 – Curvas idealizadas e utilizadas para derivar as relações entre o ciclo principal de histerese e a curva de recuo [2].

Considerando as partes ascendente (*asc*) e descendente (*dsc*) do ciclo de histerese pode ser demonstrado que:

$$M_{rec} + M_{sym} = M_{dsc}^+ + M_{asc}^+, \quad (1.22)$$

com os M 's sendo as magnetizações de cada curva plotada. Com isso, relação análoga a

⁴ H_A indicado no gráfico, é o campo de anisotropia do material, acima do qual ocorrem apenas rotações reversíveis.

de Wohlfarth pode ser descrita:

$$\bar{M}_{hys}(H) = \frac{M_{dsc}^+ + M_{asc}^+}{2}, \quad (1.23)$$

$$M_{rec}(H) = 2\bar{M}_{hys}(H) - M_{sym}(H) \text{ e} \quad (1.24)$$

$$\delta M_r = M_{rec}(H) + M_{sym}(H) - 2\bar{M}_{hys}(H). \quad (1.25)$$

Esta última forma apresentada de obtenção da curva δM foi a empregada neste trabalho.

2 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Os filmes finos estudados neste trabalho foram crescidos pela técnica de *magnetron sputtering*, no Laboratório de Conformação Nanométrica (LCN) do Instituto de Física da UFRGS (IF-UFRGS). Para caracterização estrutural empregamos as técnicas de difração de raios X (XRD) e refletividade de raios X (XRR), também disponíveis no LCN. Para caracterização magnética utilizamos o Magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM) disponível no Laboratório de Magnetismo (LAM) desta mesma instituição. Neste capítulo serão descritos os procedimentos aplicados para o crescimento e a caracterização dos filmes.

2.1 Fabricação das amostras

Os filmes foram crescidos pelo processo de *sputtering*. Esta técnica tem sido utilizada em laboratórios para a produção destes filmes, pois possibilita a deposição de nanocamadas de estruturas homogêneas de diferentes tipos de materiais, tais como: metais, ligas e dielétricos. Este método também permite o controle de propriedades estruturais, espessura, densidade próxima a densidade de *bulk* e cristalinidade, através do controle dos parâmetros de deposição. Além disso, a técnica permite alta reprodutibilidade dos filmes.

O sistema de deposição disponível no LCN é da empresa AJA International modelo ATC ORION 8, representado na Figura 14. A deposição ocorre na câmara principal, que possui um porta-substratos giratório e 7 canhões magnéticos com dois eletrodos conectados a cada canhão, o cátodo no alvo e o ânodo na chaminé do magnetron. Esses canhões são alimentados por fontes de corrente contínua (DC), de corrente contínua pulsada (DCP) e de corrente alternada (RF), dependendo do alvo a ser bombardeado. Os canhões estão montados em uma configuração confocal ao porta-substratos giratório para manter a homogeneidade das amostras. O sistema de vácuo é composto por uma bomba turbomolecular de ultra-alto vácuo (UHV) acoplada a uma bomba mecânica tipo *scroll* e uma bomba iônica, que permite a pressão de base na câmara de deposição chegar na ordem de 10^{-9} Torr, sendo a ideal para a deposição de filmes de boa qualidade. Para não elevar a pressão na câmara de deposição durante a inserção dos substratos e a retirada das amostras, há uma antecâmara, onde é possível rapidamente alcançar pressões da ordem de 10^{-7} Torr, conectada a câmara principal por uma válvula gaveta manual de UHV. O equipamento também possui um sistema de controle de fluxo de gases (Ar, O₂, N₂) e um sistema de aquecimento acoplado ao porta-substratos que permite depositar amostras a temperaturas de até 850 °C. Os processos são controlados com um software em LabVIEW.

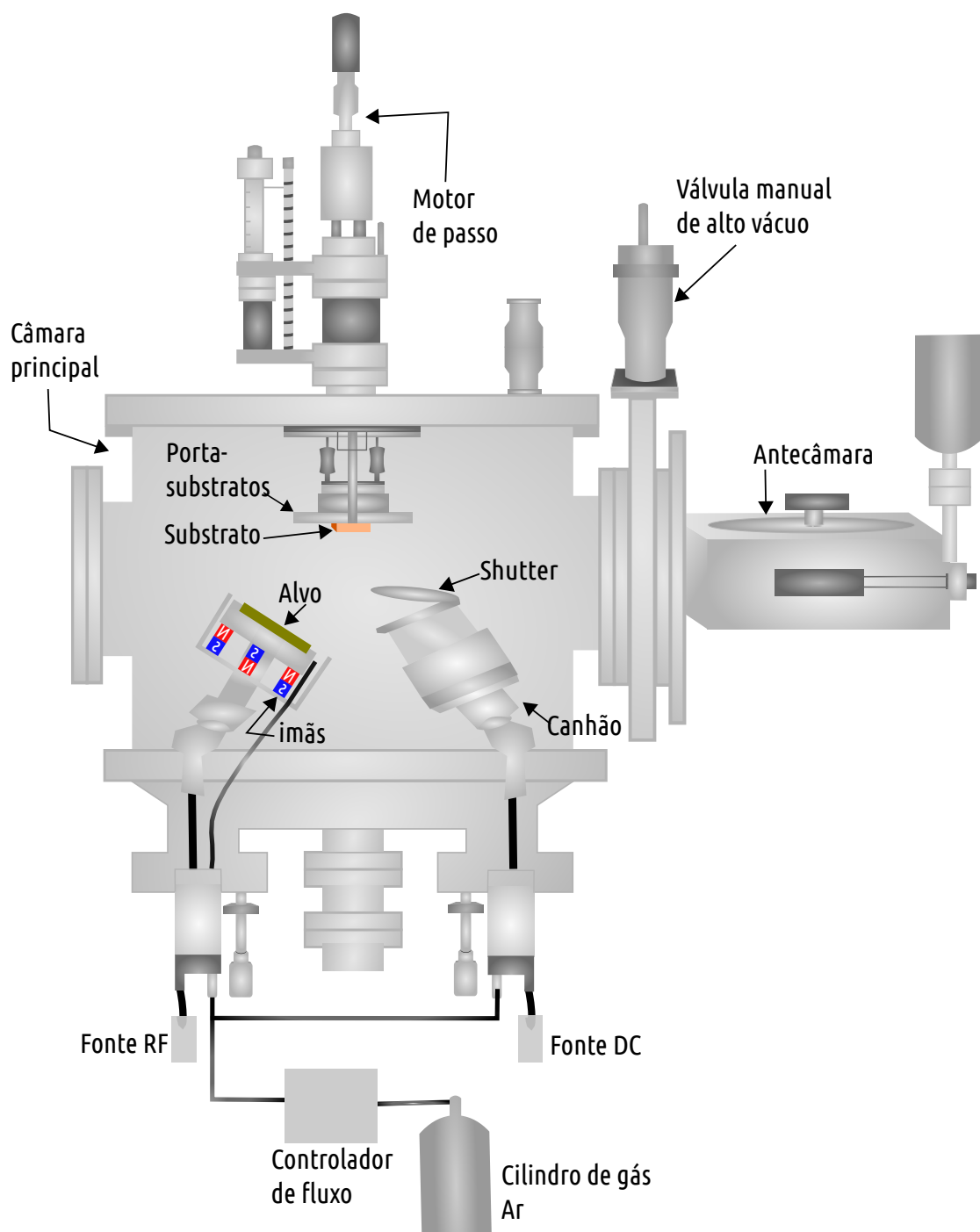


Figura 14 – Representação esquemática do *magnetron sputtering* instalado no LCN do IF-UFRGS.

Todas as amostras foram feitas com pressões de base inferiores a 3×10^{-8} Torr e a temperatura ambiente, mantendo uma distância entre o substrato e o canhão constante de 170 mm e a rotação do porta-substratos a 40 rpm para obtenção de maior homogeneidade das amostras. O fluxo de argônio (Ar) foi mantido constante em 20 sccm (*standard cubic centimeters per minute*) e pressão de 2 mTorr. Utilizamos porta-substratos sem campo magnético aplicado e com campo magnético estático aplicado *in situ* de ~ 2 kOe, quando era desejado induzir um eixo preferencial de anisotropia magnética na camada

ferromagnética.

As amostras estudadas neste trabalho são monocamadas ferromagnéticas de Co e de Ni de diferentes espessuras nanométricas, crescidas sobre substratos de silício (Si(100)) com óxido natural de silício (SiO_2) em sua superfície. Com o intuito de obtermos diferentes cristalinidades nas camadas FMs, utilizamos cromo (Cr) e tântalo (Ta) como camadas sementes (*buffer*) [31]. O Cr e o Ta também serviram para deposição de uma camada protetora (*cap*) em cima da camada FM, a fim de minimizar a oxidação. A Figura 15 apresenta a configuração destas amostras. Usamos fontes DC e RF com potência de 150 W no canhão com alvo de Co e fontes DC com 150 W nos canhões com os alvos de Cr e de Ta. Importante destacar que todos os alvos apresentavam, no mínimo, 99,99% de pureza.

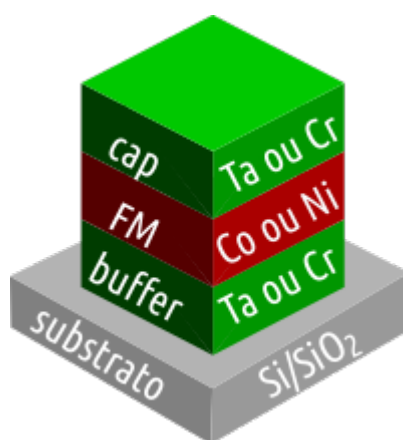


Figura 15 – Representação da estrutura de camadas das amostras estudadas.

Após a fabricação das amostras foram feitas as caracterizações estruturais com as técnicas de análise descritas na seção seguinte.

2.2 Caracterização estrutural

2.2.1 Difração de raios X

É uma das técnicas mais utilizadas nos estudos de cristalografia para obtenção de uma caracterização inicial da estrutura de materiais, sendo definida como método não destrutivo de análise. Os raios X possuem comprimento de onda λ na ordem de 0,1 nm, sendo equivalente a ordem de grandeza das distâncias interatômicas em cristais. Portanto, quando os raios X são incididos em uma amostra, os planos cristalinos funcionam como uma rede de difração tridimensional e, a partir da interação entre a onda eletromagnética e os átomos da matéria, são obtidos os resultados. Esta técnica tem sido muito empregada devido a cada elemento químico e cada fase cristalina apresentarem espectros característicos e utilizando um banco de dados é possível comparar o espectro de raios X obtido com os

espectros conhecidos e informações como composição, tamanho médio de grão, estresse e orientação preferencial da rede cristalina podem ser obtidos [32].

Realizamos as medidas de difração no difratômetro do LCN, representado na Figura 16. O equipamento disponível é da marca Bruker modelo D8 Advance que possui goniômetro configurado na geometria Bragg-Brentano ($\theta - 2\theta$), tubo de raios X com anodo de cobre e emissão de radiação K_α com comprimento de onda $\lambda = 0,154056$ nm. Absorvedores são utilizados para tornar o feixe mais monocromático possível, fendas colimadoras são usadas na saída do tubo e na entrada do detector para colimação dos feixes emitidos e recebidos. Durante o processo de medida, a amostra se mantém estática enquanto o tubo de raios X e o detector são movimentados por motores de passo, fazendo a varredura dos ângulos de medida sempre mantendo a configuração $\theta - 2\theta$ nas medidas de XRD.

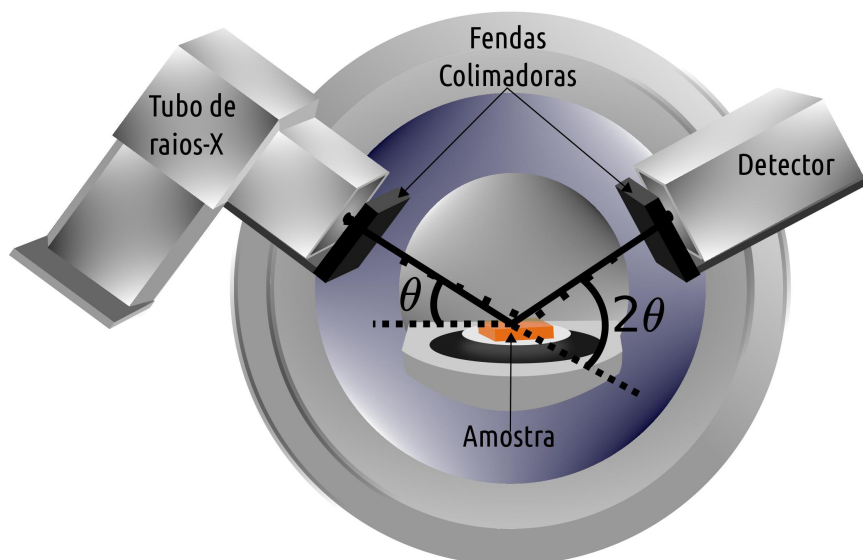


Figura 16 – Representação do difratômetro instalado no LCN do IF-UFRGS.

Para obtenção das informações por XRD é considerado que ao incidir o feixe de raios X sobre os planos cristalinos paralelos ao plano da amostra, ocorre uma reflexão perfeitamente elástica e os raios são espalhados de forma especular ¹. Os raios emitidos, são refletidos em planos diferentes da rede cristalina gerando uma diferença de caminho óptico na trajetória, proporcional ao espaçamento interplanar (d) (veja a Figura 17). A diferença de caminho entre os feixes, o comprimento de onda dos raios X (λ) emitidos e o ângulo de incidência (θ), determinam o padrão de interferência das ondas após serem refletidas. Há uma sobreposição construtiva quando a diferença entre os caminhos óticos percorridos pelos feixes é um múltiplo inteiro (n) de um comprimento de onda, gerando os máximos no espectro obtido. Este comportamento é descrito pela Lei de Bragg:

¹ Refletir especularmente significa que o feixe incidente em uma única direção é refletido em direção única.

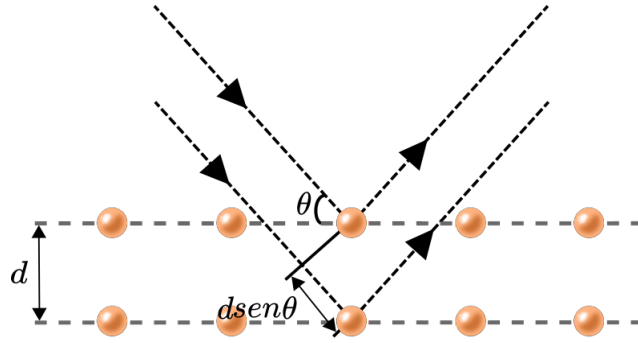


Figura 17 – Difração de raios X por um conjunto de planos atômicos

$$n\lambda = 2d\text{sen}\theta, \quad (n=1,2,3,\dots). \quad (2.1)$$

Como resultado das reflexões sucessivas dos raios X na amostra, é obtido um padrão de interferência identificado por um detector, gerando um espectro da intensidade recebida em função dos diferentes ângulos de incidência dos raios X.

Vale destacar que apesar da Lei de Bragg descrever as interferências dos feixes de raios X de forma simples, é sabido que a interação da radiação ocorre com os elétrons dos átomos. Ao incidir a onda eletromagnética sobre a rede cristalina, os elétrons interagem com a radiação e adquirem energia desprendendo-se dos átomos. Isso causa uma vacância nas camadas eletrônicas e quando ocorre em uma camada mais interna, ou seja, menor nível de energia, o elétron que está na camada mais externa salta para o nível de menor energia liberando energia na forma de um fóton que possui a mesma energia da diferença entre os níveis energéticos [33]. Essas ondas espalhadas pelos elétrons que são identificadas pelo detector.

Os picos do espectro de difração do cristal perfeito são representados por uma função delta de Dirac, ou seja, estreito e com alta intensidade, com todas as interferências acontecendo em um único ângulo. Para um material amorfo, os picos do espectro de difração são largos e pouco intensos, isso ocorre devido ao material amorfo não ter uma orientação cristalina definida e as interferências ocorrem para vários ângulos [32]. As nossas amostras são filmes policristalinos, isto é, apresentam mais de uma orientação cristalina. O espectro obtido indica estas orientações que, através de comparação com as fichas cristalográficas, podemos descobrir se existiu alguma direção preferencial de crescimento do filme e o comprimento de alcance da ordem cristalina, analisando a intensidade e a largura dos picos. Utilizando a fórmula de Scherrer (Equação 2.2) é possível calcular o tamanho dos cristalitos (grãos), perpendicular a superfície do filme, de uma dada orientação [32]:

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta_B}, \quad (2.2)$$

sendo K a constante de Scherrer, um fator de forma do grão, λ o comprimento de onda dos raios X incidentes, β a largura a meia altura do pico de difração em radianos e θ_B o ângulo de Bragg do pico difratado. Os valores típicos da constante K estão entre 0,82 e 1,2 [34], dependendo da simetria do cristal. Adotamos $K=0,9$, sendo esta uma boa aproximação na ausência de informações do cristal.

2.2.2 Refletividade de raios X

Quando a difração de raios X é aplicada para ângulos rasantes ($2\theta < 10^\circ$) é chamada de refletividade de raios X. Como consequência da diminuição do ângulo de incidência, ocorre uma menor penetração dos feixes nas camadas da amostra, aumentando a propagação da onda próxima a superfície do filme, não sendo a técnica sensível a estrutura cristalina do material. Assim, a técnica de XRR fornece informações de características como densidade, rugosidade e espessura das nanocamadas estudadas. A técnica de XRR é utilizada para análise de filmes com espessuras na faixa de 2 a 200 nm com superfícies relativamente suaves e lisas, podendo o material ser cristalino ou amorfo [35].

Ao serem incididos com um θ pequeno sobre a superfície do filme, os feixes são transmitidos e refletidos simultaneamente a partir de um ângulo crítico (θ_c)². Como as ondas eletromagnéticas passam a propagar-se em meios com diferentes índices de refração, ao atravessar a superfície do filme os raios X transmitidos são desviados em relação a trajetória inicial. Esta onda refratada sofrerá novos processos de refração e reflexão na próxima interface interna que pode ser camada/camada ou camada/substrato, gerando sucessivas sobreposições das ondas. As ondas refletidas em camadas subsequentes terão uma diferença entre os caminhos óticos que é proporcional a espessura da camada do filme (t) (veja a Figura 18), podendo gerar interferências construtivas para diferentes ângulos que são caracterizadas pela refletividade de Fresnel e são moduladas por oscilações gerando as franjas de Kiessig identificadas pelo detector [33]. Para este caso, podemos ter uma aproximação modificando a Lei de Bragg ($\theta \Rightarrow \theta_r$):

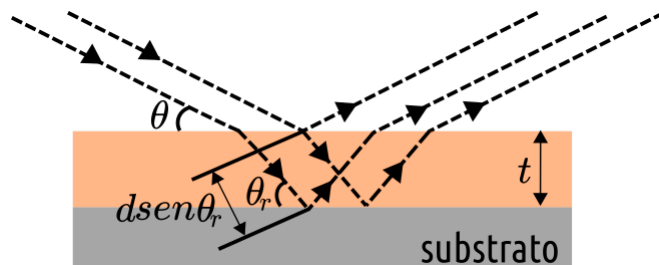


Figura 18 – Raios X incidentes sobre a superfície do filme sofrendo processos de refração e reflexão. Em seguida o feixe refratado é refletido na interface camada/substrato.

² θ_c é o ângulo que ocorre a reflexão externa total dos raios refletidos na superfície da amostra.

$$n\lambda = 2t\text{sen}\theta_r, \quad (n=1,2,3,\dots), \quad (2.3)$$

onde n indica um máximo da franja de Kiessig. Sendo o índice de refração da camada $n_i = 1 - \delta - i\beta$, em que δ e β representam os coeficientes de absorção e espalhamento do material, considerando a interface ar/camada, podemos relacionar o ângulo do raio de incidência com o ângulo do raio refratado pela Lei de Snell:

$$n_i \cos(\theta_r) = \cos(\theta) \quad \text{e} \quad (2.4)$$

reescrevendo a Equação 2.3 considerando a parte real de n_i , temos:

$$\text{sen}^2\theta = (n\lambda/2t)^2 + 2\delta, \quad (2.5)$$

sendo $\sqrt{2\delta} = \theta_c$. Desta forma, plotando um gráfico da posição angular do pico da intensidade máxima ao quadrado pelo quadrado da posição da franja teremos uma reta, onde a espessura do filme é proporcional ao coeficiente angular desta reta [33].

2.2.2.1 Calibração da taxa de deposição

A fim de calibrar as taxas de deposição, foram crescidos filmes dos alvos desejados com os mesmos parâmetros e configurações experimentais a serem utilizadas na deposição das amostras que seriam estudadas. Com o uso da técnica de XRR, as espessuras das amostras foram estimadas e conseqüentemente as taxas de deposição de cada alvo.

Conforme visto anteriormente, é possível obter a espessura do filme pela relação de $\text{sen}^2(\theta) \times n^2$. Também é usual definir o vetor de espalhamento $q = \frac{4\pi\text{sen}\theta}{\lambda}$ e plotar um gráfico do vetor de espalhamento q em função da ordem n da franja de Kiessig. A espessura t é inversamente proporcional ao coeficiente angular α da reta do gráfico $q \times n$:

$$t = \frac{2\pi}{\alpha}. \quad (2.6)$$

Sabendo a espessura da amostra (t) e o tempo (T) na qual foi realizado a deposição, temos a taxa de deposição (τ) da amostra:

$$\tau = \frac{t}{T}. \quad (2.7)$$

Nas figuras abaixo é mostrado um exemplo de calibração da taxa de deposição para o alvo de Ta sobre substrato de Si(100) com óxido natural (SiO₂). Na Figura 19 temos o XRR obtido para a amostra padrão, onde é possível identificar as franjas de Kiessig e as posições angulares nas quais temos as intensidades máximas das interferências. Já na Figura 20 temos a curva do vetor de espalhamento em função do número da interferência, bem como o ajuste linear e a respectiva função.

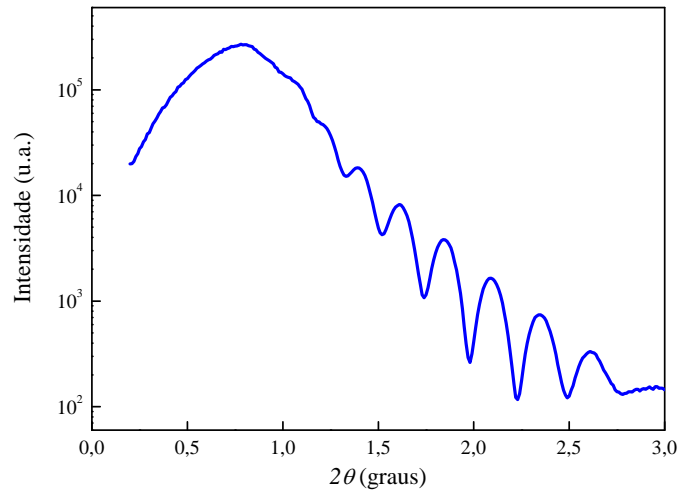


Figura 19 – Espectro de XRR usado para calibração da taxa de deposição do alvo de Ta sobre substrato de Si(100).

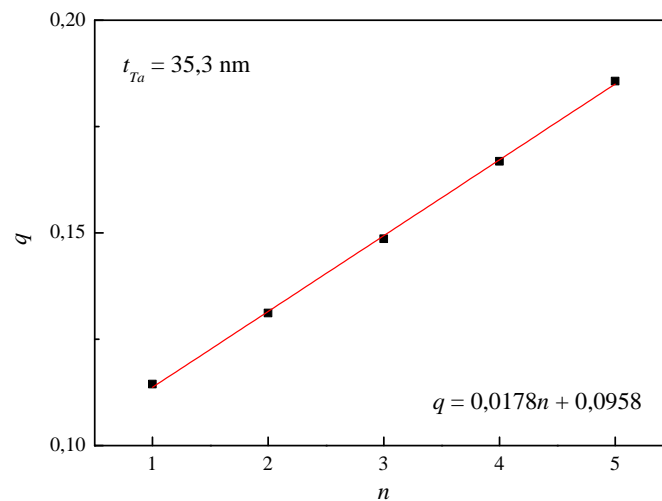


Figura 20 – Curva de ajuste do vetor de espalhamento em função da posição dos máximos das franjas de Kiessig, obtida para o espectro da Figura 19.

Na Tabela 1 são apresentadas as taxas de deposição juntamente com os parâmetros experimentais usados para todos os alvos utilizados neste trabalho.

Alvo utilizado	Taxa de deposição ($\text{\AA}/\text{s}$)	Tipo de fonte	Potência (W)	Tensão (V)	H (kOe)
Co	1,10	DC	150	395	2
Co	0,92	DC	150	390	0
Cr	1,02	DC	150	440	2
Ni	1,14	DC	150	386	2
Ta	1,47	DC	200	385	2

Tabela 1 – Parâmetros e taxas de deposição dos alvos utilizados.

As medidas de XRR foram realizadas no mesmo difratômetro descrito na seção anterior, disponível no LCN do IF-UFRGS.

2.3 Caracterização magnética

A caracterização magnética consiste em executar a medida de magnetização na amostra em função de um campo magnético externo aplicado, podendo ser a uma temperatura fixa e variando o campo magnético ou variando a temperatura e mantendo o campo externo fixo, sendo possível plotar diferentes curvas de acordo com o que se deseja observar, conforme visto no Capítulo 1. Neste trabalho, as amostras foram caracterizadas por magnetometria de amostra vibrante, que é uma técnica altamente sensível aos momentos magnéticos, da ordem de 10^{-7} emu, com agilidade na geração de dados. O seu princípio de funcionamento é baseado na Lei de indução de Faraday, utilizando um sistema de bobinas (eletroímã) para geração de um campo magnético uniforme capaz de magnetizar a amostra, um sistema eletromecânico responsável por vibrar a amostra e um sistema de bobinas sensoras para captação da força eletromotriz induzida [36] pelos momentos magnéticos da amostra.

O VSM disponível no LAM é da marca MicroSense e modelo EZ9, capaz de gerar campo magnético de até 22 kOe e variações de temperatura na faixa de 77 a 1000 K. É possível realizar medidas na amostra com orientação fixa ou variando a posição angular em relação a direção do campo magnético aplicado. A Figura 21 representa um diagrama simplificado da montagem experimental do VSM.

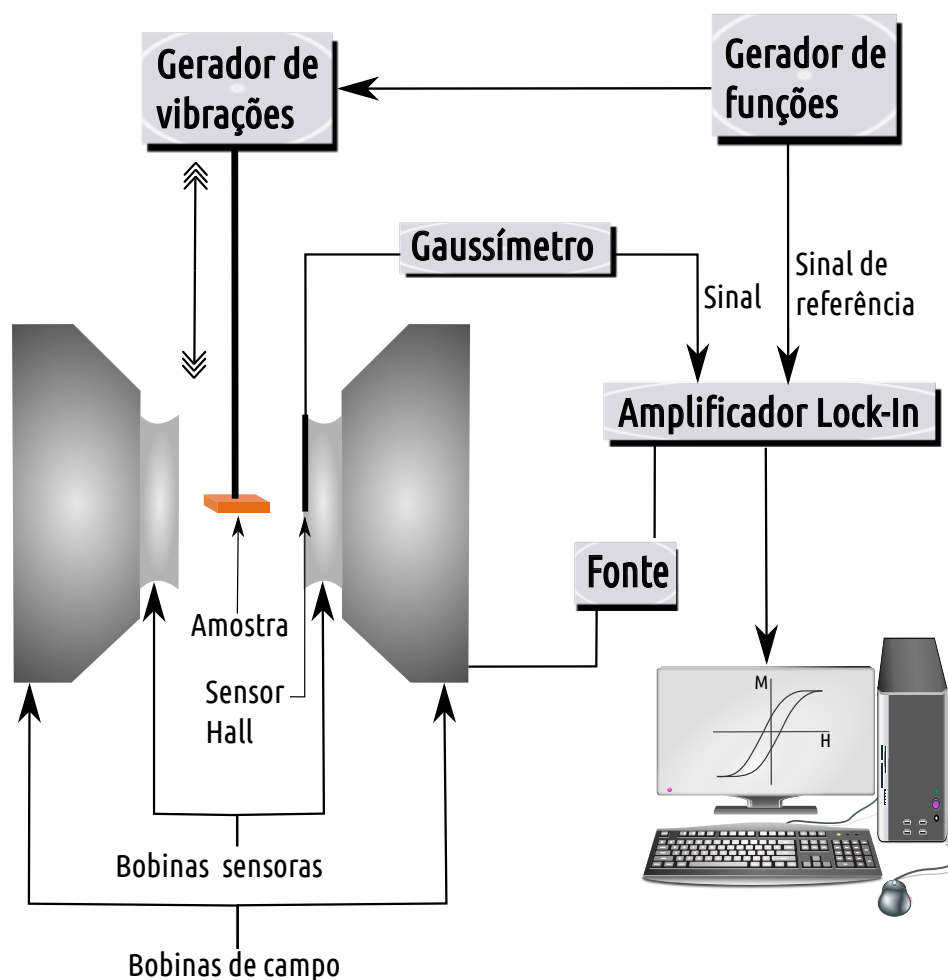


Figura 21 – Representação esquemática do VSM disponível no LAM do IF-UFRGS.

Para realização das análises, a amostra é fixada na extremidade da haste rígida diamagnética e colocada alinhada ao centro das bobinas sensoras. A outra extremidade da haste é encaixada no sistema eletromecânico que irá provocar oscilações longitudinais na haste na direção vertical. O conjunto de bobinas do eletroímã é utilizado para indução de momentos magnéticos na amostra por meio da aplicação de um campo magnético que pode ser no plano da amostra ou na direção perpendicular a esse plano. Estando magnetizada a amostra e executando um movimento oscilatório, é induzida uma fem alternada nas bobinas sensoras, que é proporcional à magnetização. Um amplificador de sinais (*Lock-in*) é utilizado para aumentar a sensibilidade da técnica, onde o sinal de referência para o *Lock-in* é dado com a calibração do equipamento utilizando amostras de níquel padrão com momentos magnéticos e massas conhecidos.

Todas as amostras estudadas foram caracterizadas a temperatura ambiente. As curvas de magnetização foram plotadas em relação ao eixo fácil e ao eixo difícil de magnetização. Também foram obtidas os ciclos principais de histerese para orientações específicas, bem como as curvas de recuo.

3 Resultados e Discussão

Neste capítulo serão apresentados os principais resultados obtidos na pesquisa para as amostras com estruturas Ta/Co/Ta, Ta/Ni/Ta e Cr/Co/Cr crescidas sobre substrato de Si com óxido nativo SiO₂. Na Tabela 2 são mostradas as composições destas amostras. A discussão inicia-se na seção 3.1 com a análise da caracterização estrutural por difração de raios X, seguindo para a seção 3.2 onde são apresentadas as caracterizações magnéticas por magnetometria de amostra vibrante na seguinte sequência: primeiro as curvas principais de histerese para os eixos de fácil e de difícil magnetizações, seguindo com a discussão do colapso do eixo duro e, por fim, a apresentação das curvas de recuo bem como a discussão dos principais resultados deste trabalho.

Amostra
Ta(18 nm)/Co(10 nm)/Ta(18 nm)
Ta(18 nm)/Co(15 nm)/Ta(18 nm)
Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm)
Ta(18 nm)/Co(150 nm)/Ta(18 nm)
Cr(20 nm)/Co(5 nm)/Cr(15 nm)
Cr(17 nm)/Co(5 nm)/Cr(17 nm)
Cr(10 nm)/Co(5 nm)/Cr(15 nm)
Cr(17 nm)/Co(20 nm)/Cr(17 nm)
Ta(18 nm)/Ni(20 nm)/Ta(18 nm)
Ta(18 nm)/Ni(75 nm)/Ta(18 nm)

Tabela 2 – Estruturas dos filmes finos fabricados e estudados.

Usamos a técnica de XRD para a identificação das texturas cristalinas presentes nas amostras e para a estipulação do tamanho médio dos cristalitos por meio da relação de Scherrer (Equação 2.2). Para comparação dos valores dos ângulos dos picos fundamentais de cada elemento que satisfazem a condição de difração, usamos a base de dados ICDD (*International Centre for Diffraction Data*).

As medidas de magnetização foram realizadas a temperatura ambiente, ≈ 300 K, mensurando a curva de histerese para ângulos ϕ iguais a 0° e a 90° para todas as amostras. Em seguida foram medidas as magnetizações remanentes em função dos ângulos ϕ e determinado novos valores de ângulos, com base nos parâmetros que serão descritos na seção 3.2, para realização de novas curvas principais de histerese e das curvas de recuo. O ângulo ϕ é medido a partir da direção do campo magnético de 2 kOe aplicado *in situ*, no plano da amostra (veja a Figura 22). Para ajuste fino, é feita uma medida de magnetização remanente em função do ângulo ϕ , aplicando um campo magnético suficiente para saturar magneticamente a amostra e mensurando a magnetização remanente com passo de 1° . A

leitura da magnetização é realizada tanto na direção x, que é paralela ao campo, quanto na direção y que é ortogonal ao campo, indicando a magnetização na outra direção no plano do filme. O eixo de anisotropia induzida, ou seja, de fácil magnetização é identificado pela minimização da magnetização remanente na direção y.

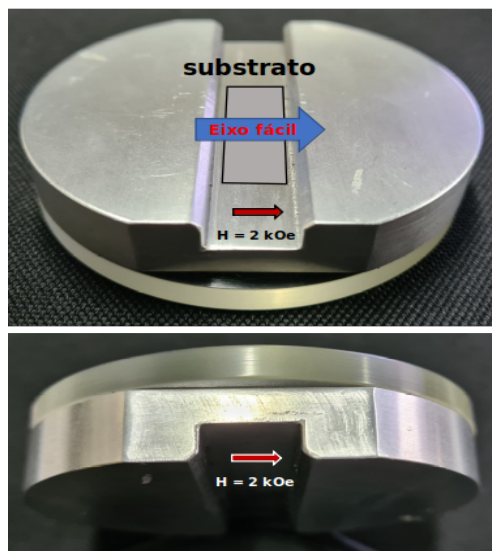


Figura 22 – Foto do porta-substratos magnético com $H = 2$ kOe, utilizado para deposição das amostras com campo magnético aplicado *in situ*.

A curva de magnetização obtida na direção do eixo fácil foi definida como $\phi = 0^\circ$ e, para obter a curva de magnetização no eixo de difícil magnetização, a amostra é rotacionada de 90° em relação ao eixo fácil e em seguida realizada a medida, por isso, este eixo foi definido como $\phi = 90^\circ$. No eixo $\phi = 0^\circ$ o campo coercivo e a magnetização remanente são máximos. Para as amostras que foram fabricadas sem a aplicação do campo magnético *in situ*, por não ter uma forte indução do eixo de anisotropia, foi realizada a medida de magnetização remanente em função do ângulo do H aplicado, identificando o eixo de fácil magnetização pela maximização do sinal da magnetização na direção x e a minimização do sinal da magnetização na direção y. As medidas magnéticas em uma mesma amostra foram realizadas em sequência, sem retirar a amostra da haste do VSM.

Nota-se nas medidas de magnetização das amostras com campo magnético aplicado *in situ*, a clara existência de um eixo de anisotropia uniaxial, além disso a anisotropia de forma mantém a magnetização no plano dos filmes.

Em todos os gráficos as linhas são guias para os olhos e não representam os pontos experimentais, que são representados pelos símbolos.

3.1 Caracterização estrutural

Na fabricação de nanocamadas, o elemento sobre o qual elas serão depositadas torna-se essencial para alcançar algumas propriedades desejadas. Este fator afeta tanto a microestrutura como a cristalinidade das camadas. Fizemos os crescimentos das camadas de Co sobre *buffer* de Ta e Cr e observamos a influência direta destas camadas sementes na estrutura cristalina do Co. Entre os fatores que influenciam nesta situação, estão as diferentes densidades eletrônicas, os diferentes parâmetros de rede e estruturas cristalinas que possuem esses elementos químicos. Apesar dos filmes crescidos por *sputtering* tenderem a ser policristalinos lateralmente, as redes cristalinas buscam uma configuração de menor energia de modo a diminuir a discordância média entre os parâmetros nas interfaces (*mismatch*). Portanto, diferentes parâmetros de rede das camadas podem induzir diferentes texturas cristalinas nos filmes. A determinação do *mismatch* pode ser realizada utilizando a relação:

$$n = \frac{a - a_f}{a}, \quad (3.1)$$

em que a_f e a são os parâmetros de rede da camada do filme e do *buffer* (ou substrato), respectivamente.

Os difratogramas das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm) da Figura 23, mostram nitidamente, para todos os filmes, os picos de intensidade na posição $2\theta = 33,57^\circ$, que correspondem ao pico fundamental de Ta com estrutura tetragonal no plano (200). Também podemos observar maior intensidade dos picos entre $2\theta = 44,22^\circ$ e $2\theta = 44,76^\circ$ que são característicos do Co com estrutura cúbica de corpo centrado (fcc) no plano (111) e Co com estrutura hexagonal compacta (hcp) no plano (002), respectivamente. É possível observar que com o aumento da espessura da camada de Co, há um deslocamento da intensidade do pico de difração do ângulo $2\theta = 44,22^\circ$ no sentido do ângulo $2\theta = 44,76^\circ$, sugerindo que o Co está presente nas duas fases cristalinas e que as primeiras camadas de Co crescem com estrutura cristalina cúbica, enquanto as camadas superiores crescem, preferencialmente, com estrutura cristalina hexagonal. Atribuímos este fato ao descasamento dos parâmetros de rede que induz micro-stress nas interfaces das camadas *buffer* e ferromagnética, resultando na compressão de uma camada e na tensão do outro material no intuito de atingirem uma discordância menor dos parâmetros de rede. Esta tensão tende a aumentar com o crescimento de mais camadas atômicas, até um limite em que o aumento na energia interna do material passa a ser maior que a tensão superficial, sendo mais vantajoso para os átomos se reorganizarem para diminuir a tensão no volume.

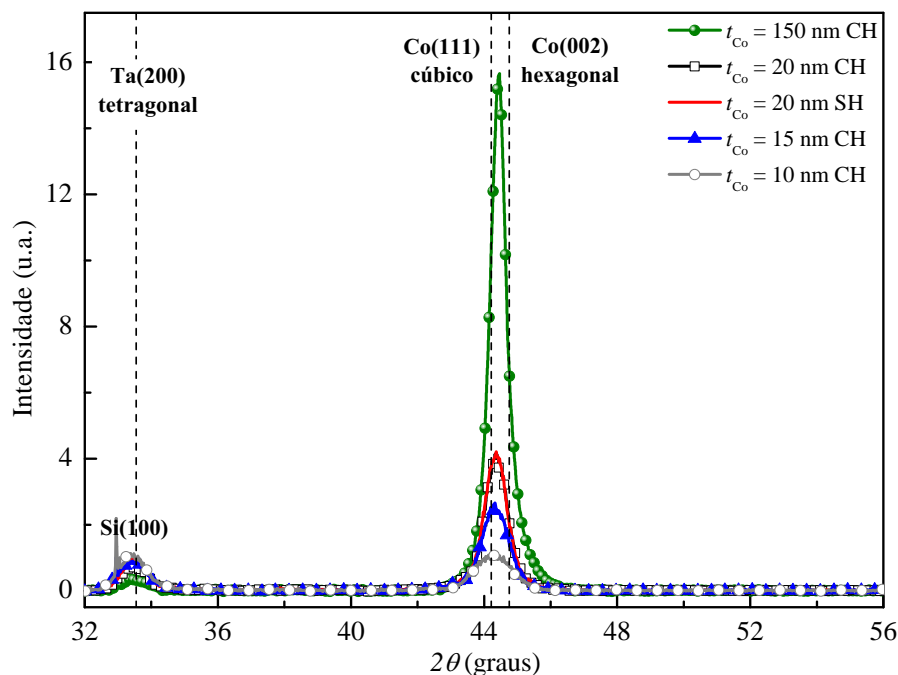


Figura 23 – Difração de raios X das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm). Na legenda o CH (ou SH) indica com (ou sem) H aplicado *in situ*.

A Tabela 3 apresenta os parâmetros das camadas de Co, tais como: ângulo de intensidade máxima (2θ), espaçamento interplanar (d), largura a meia altura do pico de Bragg (FWHM) e o tamanho médio do cristalito (D) (considerando $\beta = 0,9$ na Equação de Scherrer 2.2).

t_{Co} (nm)	2θ (°)	d (nm)	FWHM	D (nm)
10	44,260	2,045	1,321	6,5
15	44,322	2,042	0,954	9,0
20	44,485	2,035	0,818	10,5
20*	44,363	2,040	0,819	10,5
150	44,444	2,037	0,570	15,1

Tabela 3 – Parâmetros das camadas de Co extraídos das difrações de raios X das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm). O * indica a única amostra que foi crescida sem H aplicado *in situ*.

A análise dos dados extraídos da Figura 23, permite concluir que com o aumento da espessura da camada de Co, os picos tendem a ser mais intensos, implicando que a fase cristalina do Co torna-se mais estável naquela direção preferencial de crescimento. Além disso, comparando a evolução do tamanho médio dos cristalitos, no plano paralelo a superfície do filme, podemos observar um aumento de 6,5 nm para 15,1 nm, portanto a rede cristalina tende a ser mais extensa com o aumento da espessura da camada de Co. Também foi possível constatar que a aplicação do campo magnético *in situ* não implicou em melhor (ou pior) indução de orientação preferencial de crescimento, ou seja, não induziu

uma textura cristalina diferente, a influência do campo magnético pode ser observada na taxa de deposição dos alvos, que no caso com o campo magnético aplicado obteve-se uma maior taxa de deposição.

Na Figura 24, temos os difratogramas de raios X das amostras de Co com *buffer* de Cr. Os gráficos mostram que sobre *buffer* de Cr, a camada de Co tende a crescer mais policristalina, sem uma direção preferencial de crescimento bem definida. Podemos observar para todas as medidas, tanto para $t_{Co} = 20$ nm quanto para $t_{Co} = 5$ nm, um pico de difração de pouca intensidade próximo a posição correspondente ao pico fundamental de Co com estrutural hexagonal no plano (002). Variamos a espessura do *buffer* para observação de possíveis influências no crescimento do Co. As medidas não apresentaram variações significantes, sugerindo que a espessura do *buffer* não oferece influência direta sobre as camadas subsequentes. Além disso, utilizamos fontes de RF e DC, durante a deposição do alvo de Co e também não identificamos mudanças significativas nos resultados, apenas alteração na taxa de deposição do Co que é reduzida com o uso da fonte RF, já esperado.

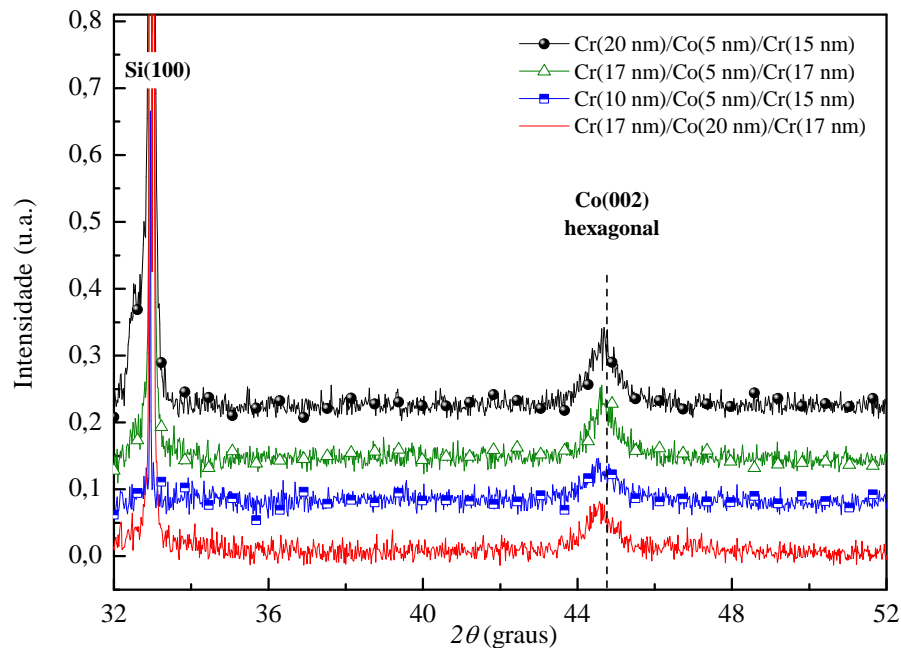


Figura 24 – Difração de raios X das amostras de $Cr(t_{Cr} \text{ nm})/Co(t_{Co} \text{ nm})/Cr(t_{Cr} \text{ nm})$ com H aplicado *in situ*.

Portanto, podemos observar que o *buffer* de Ta induziu uma melhor textura cristalográfica na camada de Co em comparação com o *buffer* de Cr.

Os gráficos de XRD das amostras com estrutura Ta/Ni/Ta, amostras produzidas com H aplicado *in situ*, estão apresentados na Figura 25. É possível observar os picos de intensidade na posição $2\theta = 44, 51^\circ$, correspondente ao pico fundamental de Ni com estrutura cúbica de corpo centrado no plano (111). Assim, como no caso dos filmes de Co crescidos sobre Ta, podemos notar um aumento na intensidade do pico difratado com o

aumento da espessura da camada de Ni, t_{Ni} , juntamente com o aumento do tamanho do cristalito. Além disso, a alta intensidade dos picos indica que as camadas de Ni crescidas sobre Ta apresentam estruturas cristalográficas tão bem definidas quanto as de Co.

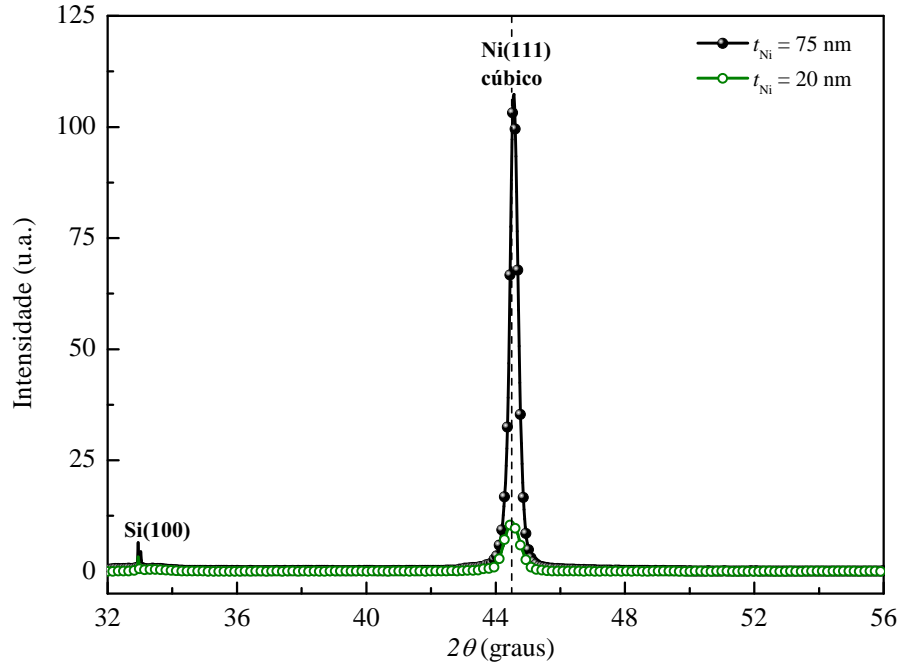


Figura 25 – Difração de raios X das amostras de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado *in situ*.

t_{Ni} (nm)	2θ ($^{\circ}$)	d (nm)	FWHM	D (nm)
20	44,465	2,036	0,585	14,7
75	45,567	2,031	0,304	28,2

Tabela 4 – Parâmetros das camadas de Ni extraídos das difrações de raios X das amostras de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm).

3.2 Caracterização magnética

A realização das medidas dos ciclo de histerese foram realizados utilizando um campo magnético externo inicial sempre suficiente para alcançar a magnetização de saturação da amostram, isto é, existirem apenas processos reversíveis de magnetização. Os passos de medidas adotados no VSM para cada tipo de estrutura das amostras são apresentado na Tabela 5 abaixo:

Elementos da amostra	Intervalo de campo	passo
Ta/Co	500 - 100 Oe	50 Oe
	100 - 60 Oe	10 Oe
	60 - 0 Oe	2 Oe
Ta/Ni	500 - 100 Oe	50 Oe
	100 - 60 Oe	10 Oe
	60 - 0 Oe	2 Oe
Cr/Co	1000 - 500 Oe	50 Oe
	500 - 400 Oe	25 Oe
	400 - 0 Oe	5 Oe

Tabela 5 – Passos de campo magnético empregados no VSM para realização das medidas de caracterização magnética de acordo com a estrutura das amostras.

As medidas de magnetização para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$ da amostra de Ta/Co(20 nm)/Ta, sem H aplicado *in situ* estão apresentadas na Figura 26. Apesar de não ter sido aplicado campo magnético *in situ*, esta amostra apresenta uma direção preferencial de magnetização. Além disso, tanto na direção de fácil quanto na direção de difícil magnetização não há reversão abrupta da magnetização.

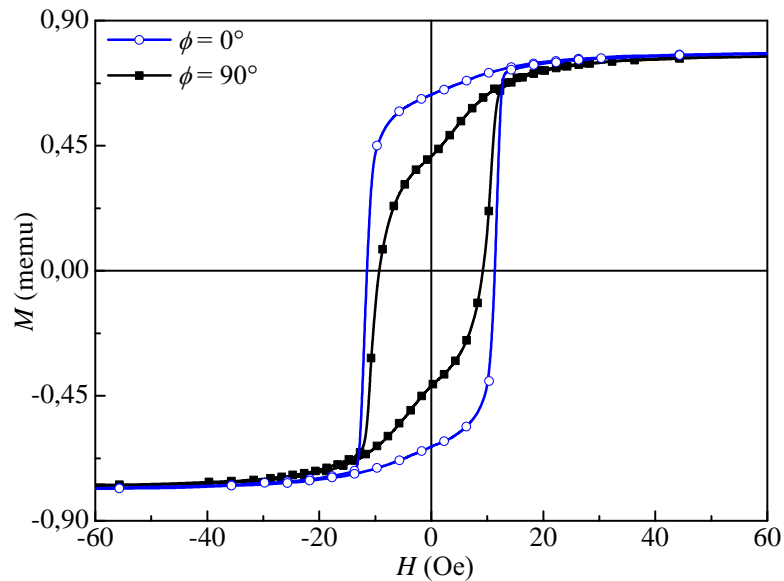


Figura 26 – Curvas de histerese para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$ da amostra de Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) fabricada sem H aplicado *in situ*.

A Tabela 6 contém um resumo das informações magnéticas extraídas da Figura 26. São apresentados os valores de campo coercivo e da magnetização remanente normalizada pela magnetização de saturação, que indica o quão abrupta é feita a reversão da magnetização, para $\phi = 0^\circ$, $H_{c,\phi=0}$ e $\frac{M_r}{M_s}_{\phi=0}$, respectivamente, também para $\phi = 90^\circ$, $H_{c,\phi=90}$ e $\frac{M_r}{M_s}_{\phi=90}$, respectivamente.

t_{Co} (nm)	$H_{c,\phi=0}$ (Oe)	$\frac{M_r}{M_s}_{\phi=0}$	$H_{c,\phi=90}$ (Oe)	$\frac{M_r}{M_s}_{\phi=90}$
20	11	0,80	9	0,53

Tabela 6 – Resumo das propriedades magnéticas das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm) sem H aplicado *in situ*.

Analisando as amostras com estruturas de Ta/Co/Ta com H aplicado *in situ*, gráficos da Figura 27, as curvas de histerese para $\phi = 0^\circ$ são praticamente retangulares em todos os casos, $\frac{M_r}{M_s} \sim 1$, mostrando uma abrupta reversão de magnetização, ou seja, mudança do estado de magnetização do sistema de $+M_s$ para $-M_s$, ou vice-versa, apontando que todos os momentos magnéticos tendem a mudar seu sentido simultaneamente, indicando o alinhamento e acoplamento de troca entre eles nesta direção, como esperado neste eixo devido a anisotropia uniaxial induzida com H aplicado *in situ* nestas amostras. Isto pode ser notado pelo fato da magnetização mensurada no plano do filme na direção ortogonal a de aplicação de H , poder ser praticamente negligenciada para $\phi = 0^\circ$ (Veja na Figura 27, amostra com $t_{\text{Co}}=150$ nm).

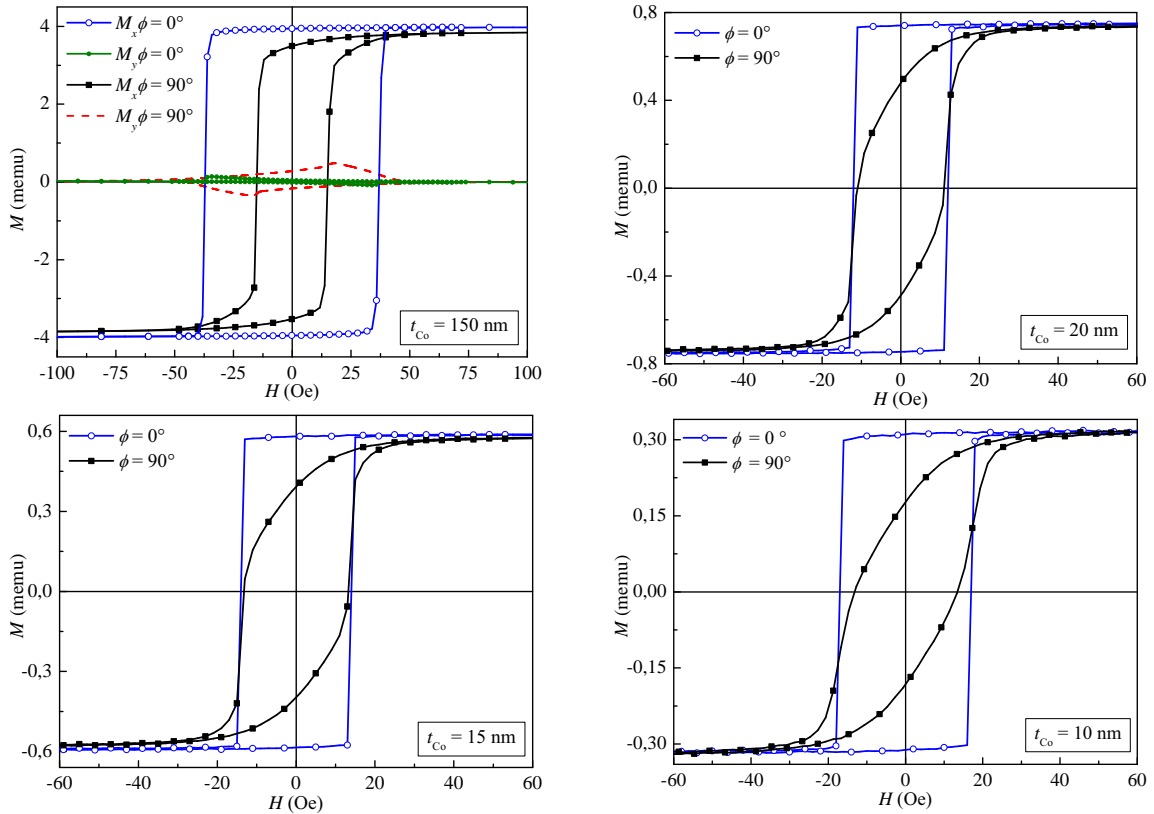


Figura 27 – Curvas de histerese para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$ das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm) fabricadas com H aplicado *in situ*.

A Tabela 7 contém um resumo das informações magnéticas extraídas das curvas de magnetização da Figura 27.

t_{Co} (nm)	$H_{c,\phi=0}$ (Oe)	$\frac{M_r}{M_s}_{\phi=0}$	$H_{c,\phi=90}$ (Oe)	$\frac{M_r}{M_s}_{\phi=90}$
10	17	0,98	13	0,56
15	14	0,98	13	0,66
20	12	0,99	11	0,62
150	37	0,99	15	0,77

Tabela 7 – Resumo das propriedades magnéticas das amostras de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado *in situ*.

Nas curvas de histerese obtidas para $\phi = 90^\circ$, é possível visualizar maiores valores da razão M_r/M_s para as camadas de Co mais espessas. O aumento desta razão nos sugere que para as amostras com a mesma estrutura, maiores espessuras de Co tendem a favorecer o estado magnetizado. Isto ocorre pois a anisotropia de superfície exerce maior influência sobre filmes de espessuras menores e com o aumento da espessura há o decréscimo desta anisotropia, bem como dos efeitos dipolares. O mesmo comportamento pode ser observado nos ciclos principais de histerese das amostras de Co com *buffer* de Cr, Figura 28 e Tabela 8, na qual $M_r/M_s = 0,87$ e $0,92$ para t_{Co} de 5 nm e de 20 nm, respectivamente.

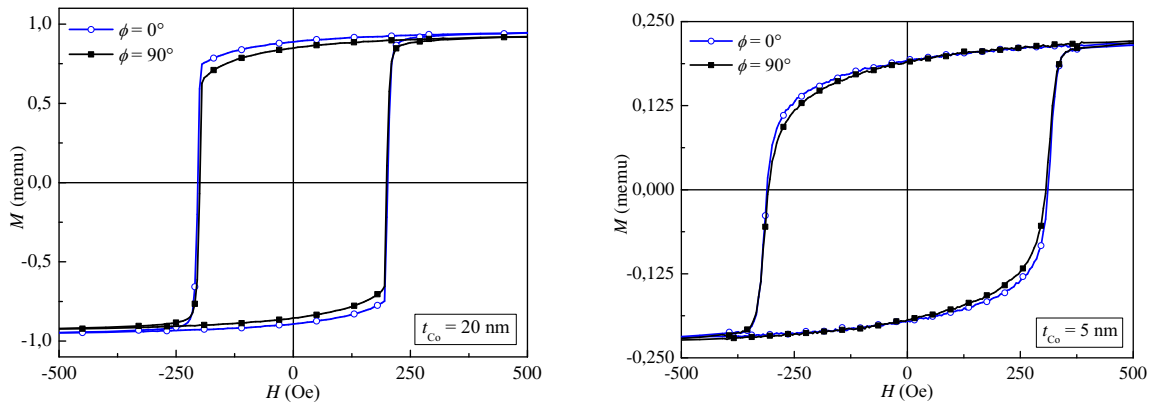


Figura 28 – Curvas de histerese para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$ das amostras de Cr(17 nm)/Co(t_{Co} nm)/Cr(17 nm) fabricadas com H aplicado *in situ*.

t_{Co} nm	$H_{c,\phi=0}$ (Oe)	$\frac{M_r}{M_s}_{\phi=0}$	$H_{c,\phi=90}$ (Oe)	$\frac{M_r}{M_s}_{\phi=90}$
5	311	0,87	307	0,85
20	203	0,93	199	0,92

Tabela 8 – Resumo das propriedades magnéticas das amostras de Cr(17 nm)/Co(t_{Co} nm)/Cr(17 nm) fabricadas com H aplicado *in situ*.

Comparando o conjunto de medidas das amostras de Co com *buffer* de Ta com as medidas das amostras de Co com *buffer* de Cr, dos gráficos de magnetização juntamente com as difrações, podemos observar que a textura cristalina tende a diminuir a coercividade e alterar a forma do laço de histerese. Por outro lado, com a orientação aleatória dos grãos

crystalinos, que ocorre nas amostras com *buffer* de Cr, há um visível aumento do campo coercivo. Além disso, devido a orientação aleatória dos cristalitos, mesmo com o campo magnético aplicado *in situ*, não foi induzida uma forte anisotropia uniaxial nas amostras com *buffer* de Cr, como para as amostras que utilizamos Ta como *buffer*.

As amostras com estrutura de Ta/Ni/Ta, Figura 29, apresentam maior coercividade quando comparadas com os filmes de Co crescidos sobre Ta, aumentando o campo coercivo com o aumento da espessura da camada ferromagnética. Além disso, é notória a indução do eixo de fácil magnetização. Um resumo das informações magnéticas extraídas das curvas de magnetização da Figura 27 está apresentado na Tabela 9.

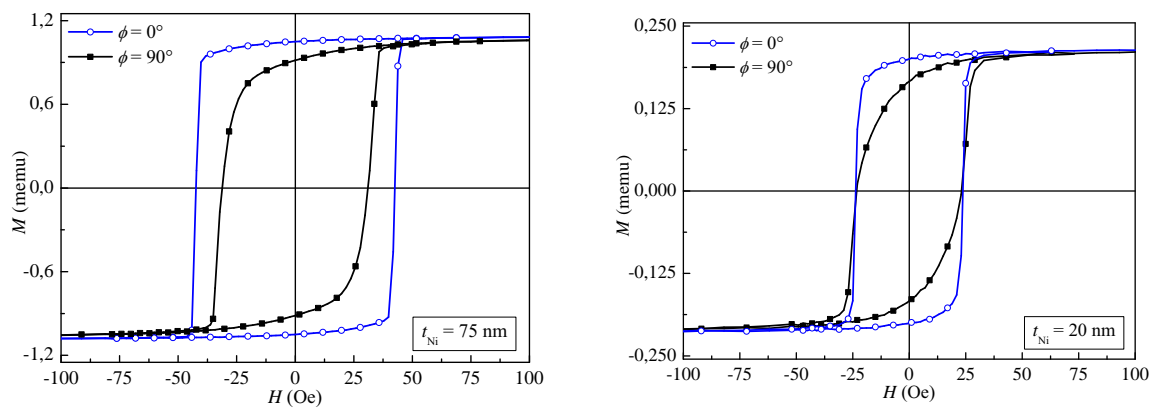


Figura 29 – Curvas de histerese para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$ das amostras de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm) fabricadas com H aplicado *in situ*.

t_{Ni} (nm)	$H_{c,\phi=0}$ (Oe)	$\frac{M_r}{M_s \phi=0}$	$H_{c,\phi=90}$ (Oe)	$\frac{M_r}{M_s \phi=90}$
20	24	0,93	23	0,77
75	49	0,97	35	0,85

Tabela 9 – Resumo das propriedades magnéticas das amostras de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado *in situ*.

3.2.1 Colapso do eixo duro

A variação da intensidade do campo coercivo e da magnetização em função da orientação relativa do campo magnético aplicado com a direção de fácil magnetização, ou seja, $\phi \times H_c$ e $\phi \times M_r$, após saturada a magnetização em $\phi = 0^\circ$, preditos no modelo de Stoner-Wohlfarth (SW) para um sistema com anisotropia uniaxial e rotações coerentes [37], são apresentados na Figura 30.

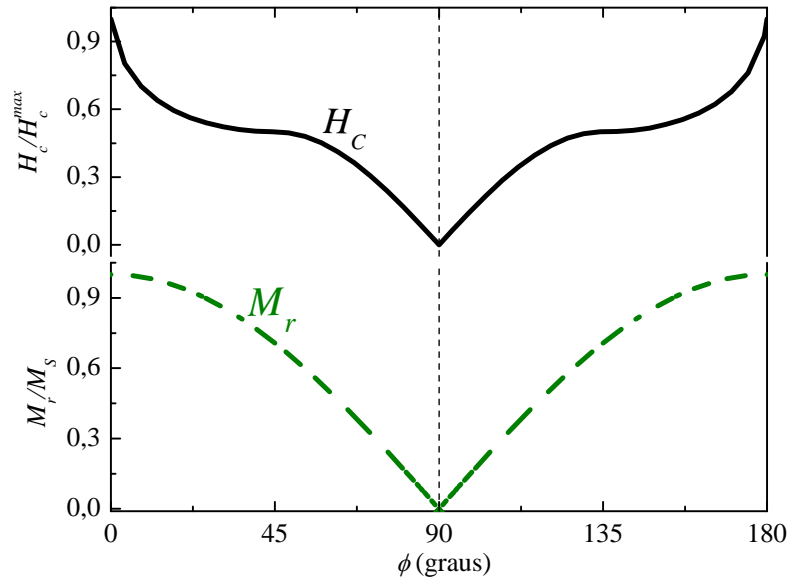


Figura 30 – Gráficos de $H_c(\phi)$ e $M_s(\phi)$ preditos no modelo SW para um sistema com anisotropia uniaxial e rotações coerentes.

Na Figura 31 são apresentados os gráficos de $H_c(\phi)$ e $M_r(\phi)$, obtidos para as amostras a) Ta(18 nm)/Co(150 nm)/Ta(18 nm) com H aplicado *in situ* e b) Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) sem H aplicado *in situ*. Notemos a presença de picos, tanto no gráfico de $H_c(\phi)$ quanto no de $M_r(\phi)$, centrados em $\phi = 90^\circ$ em (a) e em (b). Chamamos este fenômeno de colapso do eixo duro. Gráficos análogos são obtidos para as outras amostras de Ta/Co/Ta e Ta/Ni/Ta, porém não foram observados nas amostras de Cr/Co/Cr.

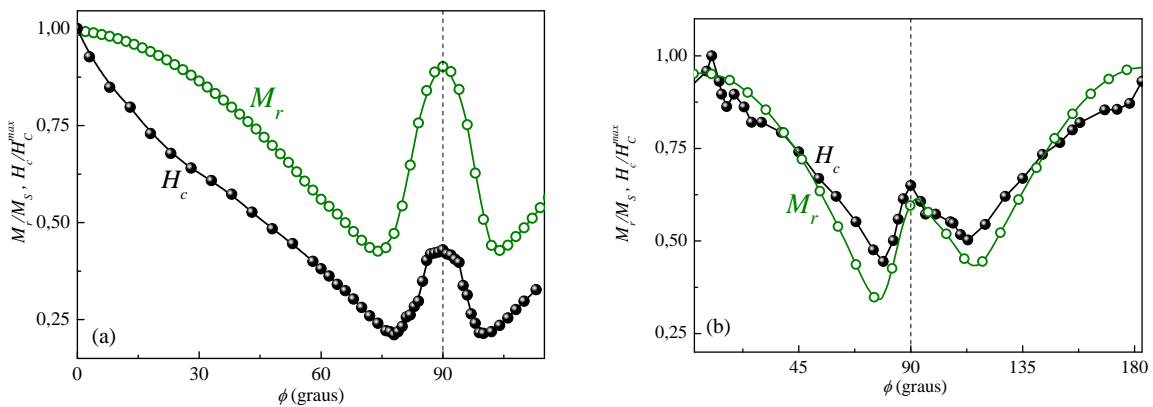


Figura 31 – $H_c(\phi)$ e $M_r(\phi)$ para as amostras a) Ta(18 nm)/Co(150 nm)/Ta(18 nm) com H aplicado *in situ*; e b) Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) sem H aplicado *in situ*.

Conforme visto nos gráficos da Figura 31, foi possível observar este fenômeno tanto nas amostras crescidas intencionalmente com campo magnético aplicado *in situ*, quanto nas amostras sem campo magnético aplicado durante o processo de fabricação. Este fato mostra que o campo aplicado não é responsável pelo colapso do eixo duro e induz somente uma anisotropia uniaxial.

Na literatura, tem sido reportada a observação de máximos salientes nos gráficos de $H_c(\phi)$ e $M_r(\phi)$ entre dois mínimos próximo ao eixo duro e, para estas anomalias observadas em materiais ferromagnéticos, são atribuídos diferentes mecanismos. Scheurer e colaboradores [38] associaram o colapso do eixo duro com pares de domínios “gêmeos” (*twin-domains*) interagentes com eixos fáceis desalinhados; Schreiber [39] e colaboradores associaram a expansão dos tamanhos de redes locais; e Hamrl e colaboradores [40] observaram uma divisão de domínios perpendiculares ao eixo duro durante a desmagnetização a partir da saturação em filmes de Heusler, atribuindo o colapso do eixo duro a frustrações de domínios magnéticos locais.

Recentemente, um pico de coercividade entre duas posições mínimas próximo ao eixo duro foi observado em filmes de FeCo [41, 42], com diferentes espessuras e crescidos sobre diferentes camadas sementes, tal fenômeno foi chamado de *rocking*. Este efeito foi associado com dispersões da anisotropia, onde após atingir a saturação magnética ao longo do eixo duro, alguns domínios começam a girar no sentido horário enquanto outros domínios giram no sentido anti-horário. Como o acoplamento de troca é proporcional a orientação relativa entre os domínios magnéticos, quando o campo magnético externo é invertido há uma maior dificuldade em girar os domínios magnéticos, resultando no aumento da coercividade. Além disso, foi observado que a dispersão magnética depende tanto da espessura do filme de FeCo quanto da camada utilizada para crescimento.

De outro ponto de vista, Idigoras e colaboradores [43, 44] observaram este fenômeno em filmes finos de Co com magnetização no plano do filme e anisotropia magnetocristalina uniaxial, onde mostraram que essa anomalia é um modo de reversão coletivo causado por uma desordem dos grãos, sendo chamado de colapso do eixo duro pelos autores, mesma denominação adotada nesta dissertação. Foi demonstrado que a indução de orientações cristalográficas aleatórias no processo de deposição pode resultar neste efeito. Para explicação, eles consideraram um modelo de filme policristalino com ordem cristalina parcialmente desordenada, consistindo de pares de grãos de SW acoplados via interação de troca. Eles observaram convergência entre o modelo teórico e os dados obtidos experimentalmente e, mais tarde, este modelo foi utilizado para explicação do colapso do eixo duro em filmes de CoPd [45].

Neste trabalho adotamos um modelo semelhante ao desenvolvido por Idigoras e colaboradores [43, 44], atribuindo o colapso do eixo duro ao sistema policristalino com anisotropia uniaxial de pares de grãos com magnetizações \vec{M}_1 e \vec{M}_2 e pequeno desalinhamento do eixo fácil no plano de anisotropia axial ea_1 e ea_2 , caracterizados pelas constantes de anisotropia uniaxial K_1 e K_2 , levando em consideração tanto a dispersão da anisotropia quanto o desalinhamento cristalográfico. Definindo a média da direção do eixo fácil (EA), o desalinhamento entre ea_1 e EA e ea_2 e EA são dados pelos ângulos α_1 e α_2 . As orientações no plano dos vetores \vec{M}_1 e \vec{M}_2 são dados pelos ângulos ϕ_1 e ϕ_2 medidos em

relação a EA [1]. A intensidade do acoplamento de troca entre os pares de grãos é dado por J . Na Figura 32 temos um diagrama simplificado desta configuração.

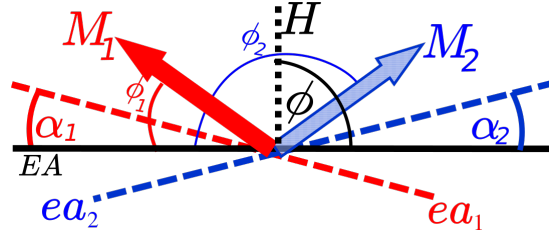


Figura 32 – Diagrama simplificado do modelo de pares de grãos considerado.

Deste modo, a energia magnética livre variável do sistema é dado por [1]:

$$E = -K_1 \cos^2(\phi_1 - \alpha_1) - K_2 \cos^2(\phi_2 + \alpha_2) - J \cos(\phi_2 - \phi_1) - H M_1 \cos(\phi - \phi_1) - H M_2 \cos(\phi - \phi_2), \quad (3.2)$$

onde do lado direito da igualdade os dois primeiros termos correspondem a energia de anisotropia, o terceiro ao acoplamento de troca e os dois últimos a energia *Zeeman*. Foram simulados ciclos completos de histerese empregando cálculo numérico previamente desenvolvido nas referências [46, 47, 48]. Considerando as magnetizações remanentes nos eixos duros M_r/M_s para o caso mais simples, onde $M_1 = M_2$, $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$, e $K_1 = K_2 = K$ e, sendo $\phi_2 = \pi - \phi_1$, e nesta situação $H = 0$, temos que:

$$E = -K \cos^2(\phi_1 - \alpha) - K \cos^2(\pi - \phi_1 + \alpha) - J \cos(\pi - \phi_1 - \phi_1). \quad (3.3)$$

$$E = -2K \cos^2(\phi_1 - \alpha) + J \cos(2\phi_1) \quad (3.4)$$

Considerando o ângulo θ complementar a ϕ_1 , no estado de remanência, $\frac{M_r}{M_s}$ será dado pelo $\cos(\theta)$, ou seja, queremos determinar o $\cos(\theta)$ que fornece M_r para $H = 0$. Assim:

$$\frac{M_r}{M_s} = \cos(\theta), \quad (3.5)$$

$$\frac{M_r}{M_s} = \cos\left(\frac{\pi}{2} - \phi\right). \quad (3.6)$$

No estado de remanência temos um estado de equilíbrio, logo:

$$\frac{dE}{d\theta} = 0 \Rightarrow \frac{dE}{d\phi} = 0. \quad (3.7)$$

Portanto:

$$\frac{dE}{d\phi_1} = 4K \cos(\phi_1 - \alpha) \sin(\phi_1 - \alpha) - 2J \sin(2\phi_1) = 0, \quad (3.8)$$

$$K \operatorname{sen}(2\phi_1 - 2\alpha) = J \operatorname{sen}(2\phi_1), \quad (3.9)$$

$$K[\operatorname{sen}(2\phi_1)\cos(2\alpha) - \cos(2\phi_1)\operatorname{sen}(2\alpha)] = J \operatorname{sen}(2\phi_1), \quad (3.10)$$

$$K \left[\cos(2\alpha) - \frac{\operatorname{sen}(2\alpha)}{\tan(2\phi_1)} \right] = J, \quad (3.11)$$

$$\tan(2\phi_1) = \frac{\operatorname{sen}(2\alpha)}{\cos(2\alpha) - J/K}, \quad (3.12)$$

$$\phi = \frac{1}{2} \arctan \left[\frac{\operatorname{sen}(2\alpha)}{\cos(2\alpha) - J/K} \right]. \quad (3.13)$$

Assim concluímos que:

$$\frac{M_r}{M_s} = \cos \left(\frac{\pi}{2} - \frac{1}{2} \arctan \frac{\operatorname{sen}(2\alpha)}{\cos(2\alpha) - J/K} \right). \quad (3.14)$$

A Figura 33 contém os resultados dos cálculos numéricos para o modelo descrito acima, utilizando $J/K = 0$ e $0,6$. Os ciclos principais de histerese para o eixo duro são mostrados em (a), enquanto em (b) temos o ciclo de histerese para $\phi = 80^\circ$. $H_c(\phi)$ e $M_r(\phi)$ são mostrados em (c) e (d), respectivamente.

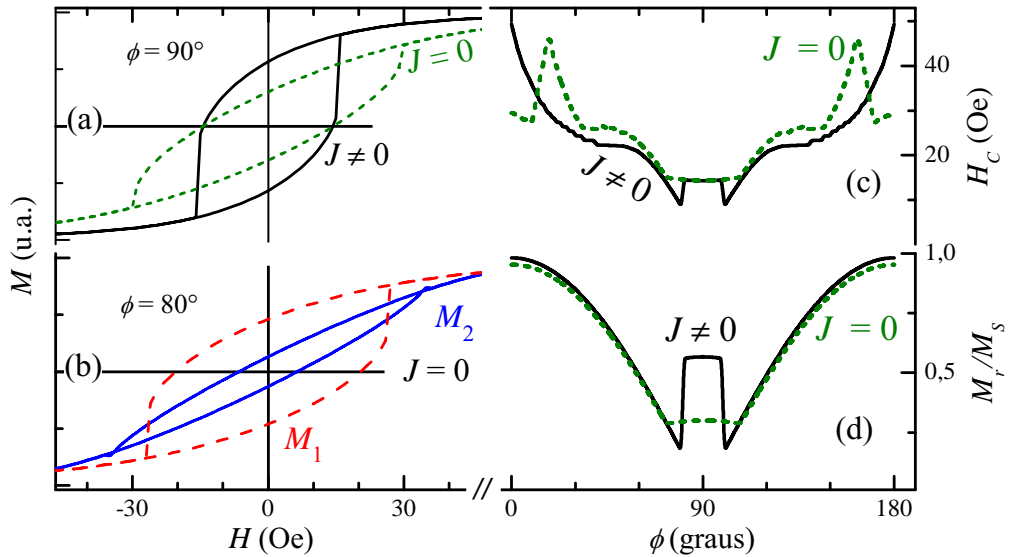


Figura 33 – Resultados do modelo obtidos para dois domínios acoplados com eixos fáceis desalinhados com $\alpha = 17,5^\circ$ e $2K/M_s = 50$ Oe. (a) Ciclo principal de histerese para o eixo duro ($M_1 \equiv M_2$) obtidos para $J = 0$, linha tracejada; e $J/K = 0,6$, linha sólida. (b) $M_1(H)$ e $M_2(H)$ para $J = 0$ e $\phi = 80^\circ$. Variações angulares de (c) H_c e (d) M_R para $J = 0$, linhas tracejadas; e $J/K = 0,6$, linhas sólidas.

Notemos em (a) que H_c não é afetado pelo acoplamento de troca enquanto M_r é dependente, conforme esperado. Os cálculos para $J = 0,6$ concordam qualitativamente com o experimento. É possível notar que independente do valor de J , as magnetizações de reversão de M_1 e M_2 são indistinguíveis quando H é paralelo ao eixo duro, devido a simetria desta configuração. Porém, quando H é aplicado na vizinhança do eixo duro, os ângulos entre H e ea_1 e ea_2 tornam-se diferentes, resultando em distintos campos de anisotropia. Como visto na Figura 33(b), onde o caso de $J = 0$ com $\phi = 80^\circ$ é exemplificado, $M_1(H)$ e $M_2(H)$ diferem significativamente M_1 rotaciona irreversivelmente mais cedo que M_2 . Além disso, podemos observar que existe um valor crítico de ϕ na qual as simulações de H_c e M_r são muito similares para os encontrados em sistemas de rotações coerentes, ou seja, o acoplamento resulta no comportamento de simples mono-domínios.

Assim, no intuito de estudar o que ocorre nas vizinhanças do eixo duro colapsado, foram medidas curvas de histerese e de reversão de primeira ordem (FORCs) para diferentes ângulos. Nesta análise, foram observadas FORCs situadas totalmente fora do ciclo principal de histerese, podendo apresentar aumento expressivo da área da curva quando comparada a área do ciclo principal de histerese. Estas curvas foram denominadas de *Recoil-Curve Overshoot* (RCO) e puderam ser qualitativamente discutidas pelo mesmo modelo utilizado para prever o colapso do eixo duro. Na próxima seção será apresentado este fenômeno, bem como a discussão a respeito dele.

3.2.2 Recoil-Curve Overshoot (RCO)

Um laço de retorno apresentando RCO tem como característica valores de magnetização remanente medidos após a saturação e campos coercivos maiores dos apresentados pelo ciclo de histerese para uma determinada direção. As curvas de histerese são traçadas utilizando campo magnético suficiente para saturar magneticamente as amostras e, após mensurado o ciclo de histerese para um determinado ϕ , são obtidas as curvas de recuo na mesma direção. Observamos que as RCOs são simétricas em relação a origem, ou seja, é possível obter as RCOs tanto a partir da magnetização de saturação positiva quanto da magnetização de saturação negativa. Além disso, estas curvas foram mensuradas para materiais com diferentes anisotropias magnetocristalinas e diferentes espessuras de camadas magnéticas.

Na Figura 34 são mostrados o ciclo principal de histerese e a curva de recuo para um determinado ϕ , onde foi observada a maximização da RCO para amostras de Ta/Co/Ta fabricadas com H aplicado *in situ*. O fato mais intrigante nestes gráficos são as curvas de recuo externas ao ciclo de histerese, ou seja, com maiores valores de M_r e H_c .

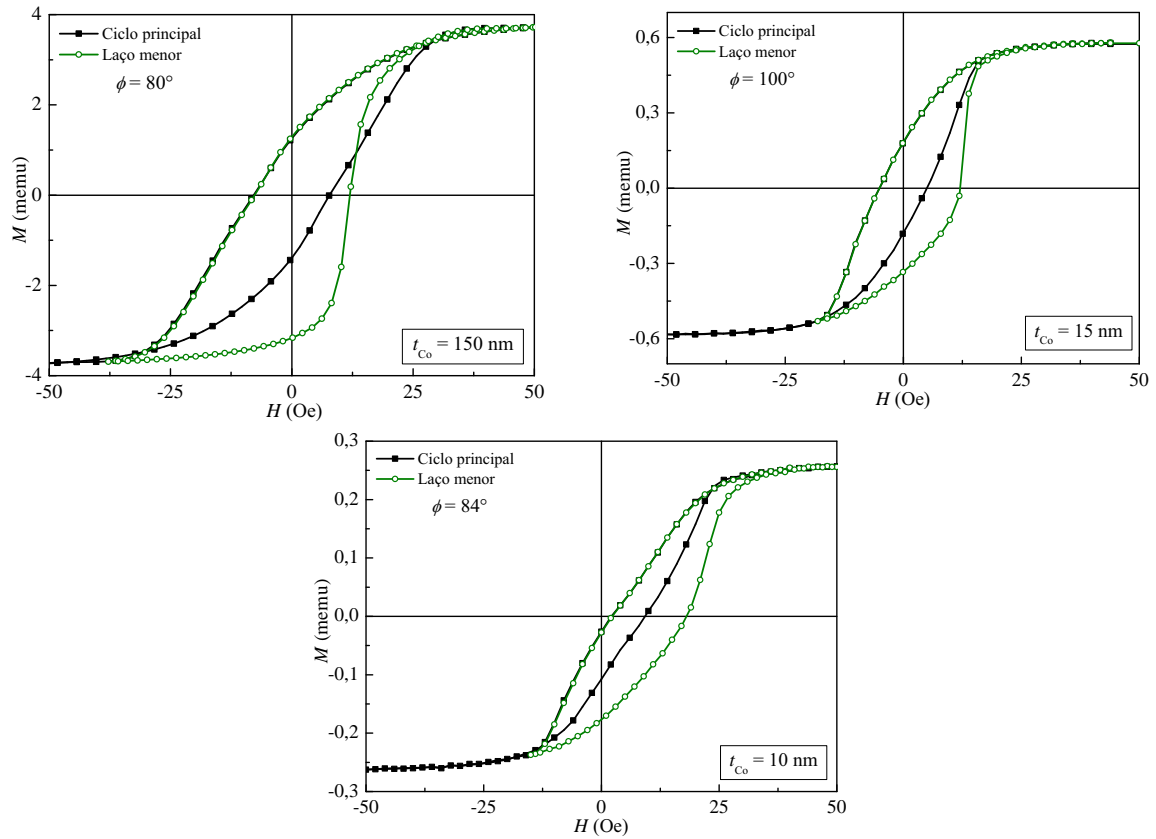


Figura 34 – Ciclos de histerese no plano com curvas de recuo que apresentam RCO para filmes de Ta(18 nm)/Co(t_{Co} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado *in situ*.

Apesar da variação da espessura da camada de Co, podemos observar RCOs em todos os filmes estudados com *buffer* de Ta. Além disso, foi investigado se a RCO estava sendo consequência do campo magnético aplicado *in situ* durante o processo de deposição e, para tanto, também foram fabricados filmes na ausência de campo. Na Figura 35, temos as medidas da amostra de Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm), fabricada sem H aplicado *in situ* e é evidente a curva de recuo externa ao ciclo principal de histerese (RCO).

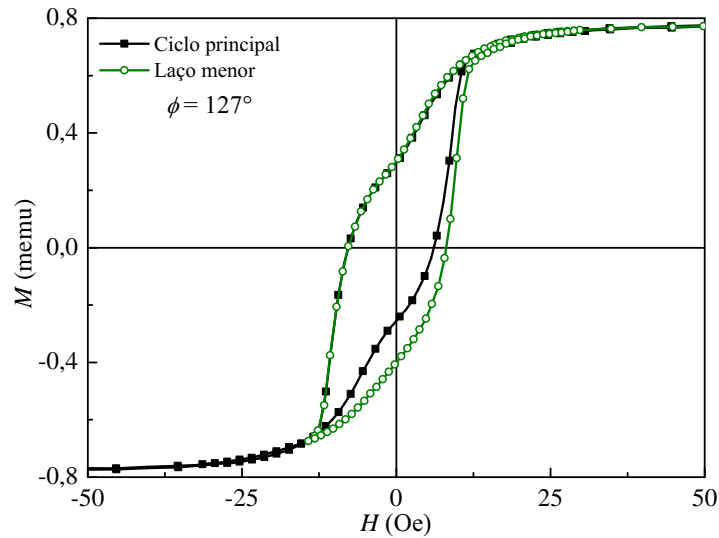


Figura 35 – Ciclo de histerese no plano com curva de recuo que apresenta RCO para a amostra de Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) sem H aplicado *in situ*.

Assim, concluímos que o campo magnético aplicado durante a fabricação induz um eixo preferencial de magnetização, mas não é responsável pela RCO.

Investigamos se a RCO não era um artifício gerado por algum erro de medida decorrente do deslocamento da amostra em relação a posição central nos pólos do eletroímã e as bobinas sensoras do VSM. Para tanto, foi deslocado propositalmente uma amostra em relação ao centro das bobinas sensoras, variando a posição em 2 mm na horizontal, posteriormente 2 mm na vertical e, por fim, 2 mm tanto na horizontal quanto na vertical. Lembrando que 5 mm x 5 mm é o tamanho típico das amostras. Os gráficos da Figura 36 apresentam os resultados das medidas e em ambos os casos obtemos o mesmo resultado, ou seja, independente dos deslocamentos foi possível observar as RCOs. As curvas também foram confirmadas utilizando técnicas diferentes de medidas, magnetômetro de gradiente de campo alternado (AGFM) e magnetômetro óptico de efeito Kerr (MOKE), onde os resultados foram publicados na referência [1] e obtivemos curvas similares para as mesma amostras. Estas análises, eliminaram a possibilidade de erros experimentais e indicaram a autenticidade das RCOs.

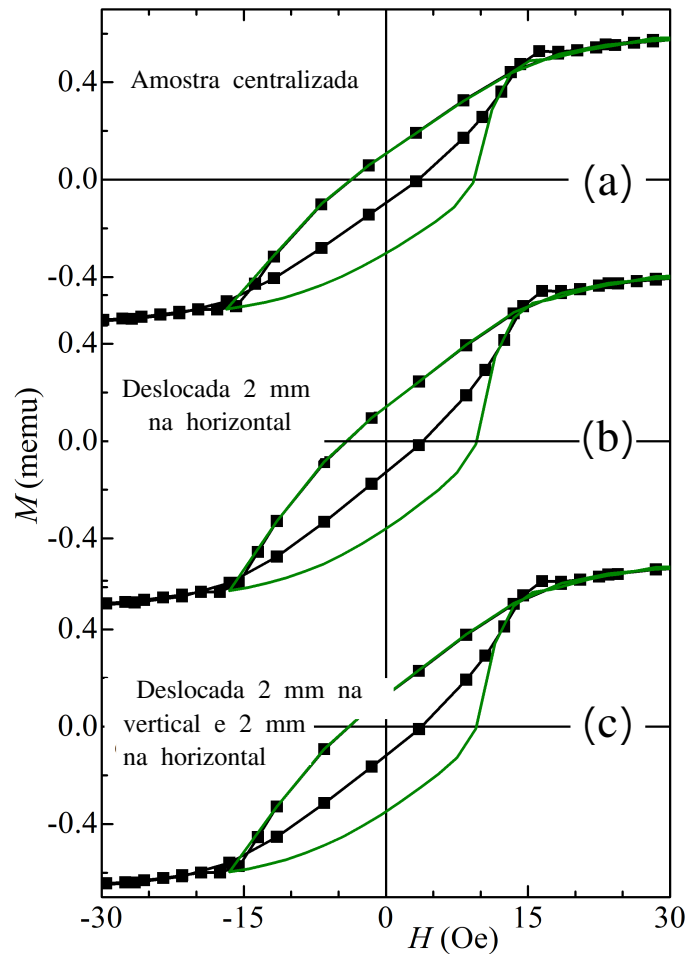


Figura 36 – Gráficos das curvas de histerese juntamente com as curvas de recuo no plano da amostra de Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm), fabricada com H aplicado *in situ*, com a posição da amostra: a) centralizada em relação as bobinas sensoras, b) deslocada 2 mm na horizontal e c) deslocada 2 mm na horizontal e 2 mm na vertical.

A manifestação da RCO também foi investigada em filmes de Ni com espessuras $t_{Ni} = 20$ nm e $t_{Ni} = 75$ nm. Os gráficos estão mostrados na Figura 37, onde o efeito pode ser claramente observado.

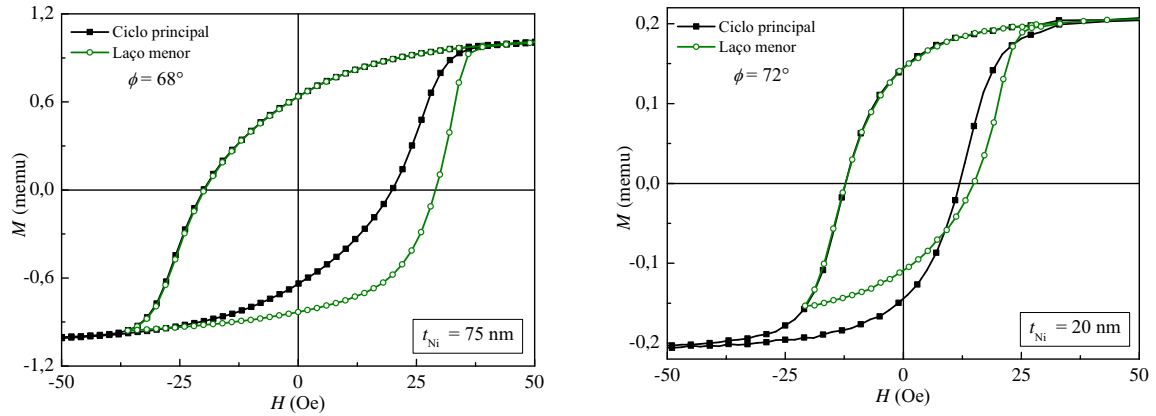


Figura 37 – Ciclo de histerese no plano com curvas de recuo que apresentam RCO para filmes de Ta(18 nm)/Ni(t_{Ni} nm)/Ta(18 nm) com H aplicado *in situ*.

A influência da camada semente (*buffer*) e da camada de cobertura *cap* nas RCOs também foram estudadas. Para amostras com a estrutura de Cr/Co/Cr não foi possível observar RCO, pois essas amostras apresentam magnetização isotrópica no plano. Isto pode ser notado nos gráficos da Figura 38, que apresentam as curvas principais de histerese para $\phi = 0^\circ$ e $\phi = 90^\circ$, juntamente com as curvas de recuo e as respectivas curvas δM_{RS} de cada caso. Notemos que em todos os casos as curvas δM_{RS} são iguais e majoritariamente positivas, indicando a interação de troca ferromagnética como dominante nestas amostras. Além disso, as curvas possuem aproximadamente mesma área e intensidade, quando comparadas as curvas de recuo obtidas para o mesmo H_r . Isso indica que o efeito de interação e os modos de reversão são semelhantes.

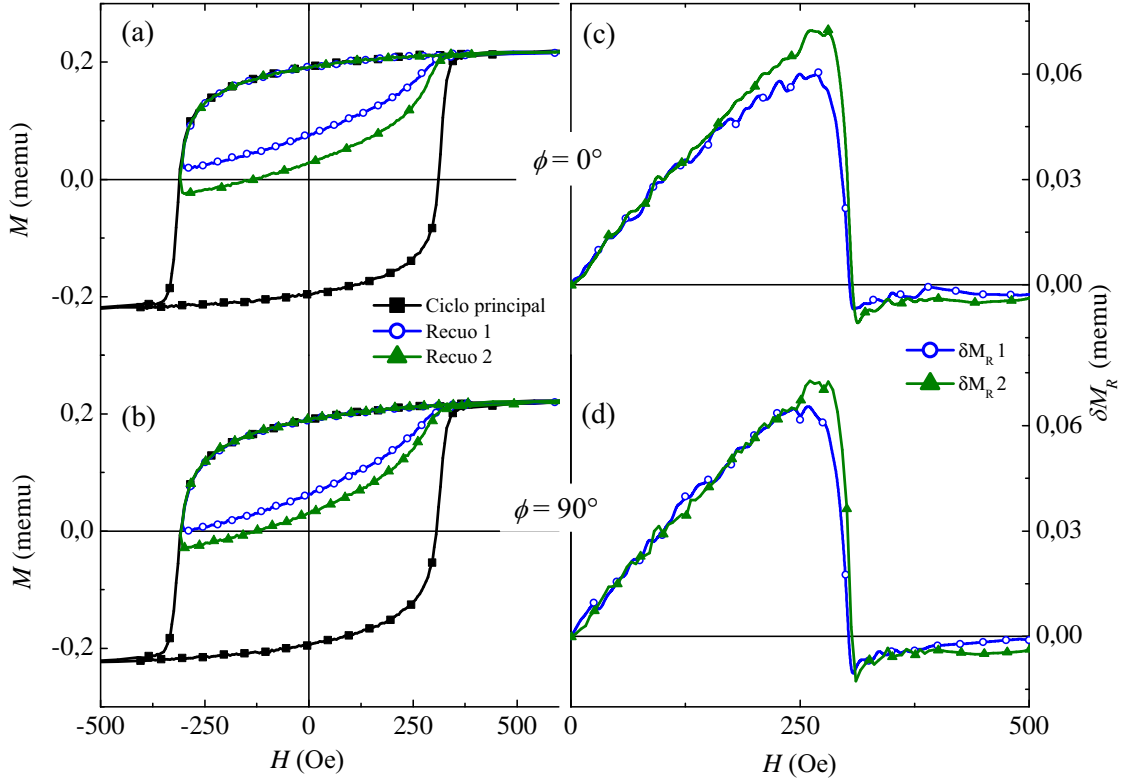


Figura 38 – Curvas principais de histerese no plano para a) $\phi = 0^\circ$ e b) $\phi = 90^\circ$, juntamente com as respectivas curvas de recuo. Em c) e d) são apresentadas as curvas δM_R para cada caso.

Também foram depositadas camadas de Co direto sobre o óxido natural de Si (Si/SiO₂//Co/Ta) e utilizando diferentes *cap*, (Si/SiO₂//Co/Cr. Em todos os casos foram observados RCOs. O fenômeno da RCO também foi observado em filmes de Fe como camada FM. Estes outros resultados da pesquisa também foram publicados na referência [1]

O efeito RCO foi observado para diferentes campos de recuo e diferentes ângulos, onde notamos uma dependência da RCO com essas duas grandezas. De forma a determinar o ângulo e o H_r que maximizam o efeito, observamos que a intensidade da RCO pode ser facilmente quantificada usando curvas de remanência DCD. Uma série de curvas DCD, para diferentes orientações de H , da amostra de Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) com H aplicado *in situ* é mostrada na Figura 39(a) (a exceção da curva DCD para $\phi = 0^\circ$ as demais foram deslocadas verticalmente da origem para melhor visualização). Inicialmente estas curvas mudam abruptamente para $\phi = 0^\circ$, como esperado, tornando-se menos abruptas com o aumento do ϕ . Entretanto, para $\phi \geq 60^\circ$, aproximadamente, um máximo emerge e para de existir em $\phi = 90^\circ$. Isto, representa exatamente a manifestação da RCO, mais especificamente a M_r da RCO, onde a curva DCD, para uma orientação específica do campo magnético, revela o valor de H_r que maximiza este par. O mesmo fato pode ser visualizado nos filmes de Ni como camada FM. Na Figura 39(b) são mostradas

as curvas DCD obtidas para a amostra de Ta(18 nm)/Ni(75 nm)/Ta(18 nm).

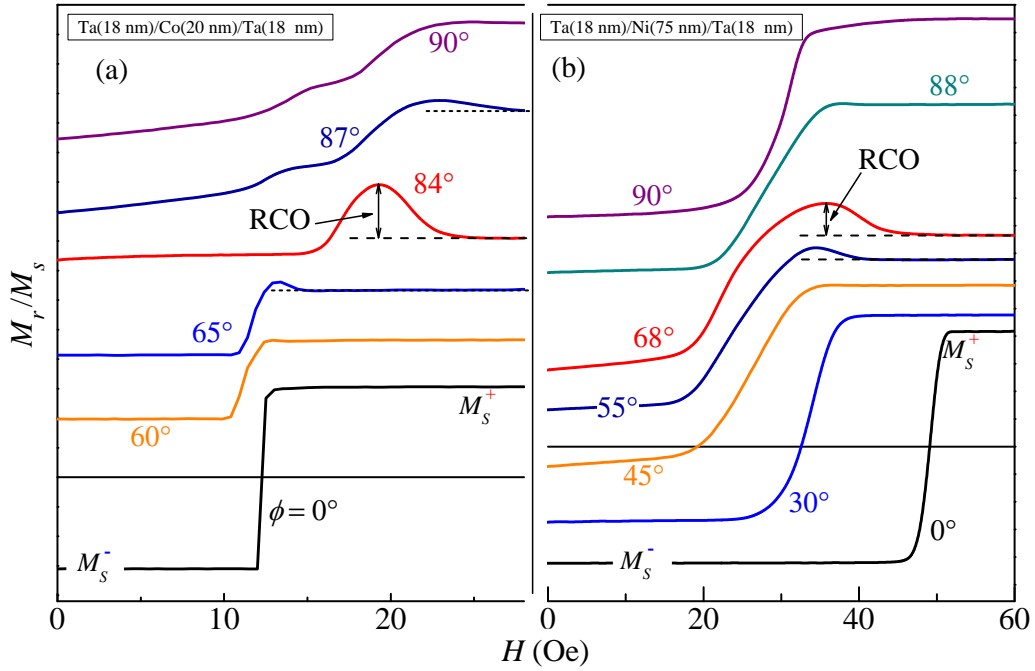


Figura 39 – Curvas de remanência DCD mensuradas para várias orientações de H das amostras de a) Ta(18 nm)/Co(20 nm)/Ta(18 nm) e de b) Ta(18 nm)/Ni(75 nm)/Ta(18 nm), ambas com H aplicado *in situ*. As setas de duas pontas denotam os valores de ângulos e H_r que se obtém os valores máximos das RCOs.

Com todo o exposto, atribuímos o intrigante fenômeno da RCO ao colapso do eixo duro, que pode ser observado em todas as amostras que apresentaram o efeito. Nas amostras sem a presença do fenômeno, o colapso do eixo duro não ocorreu. Utilizando o modelo descrito na seção 3.2.1, além da previsão já feita para o colapso do eixo duro, também foi possível reproduzir, qualitativamente, resultados similares aos observados em laboratório, permitindo identificar os processos que ocasionam a RCO.

O laço principal de histerese e a curva de recuo, simulados com os parâmetros usados na Figura 33(b) para $J \neq 0$, estão plotados na Figura 40. As magnetizações $M_1(H)$ e $M_2(H)$ do ramo de descida do ciclo principal de histerese da Figura 40(a) são mostradas na Figura 40(b), onde suas respectivas curvas de recuo são mostradas na Figura 40(c). A orientação de M_1 e M_2 em estados numerados sequenciais selecionados são representados por setas.

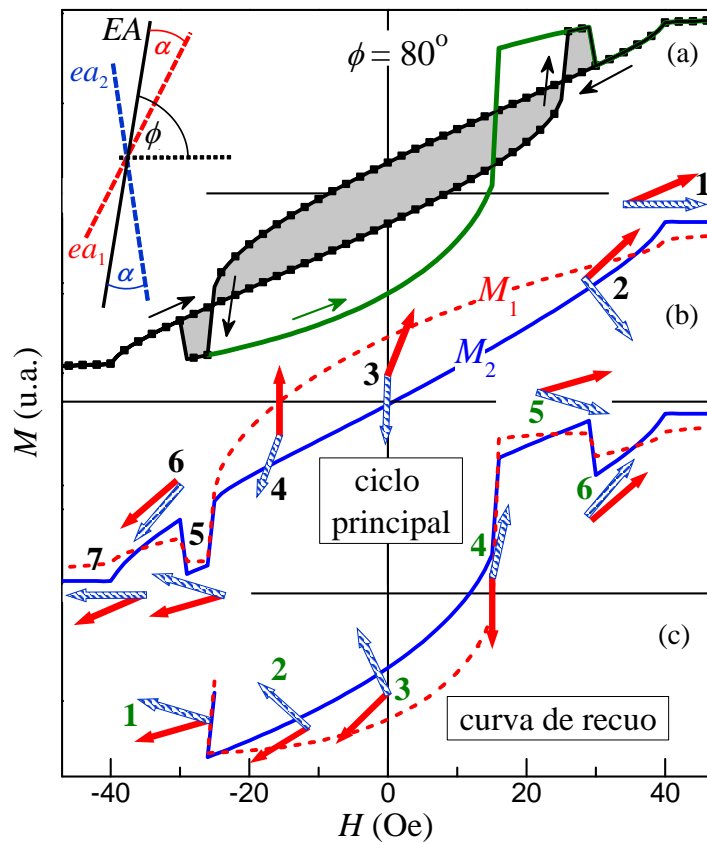


Figura 40 – Ciclo principal de histerese e curva de recuo simulados com os parâmetros usados na Figura 33(b) para $J/K = 0,6$. Em (a) os símbolos representam a magnetização no plano (M_{\parallel}) do ciclo principal de histerese e a linha sólida a curva de recuo. Em (b) temos as componentes M_{\parallel} de $M_1(H)$ e $M_2(H)$ da ramificação do ciclo principal de histerese e em (c) da curva de recuo; as setas indicam as orientações de M_1 e M_2 em estados representativos numerados sequencialmente.

Ao diminuir H da saturação para zero, tanto M_1 quanto M_2 tendem a se alinhar com a direção de seu ea que está mais próximo da orientação do campo. Para as orientações particulares de H , ea_1 e ea_2 , veja o esquema na Figura 40(a), onde M_1 e M_2 giram em direções opostas. Na remanência, M_2 e H são quase perpendiculares, levando a uma diminuição do M_r do sistema, justificando assim o mínimo em $\phi = 80^\circ$ (a configuração discutida aqui) de $M_r(H)$, em que na vizinhança a RCO é maior.

Desvendando o aparecimento da RCO

Na Figura 40(b) o estado 5 é o estado inicial da curva de recuo da Figura 40(c). Como H é diminuído para zero a partir deste estado frustrado, semelhante a uma tesoura, o estado de magnetização de M_1 e M_2 mudam lentamente, resultando em uma diminuição bastante moderada de $M(H)$ e um valor de M_r significativamente maior do que o do ciclo principal de histerese. Com a reversão do campo e seu gradual aumento, um estado de M_1 e M_2 praticamente antiparalelo é alcançado. Nessa configuração, a energia de acoplamento

está no máximo, então um pequeno aumento de H leva M_1 (a magnetização com momentos magnéticos com menor resistência a rotacionar) a mudar irreversivelmente. De uma maneira análoga àquela que resulta no estado 5 do painel (b), M_2 é "arrastado" para alternar junto com M_1 e o estado invertido muito semelhante ao estado 5 do painel (b) é alcançado, embora com um valor de campo inferior. Com o incremento de H , a magnetização evolui de forma análoga ao $5 \rightarrow 6 \rightarrow 7$ do painel (b) discutido acima [1].

Conclusões e Trabalhos Futuros

Neste trabalho, reportamos a existência de um intrigante modo de reversão da magnetização observado em filmes policristalinos de Co e Ni crescidos pela técnica de *magnetron sputtering*. Estes filmes apresentaram laços menores de histerese externos ao ciclo principal de histerese, para orientações angulares específicas entre o campo magnético aplicado H e o eixo de fácil magnetização da camada ferromagnética; este fenômeno foi denominado *Recoil-Curve Overshoot* (RCO) [1].

Realizamos a caracterização estrutural de todas as amostras antes das medidas de magnetização. A interpretação desses resultados nos permitiu:

- Concluir que as propriedades estruturais e magnéticas das camadas ferromagnéticas apresentam mudanças significativas de acordo com a camada *buffer* escolhida para o crescimento do filme, onde podemos notar que o Co cresceu com orientação cristalina mais bem definida sobre *buffer* de Ta do que sobre *buffer* de Cr; apresentando menores valores de campo coercivo e magnetização remanente, indicando que a textura cristalina modifica as respostas magnéticas. As amostras com Ni, como material ferromagnético, apresentaram boa cristalinidade quando crescidas sobre Ta. Tanto nas amostras com Co quanto com Ni, podemos notar a tendência de estabilização da fase cristalina com o aumento da espessura da camada ferromagnética.
- Comprovar, para as amostras estudadas, a existência de laços menores de histerese com campo coercivo e magnetização remanente maiores que o ciclo principal de histerese; também provamos que não são apenas um artifício gerado por algum erro de medida ou montagem experimental.
- Mostrar que o efeito RCO pode ser obtido em amostras com diferentes espessuras da camada ferromagnética, desde que tenham o eixo de fácil magnetização bem definido e apresentem o colapso do eixo duro. Nós acreditamos que este modo de reversão ocorre por uma das duas possibilidades: i) configuração de anisotropia induzida por uma desordem dentro de cada grão e, quando o campo magnético é aplicado próximo ao eixo duro, a magnetização do grão se divide em dois domínios com acoplamento de troca e eixos de anisotropia levemente desalinhados; ii) a desordem de anisotropia entre grãos.
- Quantificar a intensidade da RCO usando curvas de remanência DCD que, para uma orientação de campo específica, revelam o valor do campo de recuo que maximiza a magnetização remanente.

As curvas com o efeito RCO foram observadas para três elementos, Co, Ni e Fe, que são os únicos ferromagnéticos a temperatura ambiente. Acreditamos que este efeito também possa ser observado em outros filmes finos policristalinos, por meio da indução de anisotropia magnética uniaxial por campo magnético aplicado durante a deposição ou via procedimentos pós-deposição (tratamento térmico com campo magnético aplicado ou irradiação iônica). Além disso, consideramos que a manipulação de maneira controlada das propriedades estruturais e magnéticas podem mudar as características da RCO permitindo maximizar e/ou diminuir o efeito, bem como o melhor entendimento deste fenômeno. Desta forma, podemos destacar as seguintes perspectivas futuras:

- Investigar a RCO em outros materiais magnéticos e/ou ligas na forma de filmes finos, segundo dados da literatura, que apresentam: (i) colapso do eixo duro e/ou mínimos (máximos) em $M(H)$ logo antes da saturação no ramo de descida (subida) dos seus laços principais de histerese [43, 44]; e/ou (ii) divisão de domínios em torno do eixo duro [38, 40], como já foi visto em vários materiais e ligas tais como Co, CoPd, CoFe, Ni, Fe, e $\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{40}$.
- Depositar os filmes finos ferromagnéticos sobre diferentes substratos e *buffers*, tais como:
 - substratos planos de Si com óxido nativo SiO_2 na superfície e *buffers* de Pt, Pd, Au, Ti e etc.
 - substratos flexíveis de *Kapton*® (poliamida) fixados sobre porta-amostras planos durante a deposição. Variar a espessura dos substratos flexíveis e a curvatura dos porta-amostras, de modo a induzir um estresse mecânico no filme ferromagnético e estudar a evolução da anisotropia magnética (amplitude e orientação), e consequentemente, o efeito RCO com a direção e a amplitude do estresse mecânico.
- Do ponto de vista teórico, esclarecer se o fenômeno da RCO tem a sua origem nas interações magnéticas intra- e/ou inter-domínios magnéticos.

Artigo publicado

- Observation of recoil magnetization curves outside the major loop in Co, Fe, and Ni films.

Referências

- [1] J. Geshev, W. Garcia, V. Paes, L. Azeredo, L. Dorneles, and A. de Andrade, “Observation of recoil magnetization curves outside the major loop in co, fe, and ni films,” *Physical Review B*, vol. 104, no. 5, p. 054436, 2021. Disponível em: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.104.054436>.
- [2] J. Geshev, “Interaction plots obtained from in-field magnetization instead of remanence measurements,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 467, pp. 135–138, 2018. Disponível em: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2018.07.009>.
- [3] B. D. Cullity and C. D. Graham, *Introduction to magnetic materials*. John Wiley & Sons, 2011.
- [4] D. Jiles, *Introduction to magnetism and magnetic materials*. CRC press, 2015.
- [5] J. M. Coey, *Magnetism and magnetic materials*. Cambridge university press, 2010.
- [6] R. Skomski, *Simple models of magnetism*. Oxford University Press on Demand, 2008.
- [7] K. H. J. Buschow, F. R. Boer, *et al.*, *Physics of magnetism and magnetic materials*, vol. 7. Springer, 2003.
- [8] S. Chikazumi and C. D. Graham, *Physics of Ferromagnetism 2e*. No. 94, Oxford University Press on Demand, 2009.
- [9] P. Weiss, “L’hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique,” *J. Phys. Theor. Appl.*, vol. 6, no. 1, pp. 661–690, 1907. Disponível em: <https://doi.org/10.1051/jphystap:019070060066100>.
- [10] J. C. Slater, “Atomic shielding constants,” *Physical Review*, vol. 36, no. 1, p. 57, 1930. Disponível em: <https://doi.org/10.1103/PhysRev.36.57>.
- [11] J. Hubbard, “Electron correlations in narrow energy bands,” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, vol. 276, no. 1365, pp. 238–257, 1963. Disponível em: <https://doi.org/10.1098/rspa.1963.0204>.
- [12] G. Bertotti, *Hysteresis in magnetism: for physicists, materials scientists, and engineers*. Gulf Professional Publishing, 1998.
- [13] G. Herzer, “Nanocrystalline soft magnetic alloys,” *Handbook of magnetic materials*, vol. 10, pp. 415–462, 1997. Disponível em: [https://doi.org/10.1016/S1567-2719\(97\)10007-5](https://doi.org/10.1016/S1567-2719(97)10007-5).

- [14] A. P. Guimarães and I. S. Oliveira, *Magnetism and magnetic resonance in solids*. Wiley New York, 1998.
- [15] E. Dlala, J. Saitz, and A. Arkkio, “Hysteresis modeling based on symmetric minor loops,” *IEEE Transactions on magnetics*, vol. 41, no. 8, pp. 2343–2348, 2005. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/1492537>.
- [16] M. Johnson, P. Bloemen, F. Den Broeder, and J. De Vries, “Magnetic anisotropy in metallic multilayers,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 59, no. 11, p. 1409, 1996. Disponível em: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0034-4885/59/11/002/meta>.
- [17] A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic domains: the analysis of magnetic microstructures*. Springer Science & Business Media, 2008.
- [18] K. O’Grady, R. Chantrell, and I. Sanders, “Magnetic characterisation of thin film recording media,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 29, no. 1, pp. 286–291, 1993. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/document/195584>.
- [19] G. Heydon, S. R. Hoon, A. Farley, S. Tomlinson, M. Valera, K. Attenborough, and W. Schwarzacher, “Magnetic properties of electrodeposited nanowires,” *Journal of physics d: applied physics*, vol. 30, no. 7, p. 1083, 1997. Disponível em: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0022-3727/30/7/004/meta>.
- [20] J. Garcia-Otero, M. Porto, and J. Rivas, “Henkel plots of single-domain ferromagnetic particles,” *Journal of applied physics*, vol. 87, no. 10, pp. 7376–7381, 2000. Disponível em: <https://doi.org/10.1063/1.372996>.
- [21] E. P. Wohlfarth, “Relations between different modes of acquisition of the remanent magnetization of ferromagnetic particles,” *Journal of Applied Physics*, vol. 29, no. 3, pp. 595–596, 1958. Disponível em: <https://doi.org/10.1063/1.1723232>.
- [22] P. Bissell, R. Chantrell, G. Tomka, J. Knowles, and M. Sharrock, “Remanent magnetisation and demagnetisation measurements on particulate recording media,” *IEEE Transactions on Magnetism*, vol. 25, no. 5, pp. 3650–3652, 1989. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/document/42389>.
- [23] A. H. d. Oliveira, “Curvas de remanência de sistemas que apresentam exchange bias,” 2014. Disponível em: <https://www.lume.ufrgs.br/handle/10183/109024>.
- [24] A. Bolyachkin, I. Alekseev, S. Andreev, and A. Volegov, “ δm plots of nanocrystalline hard magnetic alloys,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 529, p. 167886, 2021. Disponível em: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2021.167886>.

- [25] S. Thamm and J. Hesse, “The remanence of a stoner–wohlfarth particle ensemble as a function of the demagnetisation process,” *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 184, no. 2, pp. 245–255, 1998. Disponível em: [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(97\)01135-9](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(97)01135-9).
- [26] C. R. Pike, A. P. Roberts, and K. L. Verosub, “Characterizing interactions in fine magnetic particle systems using first order reversal curves,” *Journal of Applied Physics*, vol. 85, no. 9, pp. 6660–6667, 1999. Disponível em: <https://doi.org/10.1063/1.370176>.
- [27] Y. Zhang and D. Atherton, “Levels of demagnetized states,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 31, no. 3, pp. 2233–2240, 1995. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/376239>.
- [28] V. Basso, M. L. Bue, and G. Bertotti, “Interpretation of hysteresis curves and henkel plots by the preisach model,” *Journal of Applied Physics*, vol. 75, no. 10, pp. 5677–5682, 1994. Disponível em: <https://doi.org/10.1063/1.355635>.
- [29] C. Buehler and I. Mayergoyz, “Henkel plots and the preisach model of hysteresis,” *Journal of applied physics*, vol. 79, no. 8, pp. 5746–5748, 1996. Disponível em: <https://doi.org/10.1063/1.362239>.
- [30] A. Stancu, P. R. Bissell, and R. W. Chantrell, “Interparticle interactions in magnetic recording media as obtained from high-order measurements by a preisach model,” *Journal of Applied Physics*, vol. 87, no. 12, pp. 8645–8652, 2000. Disponível em: <https://doi.org/10.1063/1.373591>.
- [31] C. L. Platt, K. Wierman, E. Svedberg, T. Klemmer, J. Howard, and D. J. Smith, “Structural and magnetic properties of co-crpt perpendicular media grown on different buffer layers,” *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 247, no. 2, pp. 153–158, 2002. Disponível em: [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(02\)00041-0](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(02)00041-0).
- [32] B. D. Cullity and R. S. Stock, *Elements of X-ray Diffraction*, 3rd ed. Pearson, 2001.
- [33] J. Als-Nielsen and D. McMorrow, *Elements of modern X-ray physics*. John Wiley & Sons, 2011.
- [34] J. I. Langford and A. Wilson, “Scherrer after sixty years: a survey and some new results in the determination of crystallite size,” *Journal of applied crystallography*, vol. 11, no. 2, pp. 102–113, 1978. Disponível em: <https://doi.org/10.1107/S0021889878012844>.
- [35] E. Chason and T. Mayer, “Thin film and surface characterization by specular x-ray reflectivity,” *Critical Reviews in Solid State and Material Sciences*, vol. 22, no. 1, pp. 1–67, 1997. Disponível em: <https://doi.org/10.1080/10408439708241258>.

- [36] L. C. Sampaio, F. Garcia, G. R. Cernicchiaro, and A. Y. Takeuchi, “Técnicas de magnetometria,” *Revista Brasileira de Ensino de Física*, vol. 22, no. 3, 2000. Disponível em: <http://www.sbfisica.org.br/rbef/pdf/v22a59.pdf>.
- [37] E. C. Stoner and E. Wohlfarth, “A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, vol. 240, no. 826, pp. 599–642, 1948. Disponível em: <https://doi.org/10.1098/rsta.1948.0007>.
- [38] F. Scheurer, R. Allenspach, P. Xhonneux, and E. Courtens, “Magnetic coupling of structural microdomains in bcc fe on cu (001),” *Physical Review B*, vol. 48, no. 13, p. 9890, 1993. Disponível em: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.48.9890>.
- [39] F. Schreiber, Z. Frait, T. Zeidler, N. Metoki, W. Donner, H. Zabel, and J. Pelzl, “Strong anisotropies in mbe-grown co/cr (001): Ferromagnetic-resonance and magneto-optical kerr-effect studies,” *Physical Review B*, vol. 51, no. 5, p. 2920, 1995. Disponível em: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.51.2920>.
- [40] J. Hamrle, S. Blomeier, O. Gaier, B. Hillebrands, R. Schäfer, and M. Jourdan, “Magnetic anisotropies and magnetization reversal of the co₂cr_{0.6}fe_{0.4}al heusler compound,” *Journal of applied physics*, vol. 100, no. 10, p. 103904, 2006. Disponível em: <https://doi.org/10.1063/1.2387059>.
- [41] C. Mathieu, V. R. Inturi, and M. J. Hadley, “Magnetic anisotropy dispersion in feco films,” *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 44, no. 4, pp. 431–434, 2008. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/4475334/authors#authors8>.
- [42] V. Inturi, H. Yin, M. Kief, M. Hadley, and C. Mathieu, “Practical feco films for perpendicular writer pole,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 48, no. 5, pp. 1718–1722, 2012. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/6187787/authors#authors>.
- [43] O. Idigoras, A. Suszka, P. Vavassori, P. Landeros, J. Porro, and A. Berger, “Collapse of hard-axis behavior in uniaxial co films,” *Physical Review B*, vol. 84, no. 13, p. 132403, 2011. Disponível em: <https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.84.132403>.
- [44] O. Idigoras, A. Suszka, P. Vavassori, B. Obry, B. Hillebrands, P. Landeros, and A. Berger, “Magnetization reversal of in-plane uniaxial co films and its dependence on epitaxial alignment,” *Journal of Applied Physics*, vol. 115, no. 8, p. 083912, 2014. Disponível em: <https://doi.org/10.1063/1.4867001>.

- [45] M. Sedrpooshan, H. Ahmadvand, D. L. González, and S. van Dijken, “Magneto-optical study of anomalous magnetization reversal in the presence of anisotropy dispersion in copd thin films,” *Physical Review B*, vol. 98, no. 21, p. 214444, 2018. Disponível em: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.214444>.
- [46] J. Geshev, O. Popov, V. Masheva, and M. Mikhov, “Thermomagnetic curves for a disordered system of single-domain ferromagnetic particles with cubic anisotropy,” *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 92, no. 2, pp. 185–190, 1990. Disponível em: [https://doi.org/10.1016/0304-8853\(90\)90630-9](https://doi.org/10.1016/0304-8853(90)90630-9).
- [47] J. Geshev, A. Viegas, and J. E. Schmidt, “Negative remanent magnetization of fine particles with competing cubic and uniaxial anisotropies,” *Journal of applied physics*, vol. 84, no. 3, pp. 1488–1492, 1998. Disponível em: <https://doi.org/10.1063/1.368214>.
- [48] A. Harres and J. Geshev, “Athermal training due to exchange and dipolar coupling within a granular model for exchange bias,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 23, no. 21, p. 216003, 2011. Disponível em: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-8984/23/21/216003/pdf>.